

N° d'ordre : 3431

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Thomas DEHOUX**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : **Mécanique**

**Génération et détection par couplage élasto-optique
tridimensionnel de champs acoustiques picosecondes diffractés**

Date de soutenance : 20 septembre 2007

Après avis de :

M. V. GUSEV, professeur, université du Maine, membre senior IUF
M. B. PERRIN, directeur de recherche - CNRS

Rapporteurs

Devant la commission d'examen formée de :

M. M. DESCHAMPS, directeur de recherche - CNRS
M. B. AUDOIN, professeur, université Bordeaux 1
M. V. GUSEV, professeur, université du Maine, membre senior IUF
M. J.-P. LEFEBVRE, directeur de recherche - CNRS
M. B. PERRIN, directeur de recherche - CNRS
M. C. ROSSIGNOL, chargé de recherche - CNRS

**Président
Examineurs**

Je remercie Didier Desjardins, professeur à l'université Bordeaux 1, et Marc Deschamps, directeur de recherche au CNRS, pour m'avoir accueilli au Laboratoire de Mécanique Physique.

Ce mémoire est le résultat d'un travail effectué au sein de l'équipe Propagation Acoustique et Ultrasons Laser, coordonnée par Marc Deschamps.

Je tiens à remercier Vitali Gusev, professeur à l'université du Maine et membre senior de l'Institut Universitaire de France, et Bernard Perrin, directeur de recherche au CNRS, de m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail.

Mes remerciements vont également à Marc Deschamps et à Jean-Pierre Lefebvre, directeur de recherche au CNRS, pour avoir accepté de participer au jury de thèse.

J'adresse particulièrement toute ma reconnaissance à Bertrand Audoin, professeur à l'université Bordeaux 1, et à Clément Rossignol, chargé de recherche au CNRS, pour m'avoir encadré durant ces trois années. Leurs connaissances et leurs conseils ont rendu possible l'aboutissement de ce travail de thèse. Ils m'ont fait partager leur passion et leur conception de la recherche ... Et permis de faire de beaux voyages !

Je tiens à remercier vivement Nikolay Chigarev, ingénieur d'étude à l'université du Maine, pour son aide inestimable sur les aspects expérimentaux de ce travail, et pour ses conseils sur les faisceaux gaussiens.

Je remercie chaleureusement Mathieu Perton pour m'avoir aidé avec patience, pour nos discussions sur la physique, ses concerts de trompette le midi, et ses repas mexicains animés ! Je remercie également Alexander Shuvalov, directeur de recherche au CNRS, pour son aide précieuse sur le matricant, et pour m'avoir prêté sa tondeuse.

Je remercie Christophe Aristégui, maître de conférence à l'université Bordeaux 1, pour m'avoir conseillé et soutenu durant mes premiers pas dans l'enseignement.

De grands mercis à Béatrice Desoudin, Sandrine Guit et Céline Oum, sans qui le laboratoire ne pourrait pas fonctionner ! Merci également à Cathy Blanchard et Sandrine Pampliega pour œuvrer quotidiennement pour le bien être du laboratoire. Merci à toutes de m'avoir aidé le jour J.

Je remercie sincèrement toutes les personnes du LMP, ainsi que du CPMOH, pour leur aide et leur soutien au cours de ces trois années. Un merci particulier à Ludo, Audrey, Anis et Nawel pour tous les moments passés ensemble.

A mes parents, Emilie et Sael.

A Laëti, pour tout le reste.

Table des matières

Introduction générale	1
 PARTIE I	
GÉNÉRATION PHOTO-ÉLASTIQUE 3D DANS LES MÉTAUX PAR IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES	7
 Introduction de la première partie	9
 1 Description semi-analytique de la génération photo-élastique 3D	13
1.1 Approche microscopique de la génération photo-élastique	14
1.1.1 Définition du couplage photo-élastique	14
1.1.2 Description de l'évolution thermique par un modèle à deux températures	15
1.2 Définition de la géométrie de la source laser dans l'espace des transformées . . .	17
1.3 Expression de la source thermique	18
1.4 Détermination du champ de température	19
1.4.1 Décomposition spectrale de la solution	20
1.4.2 Conditions limites thermiques	21
1.5 Détermination du champ de déplacement	22
1.5.1 Décomposition de la solution en somme d'ondes planes monochromatiques	22
1.5.2 Forme générale de la solution homogène	23
1.5.3 Expression de la solution totale	24
1.5.4 Conditions limites	25
1.6 Conclusion	25
 2 Influence de la durée de l'impulsion pompe sur la réflectivité 1D	27
2.1 Expression du changement de réflectivité	28
2.2 Description et caractérisation du montage expérimental	29
2.2.1 Dispositif d'étirement de l'impulsion	30
2.2.2 Calcul de la durée d'impulsion	31
2.2.3 Vérification de la calibration du dispositif expérimental	32
2.3 Comparaison du calcul du processus thermique avec les données expérimentales .	32
2.4 Influence de la durée d'impulsion sur les échos acoustiques	35
2.5 Identification du contenu fréquentiel des échos acoustiques	36

2.6	Caractéristiques et existence du maximum de génération	38
2.7	Conclusion	40
3	Influence de l'extension latérale de la source optique	43
3.1	Etude du caractère bidimensionnel du champ de température	43
3.1.1	Identification des régimes fréquentiels	44
3.1.2	Influence de la diffusion électronique sur la distribution spatiale du champ de température	45
3.1.2.1	Régime basse fréquence	46
3.1.2.2	Régime haute fréquence	47
3.1.3	Lien entre la diffusion électronique latérale et la diffraction acoustique . .	48
3.1.3.1	Condition sur les lenteurs de phase acoustiques	49
3.1.3.2	Condition sur les courbes de dispersion acoustiques	49
3.1.3.3	Cas de l'onde de Rayleigh	50
3.2	Description du dispositif expérimental	50
3.3	Comparaison des signaux expérimentaux et théoriques obtenus dans un film d'or	52
3.3.1	Configuration unidimensionnelle	52
3.3.2	Configuration bidimensionnelle	53
3.4	Conclusion	55
	Conclusion de la première partie	57
PARTIE II		
	DÉTECTION PAR COUPLAGE ÉLASTO-OPTIQUE 3D D'UN CHAMP ACOUSTIQUE DIF- FRACTÉ	59
	Introduction de la seconde partie	61
4	Interaction élasto-optique 3D	65
4.1	Propagation optique dans les milieux anisotropes	66
4.2	Caractérisation de l'anisotropie optique induite par une perturbation élastique .	66
4.2.1	Ellipsoïde des indices	66
4.2.2	Surface des indices	67
4.3	Equation de dispersion optique	68
4.4	Interaction élasto-optique	70
4.4.1	Tenseurs élasto-optiques	70
4.4.2	Hétérogénéité optique transitoire induite par une perturbation élastique .	71
4.5	Conclusion	72
5	Calcul du changement de réflectivité en optique géométrique	73
5.1	Cas optique et élastique unidimensionnel	74
5.1.1	Linéarisation de l'équation de Maxwell	74
5.1.2	Calcul du changement de réflectivité	75

5.1.3	Processus de détection dans le cas unidimensionnel	77
5.2	Réflexion optique 2D à une interface entre milieux isotrope et anisotrope	78
5.3	Cas optique bidimensionnel et élastique unidimensionnel	81
5.4	Cas optique et élastique bidimensionnel	82
5.4.1	Calcul du déphasage optique induit par l'onde élastique	82
5.4.2	Détermination du changement de réflectivité	83
5.4.3	Expression du changement de réflectivité dans le repère lié aux axes principaux	84
5.5	Conclusion	84
6	Calcul du changement de réflectivité avec le matricant	87
6.1	Interaction oblique du laser avec une hétérogénéité acoustique monochromatique	88
6.2	Résolution à l'aide du matricant	91
6.3	Prise en compte de l'aspect gaussien du faisceau sonde	93
6.4	Conditions limites optiques	95
6.5	Conclusion	97
7	Détection d'ondes optiques diffractées par un champ acoustique 3D	99
7.1	Puissance associée à une détection quasi-linéique polarisée linéairement	100
7.2	Forme de l'impulsion optique au moment de l'interaction avec l'onde acoustique .	102
7.3	Diffraction de la lumière engendrée par la diffraction acoustique	104
7.4	Puissance associée à une détection quasi-ponctuelle polarisée linéairement	105
7.5	Réponse réflectométrique d'un film d'aluminium isotrope sub-micrométrique . . .	107
7.5.1	Résultats expérimentaux	107
7.5.2	Comparaison entre signaux expérimentaux et calculs semi-analytiques . .	108
7.6	Influence de l'extension latérale de la source laser	109
7.7	Perspectives : oscillations Brillouin générées par un champ acoustique diffracté .	111
7.8	Conclusion	114
	Conclusion de la deuxième partie	115
	Conclusion générale	117
A	Détails du calcul du champ de déplacement	121
A.1	Contraintes acoustiques homogènes	122
A.2	Contraintes particulières acoustiques et thermiques	122
A.3	Résolution	123
B	Propriétés des matériaux utilisés	125
C	Recherche d'un spectre hermitien	127

D	Méthodes alternatives pour le calcul du changement de réflectivité induit par une unique onde plane acoustique	129
D.1	Méthode basée sur la fonction de Green	129
D.2	Méthode basée sur la théorie des approximations successives	131
E	Détails du calcul du changement de réflectivité à l'aide du matricant	133
E.1	Coefficients de la matrice d'expansion	133
E.2	Calcul du changement de réflectivité	134
	RÉFÉRENCES	137

Table des figures

1	L'absorption de la radiation électromagnétique de l'impulsion laser crée un brusque échauffement local. Ce rapide changement de volume génère une onde acoustique haute fréquence.	2
2	Une onde de déformation incidente est générée par l'absorption de l'impulsion laser. Elle se propage jusqu'à l'interface film/substrat où elle se réfléchit partiellement, et donne naissance à une onde transmise.	2
3	La variation de l'intensité réfléchie, appelée réflectivité, est tracée en fonction de l'écart temporel entre la pompe et la sonde dans un film de tungstène de 250 nm d'épaisseur déposé sur un substrat semi-infini de silicium. Le détail du premier écho acoustique est représenté dans l'insert.	3
1.1	Position du point source et du point de détection, distants de x_2^p sur la surface du film d'épaisseur d . Une source linéique virtuelle faisant un angle φ avec la direction de $\mathbf{x}_3$, utilisée pour les calculs, est représentée.	17
1.2	Le champ acoustique généré par une source linéique orientée suivant $\mathbf{x}_3$ est représenté en gris. Il est décomposé en une somme d'ondes planes monochromatiques se propageant dans les directions définies par les vecteurs d'onde $\mathbf{k}$	23
2.1	Montages réflectométrique et interférométrique basés sur une source laser Ti :Saphir (795 nm, 82 MHz, 5 nJ, 100 fs). Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés par une lentille asphérique.	30
2.2	Dispositif expérimental utilisé pour étirer les impulsions laser.	31
2.3	(a) Comparaison entre la durée d'impulsion calculée (trait plein) et les valeurs données par les mesures interférométriques (cercles) en fonction de la distance entre la lentille et le réseau. (b) Agrandissement autour des plus petites distances.	33
2.4	Comparaison des signaux réflectométriques expérimentaux (traits pleins) avec les calculs théoriques (pointillés) pour des durées d'impulsion de 0.8, 5.4 et 15 ps. Un agrandissement du pic de coïncidence est effectué dans l'insert.	34
2.5	Comparaison entre les données expérimentales (trait plein) et le calcul semi-analytique (pointillés) du premier écho acoustique. (a) Premiers échos réflectométriques pour des durées d'impulsion de 160 fs, 5.4 ps et 15 ps. (b) Premiers échos interférométriques pour des durées d'impulsion de 100 fs, 4.6 ps et 25 ps.	36

2.6	(a) Spectre d'une impulsion d'une durée de 10 ps (trait mixte). Réponses à un Dirac temporel (pointillés) et à une impulsion d'une durée de 10 ps (trait plein). (b) Réponses temporelles à un Dirac temporel (pointillés) et à une impulsion d'une durée de 10 ps (trait plein).	37
2.7	Fréquence centrale ($\square$) et fréquences à mi-hauteur ($\circ$) du spectre du premier écho en réflectométrie. Comparaison entre théorie (—) et expérience (marqueurs). . .	38
2.8	Prédiction théorique de l'évolution de l'énergie du premier écho acoustique en fonction de la durée d'impulsion.	38
2.9	Evolution de la température maximale du réseau calculée pour la capacité calorifique du tungstène $C_l^I = 2.55 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ (trait plein) et pour une valeur modifiée $C_l^I = 0.5 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ (pointillés).	40
2.10	Evolution de l'énergie du premier écho acoustique en réflectométrie (trait plein). Energie du premier écho normalisée par rapport à la température maximale du réseau (pointillés).	40
3.1	La répartition spatiale du champ de température est représentée dans le régime basse fréquence $\omega\tau_r^I \ll 1$. La zone hachurée correspond à des vitesses acoustiques inférieures à la vitesse d'expansion latérale de la source. La diffusion thermique suivant $\mathbf{x}_2$ influence le champ acoustique et doit être considérée. A l'inverse, dans la zone grisée, les vitesses acoustiques sont supérieures à la vitesse d'expansion latérale de la source thermique. La diffusion thermique suivant $\mathbf{x}_2$ n'influe pas sur le champ acoustique, et peut être négligée. Les droites en pointillés décrivent les courbes de dispersion des ondes longitudinales L et transverses T. Le point noté R représente l'onde de Rayleigh.	47
3.2	La projection des lenteurs de phase pour les ondes longitudinale (L) et transverse (T) est représentée. Cette vue correspond à une coupe de la figure 3.1 à $\omega\tau_r^I$ fixé. Ainsi, les zones thermiques définies précédemment sont superposées aux lenteurs acoustiques.	48
3.3	Montage interférométrique basé sur une source laser Ti :Saphir (796 nm, 82 MHz, 5 nJ, 100 fs). Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés par un objectif de microscope. Le jeu de deux lentilles de plans focaux confondus, dont la seconde est mobile, permet de modifier l'écart entre les faisceaux pompe et sonde sur la surface de l'échantillon.	50
3.4	Une gaussienne de FWHM χ (pointillés) est ajustée sur la corrélation croisée des faisceaux pompe et sonde (trait plein).	51
3.5	Les réflexions des ondes longitudinales (trait discontinu) et transverses (pointillés) sont distinguées. Les chemins des ondes réfléchies avec (LT , TL) ou sans ($2L$, $4L$) conversion de mode sont représentés pour une distance pompe-sonde x_2^p	51

3.6	Comparaison entre les données expérimentales (trait plein) et le calcul théorique du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $1.3 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 10 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (trait discontinu) et à deux températures (pointillés) sont représentés. Les échos longitudinaux $2L$ et $4L$ sont observés.	53
3.7	Mesure à l'épicentre (trait plein) du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $2.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 1 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (traits discontinus) et électronique (pointillés) sont représentés.	54
3.8	Mesure à $2 \mu\text{m}$ de l'épicentre (trait plein) du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $2.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 1 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (traits discontinus) et électronique (pointillés) sont représentés.	54
3.9	Principes et étapes permettant de décrire l'interaction d'un faisceau optique gaussien avec un champ acoustique 3D. Les deux colonnes représentent, de gauche à droite, le traitement analytique du champ acoustique 3D, et du faisceau optique gaussien. Les flèches entre les deux colonnes relient les niveaux où l'interaction élasto-optique est décrite, ainsi que le modèle correspondant.	63
3.10	Le champ acoustique est décomposé en une somme d'ondes planes. Chaque onde plane optique incidente est ensuite diffractée indépendamment par chaque onde plane acoustique.	64
4.1	La surface des lenteurs optiques est projetée dans le plan principal $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$. Les vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ des modes optiques se propageant dans la direction $\mathbf{s}$ sont indiqués. Les axes optiques, correspondant aux directions où les deux vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ sont égaux, sont matérialisés en pointillés.	68
5.1	Le cas optique et élastique unidimensionnel est représenté. L'onde plane optique incidente traverse l'interface vide/film. Elle est ensuite réfléchiée par l'onde acoustique symbolisée par une interface virtuelle. L'onde retransverse finalement l'interface pour sortir du film.	75
5.2	Le rayon réfléchi par la surface du film en l'absence de perturbation (trait plein) et le rayon perturbé par le déplacement $u_1(0, t)$ de la surface (pointillés) sont représentés.	77
5.3	Réflexion et transmission d'un mode ordinaire faisant un angle θ_1 avec la normale à une interface isotrope/anisotrope dans un plan optique principal.	77
5.4	L'onde plane optique arrive en incidence oblique sur la surface libre. Elle se réfléchit ensuite avec un angle θ_1 sur l'onde plane acoustique. Le plan de phase de cette dernière est parallèle à la surface libre et distant de x'_1	82
5.5	L'onde plane optique arrive en incidence normale sur la surface libre. Elle se réfléchit ensuite sur l'onde plane acoustique. Le plan de phase de cette dernière fait un angle θ_1 avec la surface libre et distant de x'_1	82

6.1	Evolution du contour latéral w du faisceau laser gaussien en fonction de la distance de propagation. Les asymptotes de coefficient directeur $\pm \tan \theta$ sont indiquées en pointillés, de même que les fronts d'ondes au col du faisceau (front plan) et à une position quelconque (front sphérique).	94
7.1	Les points de génération et de détection sont représentés, séparés de la distance x_2^p . Ils sont calculés à partir de la somme des lignes virtuelles (pointillés) distantes de $x_2^p \cos \varphi$ et dont la polarisation est repérée par l'angle φ	101
7.2	L'interaction de plusieurs ondes planes optiques incidentes avec une seule onde plane acoustique est représentée. Chaque rayon incident I_i donne naissance à un rayon R_i , réfléchi par la surface libre, et à un rayon D_i diffracté par l'onde plane acoustique. Alors D_2 peut interférer avec R_1 , et D_3 avec R_2 , puisqu'ils sont parallèles.	101
7.3	Le faisceau sonde en incidence normale interagit avec une seule onde plane acoustique se propageant dans une direction oblique.	105
7.4	Un faisceau incident polarisé suivant $\mathbf{x}_2$ est considéré. La polarisation diffractée $\mathbf{P}^s$ est perpendiculaire à $\mathbf{q}^s$. La modification du déplacement électrique $^{(2)}\overline{\varepsilon}^s \mathbf{E}^{inc}$ est indiquée en pointillés.	105
7.5	La diffraction du vecteur d'onde optique incident $\mathbf{q}^h$ par les vecteurs d'onde acoustiques $\pm \mathbf{k}$ favorise deux vecteurs d'onde diffractés $+\mathbf{q}^s$ et $-\mathbf{q}^s$	106
7.6	Signal réflectométrique mesuré dans un film d'aluminium isotrope déposé sur un substrat de Mylar pour des distances pompe-sonde x_2^p de 0 et 1 μm . Les échos longitudinaux 2L et 4L, de même que les échos issus de conversion de modes TL and LT, sont observés.	107
7.7	Signal réflectométrique calculé dans un film d'aluminium isotrope déposé sur un substrat de Mylar pour des distances pompe-sonde x_2^p de 0 et 0.8 μm . Les échos longitudinaux 2L et 4L, de même que les échos issus de conversion de modes TL and LT, sont observés.	107
7.8	Formation de l'écho longitudinal tri-polaire par réflexion sur la surface d'une impulsion acoustique bipolaire, à une position proche de la surface libre.	108
7.9	Comparaison entre les signaux numériques obtenus à l'épicentre avec (trait plein) et sans convolution (pointillés) pour une tache focale de pompe de $\chi_b = 450 \text{ nm}$	110
7.10	Comparaison entre les signaux numériques obtenus à l'épicentre avec (trait plein) et sans convolution (pointillés) pour une tache focale de pompe de $\chi_b = 200 \text{ nm}$	110
7.11	Géométrie du film transparent de silice (dioxide de silicium SiO_2) de 2 μm d'épaisseur, déposé sur une couche mince d'aluminium (Al), elle-même déposée sur un substrat semi-infini de silicium (Si).	111
7.12	Comparaison entre le signal réflectométrique mesuré à l'épicentre en focalisant la sonde à l'interface SiO_2/air (trait plein) et à l'interface SiO_2/Al (pointillés).	112
7.13	Comparaison entre le signal réflectométrique mesuré à l'épicentre (trait plein) et pour $x_1^d = 0.8 \text{ }\mu\text{m}$ (pointillés) en focalisant la sonde à l'interface SiO_2/Al . Un déphasage est observé entre les deux signaux.	112

7.14	Calcul semi-analytique des oscillations Brillouin dans un matériau opaque pour la génération, et transparent pour la détection. Un polynôme est soustrait, et les amplitudes sont normalisées. Un déphasage est observé entre les signaux calculés à l'épicentre (trait plein), à $x_1^d = 1.5 \mu\text{m}$ (trait discontinu) et à $x_1^d = 3 \mu\text{m}$ (pointillés).	113
------	---	-----

Introduction générale

Les ultrasons sont des ondes acoustiques très haute fréquence, inaudibles pour l'oreille humaine [1]. A leur fréquence correspond une longueur d'onde spatiale, imposée par l'élasticité du réseau cristallin. Lorsqu'ils se propagent au sein de la matière, ils interagissent avec les variations de propriétés mécaniques qu'ils perçoivent, c'est-à-dire des changements de géométries ou des défauts de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde. Plus la fréquence est élevée, plus la longueur d'onde est petite, et plus l'onde est sensible à des variations mécaniques de petites dimensions. Leur utilisation trouve alors un intérêt particulier pour l'évaluation non destructive, de même que pour le contrôle non destructif [2]. Pour ces domaines d'application, une méthode répandue pour générer les ultrasons consiste à employer des transducteurs. Cependant, ceux-ci nécessitent un couplage, et sont limités en fréquence. L'ordre de grandeur des structures couramment étudiées par cette technique est le millimètre.

En 1960, l'avènement du laser [3] fit naître de nouvelles méthodes de génération sans contact. Lorsqu'une impulsion électromagnétique d'une durée de quelques nanosecondes (10^{-9} s) atteint la surface d'un matériau, elle crée un brusque échauffement local représenté sur la figure 1. Ce rapide changement de volume génère une onde acoustique de quelques mégahertz [4]. Cette dernière, au cours de sa propagation, se réfléchit sur les différentes interfaces élastiques qu'elle peut percevoir, comme le montre la figure 2. Parallèlement à ce phénomène élastique, une lente relaxation thermique s'opère. Différents modèles théoriques, du plus simple considérant une source thermique localisée sur la surface [5], jusqu'au plus évolué prenant en compte la pénétration de la radiation électromagnétique [6], proposent alors de décrire ces processus de génération photo-élastique et photo-thermique. Des mesures expérimentales du déplacement de la surface permettent ensuite de caractériser ces évolutions transitoires. Par conséquent, le laser offre la possibilité d'étudier à la fois la propagation d'ondes acoustiques ultrasonores et la diffusion d'un champ thermique.

Au milieu des années 70, l'apparition des premières impulsions de durées inférieures à la picoseconde [7] (10^{-12} s) fait franchir un nouveau pas aux ultrasons générés par laser. En effet, dès lors, la fréquence acoustique n'a de limite que celle imposée par les propriétés optiques du matériau. Ainsi, en 1984, H. J. Maris génère un train d'onde de plusieurs dizaines de gigahertz, et donne naissance à l'acoustique picoseconde [8]. Des matériaux nanométriques peuvent alors être étudiés. En outre, pour des durées d'impulsions aussi courtes, les évolutions thermiques rapides, de même que les mécanismes microscopiques, peuvent être analysés. Un nouveau champ d'applications est alors ouvert. Cependant, pour mesurer ces phénomènes transitoires avec une résolution temporelle suffisante, il est nécessaire de faire appel à une technique pompe-sonde.

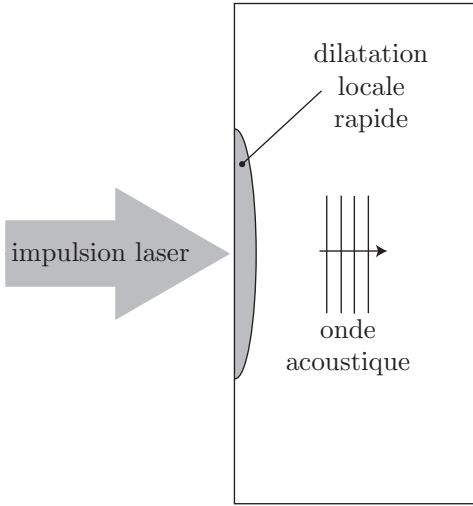


FIG. 1 – L’absorption de la radiation électromagnétique de l’impulsion laser crée un brusque échauffement local. Ce rapide changement de volume génère une onde acoustique haute fréquence.

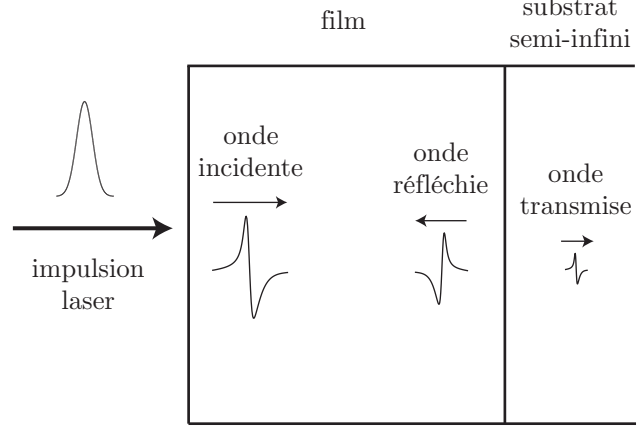


FIG. 2 – Une onde de déformation incidente est générée par l’absorption de l’impulsion laser. Elle se propage jusqu’à l’interface film/substrat où elle se réfléchit partiellement, et donne naissance à une onde transmise.

La technique pompe-sonde est basée sur l’observation de la lumière perturbée par une variation de l’indice optique du milieu étudié. Ce phénomène, appelé *Schlieren*¹, a été observé par R. Hooke dès 1665 [9]. Une méthode utilisant ce concept fut développée plus tard par A. Toepler en 1867, puis utilisée par E. Mach pour visualiser les ondes de choc [10]. Elle fut couplée avec l’utilisation d’impulsions laser [11] en 1974 pour l’étude de la réponse thermique uniquement.

Aujourd’hui employée dans de nombreux domaines, la technique pompe-sonde doit son nom aux deux impulsions lumineuses qu’elle utilise. La première impulsion, appelée pompe, est absorbée par le matériau et génère les phénomènes élastique et thermique transitoires. Au cours de sa propagation, l’onde acoustique génère une déformation qui modifie localement les propriétés de la matière traversée [12], inscrivant ainsi un réseau d’indice optique. Alors une deuxième impulsion moins énergétique que la pompe, appelée sonde, pénètre dans le matériau sur une certaine profondeur, et interagit avec ces variations optiques ; c’est le couplage élasto-optique. Le mécanisme de ce dernier, similaire à celui utilisé en spectroscopie Brillouin, est basé sur la diffraction d’une onde électromagnétique par un champ acoustique [13]. En outre, le champ thermique diffusé change également la façon dont la lumière de la sonde peut se propager ; c’est le couplage thermo-optique. Celui-ci est notamment à l’œuvre dans l’effet mirage qui permet de visualiser simplement ce phénomène.

Ainsi, la mesure de la réflexion de la sonde par l’échantillon permet de détecter les champs acoustiques et thermiques. En augmentant l’écart temporel entre la pompe et la sonde, c’est-à-dire le temps qui sépare la génération de la détection, l’évolution temporelle des variations optiques induites acoustiquement et thermiquement est caractérisée. Dès lors, il est possible de construire une courbe représentant la variation de l’intensité réfléchie par le matériau, appelée réflectivité, en fonction du temps. Sur la figure 3, une telle mesure, effectuée dans un film de

¹Le terme *Schlieren* décrit l’ombre portée par une inhomogénéité présente dans un milieu transparent.

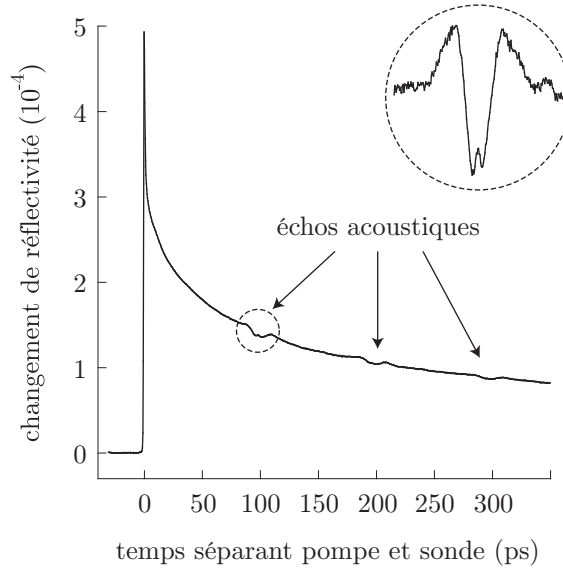


FIG. 3 – La variation de l'intensité réfléchie, appelée réflectivité, est tracée en fonction de l'écart temporel entre la pompe et la sonde dans un film de tungstène de 250 nm d'épaisseur déposé sur un substrat semi-infini de silicium. Le détail du premier écho acoustique est représenté dans l'insert.

tungstène de 250 nm d'épaisseur déposé sur un substrat semi-infini de silicium, est tracée à titre d'exemple.

Une lente décroissance, correspondant à la modification de la réflexion de la sonde due à la diffusion du champ thermique, est observée. Sur cette dernière se superposent des échos acoustiques, provenant des réflexions successives sur les interfaces film/substrat et film/air. Comme le tungstène absorbe fortement les ondes électromagnétiques, ces quantités sont détectées près de la surface libre de l'échantillon. Elles proviennent de la perturbation de la lumière par la déformation élastique. Les variations infimes de la réflectivité (10^{-4} pour le thermique et 10^{-6} pour les échos acoustiques) permettent ainsi de caractériser précisément des films dont l'épaisseur ne fait que quelques centaines de nanomètres. En outre, à l'origine, c'est-à-dire lorsque la pompe et la sonde arrivent en même temps, un pic étroit est observé ; c'est le pic de coïncidence. Il traduit la dynamique électronique rapide au moment de l'absorption de la radiation électromagnétique, qui influence également la manière dont la lumière se propage. Ainsi, un signal riche est obtenu, comprenant des informations élastiques, mais aussi thermiques et électroniques.

De nombreuses applications découlent de cette interaction entre le laser et la matière, notamment en micro-électronique². Les hautes fréquences acoustiques générées permettent de caractériser des films nanométriques en contrôlant leur géométrie et leur propriétés mécaniques ou thermiques. En outre, la propagation d'ondes de surface [14] ou de volume dans les cristaux phononiques permet l'étude des filtres fréquentiels utilisés en téléphonie. Des domaines applicatifs plus fondamentaux sont également explorés à l'aide de cette méthode, au croisement de l'acoustique, de l'électromagnétisme, de la thermodynamique et de la physique de l'état solide. Parmi les thématiques en vogue ces dernières années peuvent être citées la propagation de solitons acoustiques [15], la mise en vibration de nanoparticules [16], ou encore la détermination

²Société Rudolph Technologies Inc. www.rudolphtech.com

de fonctions d'onde électroniques dans les puits quantiques [17].

Les travaux présentés dans ce mémoire sont consacrés à l'étude des films minces. Jusqu'à très récemment, dans tous les travaux, l'extension latérale de la source optique était très grande devant les dimensions des échantillons étudiés. Par conséquent, la génération thermique, et donc acoustique, était unidimensionnelle. Ainsi, seules des ondes acoustiques planes longitudinales pouvaient être générées. Cependant, afin d'accéder à des informations sur la visco-élasticité des matériaux dans d'autres directions que la profondeur, les ondes planes transverses représentent un outil d'importance. Au début des années 2000, une grande émulation naquit pour avoir la primeur de leur observation en acoustique picoseconde.

La génération d'ondes planes transverses fut d'abord rendue possible par conversion de mode à l'interface entre un film isotrope opaque et un substrat anisotrope coupé hors de ses axes élastiques principaux [18]. Dans ce cas, une onde plane longitudinale est générée à la surface libre comme décrit précédemment. Lorsqu'elle atteint l'interface avec le substrat, puisque ce dernier n'a pas la même symétrie que le film, elle donne naissance à deux ondes transmises : une onde quasi-longitudinale et une onde quasi-transverse. Alors, afin de satisfaire les conditions limites mécaniques, une onde transverse est également réfléchie à cette interface. Les mêmes résultats furent plus tard obtenus dans un film transparent isotrope [19], puis anisotrope [20, 21, 22]. Afin de détecter l'onde acoustique plane transverse dans les milieux isotropes, toutes ces applications nécessitent l'emploi d'un faisceau sonde en incidence oblique.

Parallèlement à ces avancées, l'utilisation de faisceaux focalisés permis de générer des champs acoustiques plus riches en informations. Couramment employés avec des impulsions nanosecondes, les faisceaux pompe focalisés offrirent en acoustique picoseconde, dans un premier temps, la possibilité de générer des ondes de surface haute fréquence [23, 24]. Puis, en propageant sur de longues distances les impulsions acoustiques longitudinales générées par une source laser focalisée, il fut possible d'observer l'onde diffractée en champ lointain [25, 26]. Mais ce n'est qu'en 2005 que la génération d'ondes acoustiques transverses fut rendue possible par la diffraction issue d'une source laser focalisée sur une interface [27, 28].

C'est dans ce contexte que cette thèse a débuté à la fin de l'année 2004 au sein du Laboratoire de Mécanique Physique (L. M. P.). Les premières études sur les applications des ultrasons laser y ont commencé à la fin des années 80 sous l'impulsion de B. Castagnède. La thématique fut ensuite développée par B. Audoin [29] à partir du début des années 90. L'arrivée de C. Rossignol [30] en 2001 et la collaboration avec le Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne [31] fit ensuite éclore la thématique acoustique picoseconde. Une particularité des travaux menés au L. M. P. consiste à utiliser des sources laser focalisées pour générer des champs acoustiques diffractés. La propagation de ces derniers est alors représentée par des modèles semi-analytiques adaptés au matériau considéré et à la géométrie de la source employée. Cette approche permet une analyse fondamentale des phénomènes physiques en présence. Cependant, aucune modélisation de la détection du champ acoustique diffracté n'existe.

L'objet de ce travail de thèse est donc de modéliser la détection d'un champ acoustique diffracté tridimensionnel par un faisceau sonde d'extension latérale finie.

Pour cela, l'exposé de ce mémoire se fera en deux parties distinctes. La première étendra les modèles de génération tridimensionnels développés par H. Méri [32] et M. Perton [28] au cas des métaux. La seconde partie sera consacrée à la modélisation du processus de détection du champ acoustique diffracté. Des mesures expérimentales viendront étayer les prédictions théoriques.

Première partie

Génération photo-élastique 3D dans
les métaux par impulsions laser
femtosecondes

Introduction

Les techniques d’acoustique picoseconde considérées dans ce travail sont basées sur des montages pompe-sonde. Elles font donc appel à deux impulsions optiques distinctes, une pour la génération, et une pour la détection. Il est ainsi possible de séparer les phénomènes respectivement liés à chacune de ces deux étapes, et cette première partie est alors consacrée au processus de génération.

Le processus de génération concerne la suite d’événements qui se succèdent lors d’une expérience d’acoustique picoseconde, de l’absorption de la radiation électromagnétique, jusqu’à la génération de l’onde élastique. Il existe alors plusieurs régimes, dont les prédominances respectives dépendent de la fluence, c’est-à-dire de l’énergie incidente déposée sur la surface illuminée. Ainsi sont distingués les régimes d’ablation [33, 34], lorsque l’équilibre thermodynamique est rompu, et, par opposition, le régime thermoélastique, qui sera le seul étudié dans ce travail. Celui-ci peut être scindé en deux grandes étapes.

La première étape est le couplage photo-thermique, qui décrit l’absorption de l’impulsion optique par la matière et sa conversion en énergie thermique. Les phénomènes alors impliqués dépendent de la nature du matériau illuminé, et il convient de séparer les métaux des semi-conducteurs. Ces derniers, déjà étudiés dans des configurations unidimensionnelles [35], puis bidimensionnelles [36], ne seront pas considérés ici. Concernant les métaux, plusieurs modèles peuvent être envisagés, selon la durée des impulsions laser pompe et sonde. La seconde étape représente la transformation de l’agitation thermique en vibration mécanique, à travers l’interaction thermo-élastique. Puisque le régime d’ablation est ici excepté, cette conversion est décrite par l’expression de la contrainte thermique engendrée par le champ de température. La propagation de l’onde élastique ainsi créée est ensuite généralement gouvernée par l’acoustique linéaire. La description de la génération en acoustique picoseconde est donc liée à la manière dont la radiation du laser est absorbée et convertie en mouvement.

L’observation macroscopique de la génération d’ondes sonores par l’absorption d’énergie lumineuse fut d’abord faite par A. G. Bell en 1881 [37]. Puis, d’un point de vue microscopique, le couplage entre une onde lumineuse et la vibration naturelle d’un matériau fut découvert en 1922 par L. Brillouin [13] et nommé après lui. Au milieu du XXe siècle, l’invention du maser par l’équipe de C. H. Townes [38] fournit l’énergie nécessaire pour voir l’avènement, quelques années plus tard, de la diffusion Brillouin stimulée [39]. La génération d’ultrasons par l’absorption d’une onde lumineuse à une fréquence imposée fut ainsi rendue possible. Enfin, l’arrivée des laser impulsions permit une génération ultrasonore au spectre large. Alors, la durée des impulsions

utilisées définit à la fois la résolution temporelle des mesures obtenues, et l'ordre de grandeur des fréquences acoustiques générées. De façon quasi-immédiate dès le début de l'histoire du laser en 1960 [3], des impulsions de l'ordre de la nanoseconde étaient produites. Une dizaine d'années plus tard apparaissaient les premières impulsions de durées inférieures à la picoseconde [7].

Dans le cas d'impulsions nanosecondes, l'évolution de la température est décrite d'un point de vue macroscopique [4]. Lors de l'interaction entre le rayonnement et la matière, l'énergie transportée par le faisceau laser pompe est absorbée par l'échantillon. Ce phénomène crée un brusque échauffement local, qui se traduit par une dilatation du matériau. Ce rapide changement de volume génère une onde élastique, ainsi qu'une relaxation thermique plus lente [40, 41]. Cette approche macroscopique reste valide jusqu'à des impulsions de quelques picosecondes. L'apparition des premières impulsions de durées inférieures à la picoseconde a nécessité d'explicitier plus précisément les couplages photo-thermique et thermo-élastique³. En effet, si l'observation se fait à une échelle de temps très courte, il est nécessaire d'adopter une approche microscopique pour décrire la génération acoustique [42]. Cette dernière est basée sur un modèle à deux températures [43], qui décrit l'absorption des photons incidents par les électrons, puis le couplage de ceux-ci avec le réseau cristallin. Lorsque l'extension latérale de la source laser est grande comparée à l'épaisseur des structures considérées, autrement dit dans des configurations unidimensionnelles, ce modèle permet de décrire l'évolution des champs de température des électrons et du réseau [44]. Il offre en outre une représentation précise du couplage thermo-élastique [45], et est donc largement employé en acoustique picoseconde.

La description des ondes acoustiques générées dans les métaux par des sources laser focalisées, c'est-à-dire dans des configurations tridimensionnelles, n'a jamais été analysée à l'aide du modèle à deux températures. C'est donc l'objet de cette première partie.

Le premier chapitre sera alors consacré à la résolution analytique du problème de diffraction acoustique, en considérant les phénomènes électroniques. Cette approche permettra une discussion théorique riche de sens physique, et une application numérique simple à mettre en œuvre.

C'est la durée d'impulsion qui fixe la frontière entre le régime macroscopique et le régime microscopique. Son influence sur la réflectivité mesurée en acoustique picoseconde, et sur celle obtenue à partir des calculs semi-analytiques, sera analysée dans le deuxième chapitre. De façon à séparer l'influence de l'extension latérale de la source laser de celle de la durée d'impulsion, le cas unidimensionnel sera considéré dans ce chapitre. Afin de représenter les signaux expérimentaux, l'expression du changement de réflectivité sera exposée. Celle-ci dépend traditionnellement de la déformation acoustique [8] et de la température du réseau [46]. Cependant, la prise en compte de ces deux contributions ne suffit pas à décrire complètement les signaux mesurés en acoustique picoseconde. L'influence de la température électronique sera donc introduite. Alors les différentes composantes du signal réflectométrique seront identifiées, et leurs évolutions en fonction de la durée d'impulsion spécifiées. Ensuite, en confrontant les approches théorique et expérimentale,

³Par contraction, les couplages photo-thermique et thermo-élastique seront rassemblés sous la dénomination de couplage photo-élastique.

l'existence d'un maximum d'efficacité de génération acoustique sera mis en exergue, pour des caractéristiques d'impulsion particulières.

Enfin le troisième et dernier chapitre de cette partie sera dédié à l'analyse de l'influence des mécanismes microscopiques tridimensionnels sur la diffraction acoustique. Dans les configurations unidimensionnelles, le poids des phénomènes électroniques sur le contenu haute fréquence des ondes acoustiques a, depuis longtemps, été mis en évidence [45]. Néanmoins, dans la configuration tridimensionnelle considérée dans ce chapitre, il apparaîtra, de façon inattendue, un effet sur les basses fréquences. Celui-ci sera prédit théoriquement à partir d'un examen analytique, et confirmé expérimentalement à travers l'étude de l'onde de Rayleigh.

Chapitre 1

Description semi-analytique de la génération photo-élastique 3D

La matière est représentée par un ensemble de particules : les électrons, symbolisant la charge électrique négative élémentaire de la matière, et les phonons, représentant sa vibration élastique élémentaire [47]. L'énergie de l'impulsion laser incidente, transportée par les photons, est absorbée par les électrons libres, situés dans la bande de conduction. Ce surplus d'énergie est ensuite transmis au réseau cristallin¹ par l'intermédiaire de collisions particulières entre les électrons et les phonons.

Cependant, la description de ces comportements microscopiques fait intervenir un nombre de paramètres trop grand pour pouvoir être explicitée. En physique statistique, la notion de probabilité d'existence d'un état énergétique est alors introduite, et la répartition de ces probabilités en fonction de l'énergie est appelée distribution. Cette dernière dépend ensuite des particules considérées, et de leurs interactions. Cette approche permet d'explicitier le couplage photo-élastique. Des températures différentes pour le réseau et les électrons sont définies, et il convient alors de décrire leurs évolutions. Leurs expressions sont ensuite introduites comme terme source de l'équation de propagation acoustique pour décrire le couplage thermo-élastique.

De nombreux modèles ont été développés au sein du Laboratoire de Mécanique Physique pour décrire la génération tridimensionnelle en acoustique nanoseconde. La diffusion macroscopique de Fourier dans les métaux et le cas des semi-conducteurs [32] ont été considérés en 2D. En outre, des géométries bicouches [48, 28], et la prise en compte de sources tridimensionnelles [28] ont été analysées. A défaut d'implémenter un modèle microscopique, l'influence de la diffusion électronique peut être simulée par une augmentation de la pénétration optique [49]. Néanmoins, il n'existe pas de modèle traitant de la génération dans les métaux pour des sources laser tridimensionnelles de durées inférieures à la picoseconde.

Concernant les sources unidimensionnelles, le modèle à deux températures [43] est employé pour décrire le couplage photo-thermique dans les métaux [44]. Son implémentation est en outre nécessaire pour représenter la forme des échos mesurés en acoustique picoseconde [45]. Quelques études par éléments finis basées sur ce modèle ont été menées récemment pour analyser l'évolu-

¹Les cristaux sont constitués d'atomes dont l'arrangement périodique, imposé par les forces inter-atomiques, forme un réseau.

tion thermique latérale engendrée par une source laser focalisée [50, 51].

Les calculs présentés dans ce chapitre proposent de décrire semi-analytiquement la génération photo-élastique par une source focalisée de durée inférieure à la picoseconde dans les métaux. Ils étendent donc le modèle à deux températures aux géométries tridimensionnelles. Par rapport aux modèles existants en 3D, cela revient à modifier le terme source de l'équation de propagation acoustique. Par conséquent, une méthodologie similaire à celle employée notamment par H. Méri [32] et M. Perton [28] sera mise en œuvre. La géométrie utilisée sera d'abord décrite, puis l'expression du déplacement élastique sera exprimée analytiquement dans le domaine de Fourier.

1.1 Approche microscopique de la génération photo-élastique

1.1.1 Définition du couplage photo-élastique

La vibration mécanique de la matière résulte des oscillations individuelles couplées de chacun des atomes qui la composent. Considérant un ensemble fini d'atomes, possédant chacun trois degrés de liberté, il existe un nombre fini de modes de vibration élémentaire, appelée phonon, définis par une quantité discrète de nombres d'onde $\mathbf{k}$. Si ces derniers forment, au regard de la mécanique des milieux continus, un continuum, il est en revanche nécessaire ici de considérer des sommes discrètes.

Au sein de la matière, l'absorption de l'impulsion optique modifie les distributions des électrons et des phonons, pour un vecteur d'onde $\mathbf{k}$, respectivement des quantités $\delta n_{\mathbf{k}}^e$ et $\delta n_{\mathbf{k}}^l$. Ces variations déforment la structure du réseau par l'intermédiaire des forces inter-atomiques à l'oeuvre dans le cristal. La contrainte ainsi produite peut ensuite s'exprimer [43] :

$$\sigma_{ij} = \sum_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}^e \frac{\partial E_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}} + \sum_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}^l \hbar \frac{\partial \omega_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}} \quad (1.1)$$

avec $E_{\mathbf{k}}$ l'énergie d'un électron, et η_{ij} les composantes du tenseur de déformation élastique. La constante de Planck $\hbar$ définit la quantité discrète d'énergie $\hbar \omega_{\mathbf{k}}$ que le rayonnement peut échanger avec la matière à la fréquence $\omega_{\mathbf{k}}$ d'un phonon de vecteur d'onde $\mathbf{k}$. Dans les métaux, les constantes de Grüneisen, définies de manière scalaire dans la littérature, sont introduites ici sous leurs formes tensorielles $^{(2)}\overline{\gamma}^e$ et $^{(2)}\overline{\gamma}^l$ pour fournir une description tridimensionnelle des effets électroniques :

$$\begin{aligned} \gamma_{ij}^e &= -\frac{1}{E_{\mathbf{k}}} \frac{\partial E_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}} \\ \gamma_{ij}^l &= -\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}} \frac{\partial \omega_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}} \end{aligned} \quad (1.2)$$

L'expression (1.1) est alors réécrite [45] :

$$\sigma_{ij} = - \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{ij}^e E_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}^e - \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{ij}^l \hbar \omega_{\mathbf{k}} \delta n_{\mathbf{k}}^l \quad (1.3)$$

En supposant que le système reste à l'équilibre thermodynamique, les électrons et les phonons peuvent être décrits respectivement par les distributions de Fermi-Dirac et de Bose-Einstein. Il

est à noter que cette hypothèse pourrait ne pas être vérifiée aux temps courts [52], et que la propagation balistique est exclue de ce modèle. En introduisant le tenseur de dilatation $^{(2)}\bar{\lambda}$ de la façon suivante :

$$^{(2)}\bar{\lambda} = ^{(4)}\bar{C} : ^{(2)}\bar{\alpha} \quad (1.4)$$

avec $^{(4)}\bar{C}$ et $^{(2)}\bar{\alpha}$ les tenseurs d'élasticité et de rigidité-dilatation [53], l'équation (1.3) s'écrit :

$$\sigma_{ij} = -\gamma_{ij}^e C_e T^e - \gamma_{ij}^l C_l T^l = -\gamma_{ij}^e C_e T^e - \lambda_{ij} T^l \quad (1.5)$$

où C_e et C_l sont respectivement les capacités calorifiques des électrons et du réseau. Il apparaît dans ce formalisme que les températures T^e et T^l des électrons et du réseau sont représentatives de leur distributions respectives.

Afin d'obtenir une solution analytique, il est nécessaire d'assurer la linéarité, et par conséquent de permettre la convolution de la réponse impulsionnelle du système avec la forme spatio-temporelle de la source. A cette fin, C_e est supposée indépendante de la température. L'équation 1.5 fournit alors le terme source de l'équation du mouvement :

$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} - \nabla \cdot \left(^{(4)}\bar{C} \nabla \mathbf{u} \right) = -^{(2)}\bar{\lambda} \nabla T^l - ^{(2)}\bar{\gamma}^e C_e \nabla T^e \quad (1.6)$$

où $\mathbf{u}$ est le vecteur déplacement. Le tenseur d'élasticité $^{(4)}\bar{C} = (1 + j\omega\xi)^{(4)}\bar{C}^*$ est complexe pour décrire l'atténuation acoustique et sa partie imaginaire dépend linéairement de la fréquence ω [54].

Le premier terme du membre de droite de l'équation (1.6), déjà présent dans les modèles de diffusion de type Fourier, correspond à l'influence de la température du réseau sur la génération thermo-élastique. Le deuxième terme est la contribution de la dynamique rapide des électrons, responsable des phénomènes observés aux temps courts [55]. Ainsi, afin de déterminer le champ de déplacement acoustique, il est nécessaire de décrire simultanément l'évolution des températures des électrons et du réseau.

1.1.2 Description de l'évolution thermique par un modèle à deux températures

Le réseau et les électrons sont ainsi décrits comme deux systèmes distincts en pseudo-équilibre, définis par deux températures différentes T^l et T^e , dont l'évolution est régie par deux équations paraboliques de diffusion couplées [43]. Comme la capacité calorifique électronique C_e est beaucoup plus faible que celle du réseau C_l , la température maximale atteinte par les électrons est bien supérieure à celle du réseau. En effet, puisque l'énergie volumique de chacune de ces deux particules élémentaires est conservée, alors $C_e \delta T^e = C_l \delta T^l$ [56]. La variation de température du réseau δT^l est donc de faible amplitude comparée à celle des électrons δT^e [57]. Par conséquent, la diffusion thermique des phonons est négligée, et le système d'équations linéaires suivant est ainsi obtenu :

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T^e}{\partial t} &= \nabla \cdot \left(^{(2)}\bar{\kappa}_e \nabla T^e \right) - g(T^e - T^l) + Q(\mathbf{x}, t) \\ C_l \frac{\partial T^l}{\partial t} &= g(T^e - T^l) \end{aligned} \quad (1.7)$$

avec $^{(2)}\bar{\kappa}_e$ le tenseur de conductivité thermique électronique, et $Q(\mathbf{x}, t)$ le terme source correspondant à l'absorption de la radiation électromagnétique par les électrons. Puisque la température du réseau varie peu, la dépendance en température de la constante de couplage g et de C_l est négligée.

Les électrons absorbent l'énergie transportée par les photons de façon quasi-instantanée au regard de la propagation élastique. Les fréquences acoustiques générées par cette expansion électronique n'ont donc de limite que celle imposée par la durée de l'impulsion laser. Puis les électrons chauds diffusent dans la direction $i = 1, 2$ sur une distance $x_i^e = \sqrt{\kappa_i/g}$ avec une diffusivité accrue. Ce faisant, ils cèdent leur surplus d'énergie au réseau en un temps caractéristique $\tau_e = C_e/g$ au travers de collisions avec les phonons. Ces derniers absorbent l'énergie des électrons en un temps caractéristique $\tau_r = C_l/g$. Ce temps de montée de la température du réseau limite la gamme des fréquences générées par l'expansion macroscopique de la source. Suit alors une diffusion thermique du réseau lorsque l'équilibre thermodynamique entre les électrons et les phonons est atteint.

L'hypothèse conduisant à considérer une capacité calorifique électronique C_e constante, qui pourrait affecter les résultats aux temps courts, a une influence négligeable sur les échos acoustiques, puisque la profondeur de diffusion électronique $\sqrt{\kappa_1/g}$ est indépendante de C_e [49]. En outre, dans le chapitre 3, il sera démontré que C_e n'a d'influence que sur les fréquences les plus hautes, supérieures à celles composant les échos acoustiques.

Pour des températures supérieures à la température de Debye, il semble raisonnable de supposer que les composantes du tenseur $^{(2)}\bar{\kappa}_e$ sont proportionnelles au rapport T^e/T^l [44]. Afin d'obtenir une solution semi-analytique, cette dépendance en température est négligée et $^{(2)}\bar{\kappa}_e$ est pris égal à la valeur macroscopique $^{(2)}\bar{\kappa}$ du métal considéré. Cette hypothèse conduit à une sous-estimation de la largeur temporelle des échos [49]. Le but de ce modèle est de représenter simplement par une solution analytique les phénomènes thermiques observés expérimentalement, et les conséquences de ces hypothèses seront discutées dans le chapitre 2.

Lorsque la constante de couplage g devient très grande, c'est-à-dire $g \rightarrow +\infty$, le transfert de l'énergie des électrons vers le réseau se fait à une vitesse infinie. L'équilibre macroscopique ainsi atteint instantanément conduit à une évolution de la température régie par une équation de diffusion classique de type Fourier :

$$C_l \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla \cdot (^{(2)}\bar{\kappa} \nabla T) = Q(\mathbf{x}, t) \quad (1.8)$$

Cette équation est utilisée dans les matériaux où les phénomènes microscopiques peuvent être négligés, ou pour des développements asymptotiques des équations (1.7).

Maintenant que les équations (1.6) et (1.7), décrivant les champs de déplacement et de température, ont été explicitées, leurs solutions analytiques peuvent être exprimées. Il faut préalablement définir un système de coordonnées adapté à la géométrie étudiée, et des conditions limites représentatives de la physique du problème.

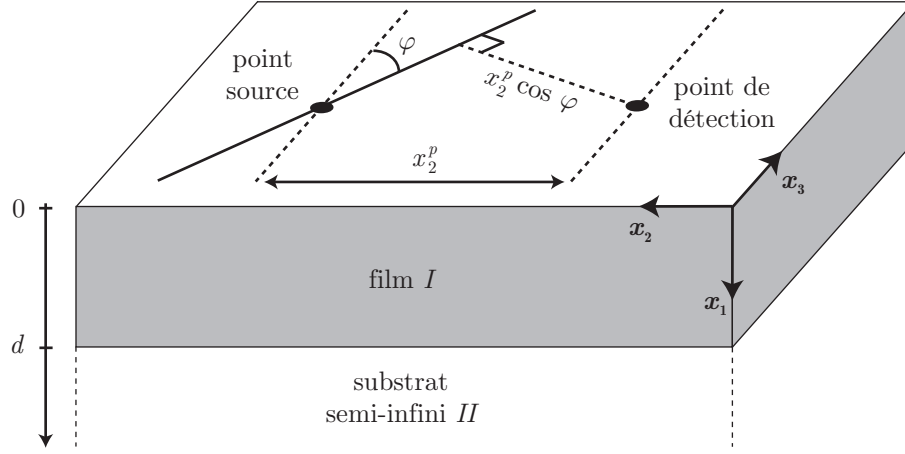


FIG. 1.1 – Position du point source et du point de détection, distants de x_2^p sur la surface du film d'épaisseur d . Une source linéique virtuelle faisant un angle φ avec la direction de $\mathbf{x}_3$, utilisée pour les calculs, est représentée.

1.2 Définition de la géométrie de la source laser dans l'espace des transformées

Dans un système de coordonnées cartésiennes $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$, un film métallique (milieu I) dont l'épaisseur est suivant la direction du vecteur $\mathbf{x}_1$, déposé sur un substrat semi-infini (milieu II), est considéré, comme indiqué sur la figure 1.1. L'évolution spatio-temporelle du déplacement normal u_1 , en un point de la surface situé en (x_0, x_2^p, x_3^p) , est obtenu par la triple transformée de Fourier inverse :

$$u_1(x_0, x_2^p, x_3^p, t) = (2\pi)^{-3} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{u}_1(x_0, k_2^r, k_3^r, \omega) e^{-j(k_2^r x_2^p + k_3^r x_3^p - \omega t)} dk_2^r dk_3^r d\omega \quad (1.9)$$

où (k_2^r, k_3^r, ω) est l'espace dual de (x_2, x_3, t) . En se restreignant aux milieux isotropes transverses² dans le plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$, l'axisymétrie par rapport à $\mathbf{x}_1$ des propriétés physiques permet de réduire la dépendance de u_1 en (x_2, x_3) à une seule variable. Dès lors, pour simplifier la transformation, $x_3^p = 0$ est imposé. Alors, l'utilisation des coordonnées cylindriques (k_2, φ) , définies par $k_2^r = k_2 \cos \varphi$ et $k_3^r = k_2 \sin \varphi$, conduit à :

$$u_1(x_0, x_2^p, t) = (2\pi)^{-3} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} \int_0^{2\pi} \tilde{u}_1(x_0, k_2, \omega) e^{-j(k_2 x_2^p \cos \varphi - \omega t)} k_2 d\varphi dk_2 d\omega \quad (1.10)$$

où le jacobien k_2 de la transformation apparaît. La fonction $\tilde{u}_1$ est alors identifiée comme étant le spectre de la réponse à une source linéique [28], dont l'orientation fait un angle φ avec la direction de $\mathbf{x}_3$. Ainsi que l'indique la figure 1.1, le déphasage $x_2^p \cos \varphi$ représente la distance entre la source linéique et le point de détection dans le repère cylindrique. L'équation (1.10) est donc équivalente à la somme continue des spectres $\tilde{u}_1(x_0, k_2, \omega)$ des réponses à des sources linéiques avec différentes orientations φ sur la surface de l'échantillon.

²Les propriétés des matériaux isotropes transverses sont constantes dans n'importe quel plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$. En revanche, elles varient avec la direction $\mathbf{x}_1$. Ainsi $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$ définit un plan principal.

Etant donnée l'hypothèse d'isotropie transverse, il n'y a pas de dépendance de $\tilde{u}_1$ en φ , et la fonction de Bessel J_0 de première espèce d'ordre zéro [58] :

$$J_0(x) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{jx \cos \varphi} d\varphi \quad (1.11)$$

est identifiée dans l'équation (1.10) qui s'écrit ensuite de la manière suivante [59] :

$$u_1(x_0, x_2^p, t) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} \tilde{u}_1(x_0, k_2, \omega) J_0(-k_2 x_2^p) k_2 dk_2 e^{j\omega t} d\omega \quad (1.12)$$

Il s'agit d'une transformée de Fourier en ω et de Hankel [60] en k_2 . Le même raisonnement peut être appliqué aux autres composantes du déplacement, en faisant apparaître d'autres fonctions de Bessel. Un traitement plus complet et détaillé de cette transformation est exposé par M. Perton [28].

Ainsi, le déplacement de la surface $\mathbf{u}(x_0, x_2^p, t)$, généré par une source ponctuelle distante de x_2^p , peut être exprimé comme la transformée de Hankel du spectre de Fourier $\tilde{\mathbf{u}}(x_0, k_2, \omega)$ de la réponse à une source linéique. Par conséquent, seul le spectre $\tilde{\mathbf{u}}(x_1, k_2, \omega)$ sera considéré par la suite.

1.3 Expression de la source thermique

Puisque les propriétés physiques de la structure ne dépendent pas de φ sous l'hypothèse d'isotropie transverse, il n'est nécessaire que de calculer le spectre $\tilde{\mathbf{u}}(x_1, k_2, \omega)$ de la réponse à une unique source linéique de direction quelconque. Par conséquent, l'excitation thermique est modélisée par l'absorption de la radiation du faisceau laser pompe incident, focalisé sur la surface suivant une ligne orientée dans la direction $\mathbf{x}_3$. Etant donnée la symétrie de cette configuration, aucune quantité ne dépend de la variable x_3 .

Le faisceau laser se propage en incidence normale dans la direction $\mathbf{x}_1$ uniquement. Ainsi, le terme source impulsif du système (1.7) est exprimé à partir du vecteur de Poynting [61] dans le milieu I pour une excitation de type Dirac en temps et en espace :

$$Q_I^\delta(x_1, x_2, t) = \gamma_I I_0 (1 - R_{0/I}) \delta(x_2) \delta(t) e^{-\gamma_I x_1} \quad (1.13)$$

avec γ_I^{-1} la profondeur de pénétration optique dans le milieu I , I_0 l'énergie incidente par unité de longueur, et $R_{0/I}$ le coefficient de réflexion optique en intensité à l'interface air/milieu I d'une onde se propageant dans l'air. Les fonctions δ représentent la distribution de Dirac. Il s'agit alors ici d'une source ponctuelle.

L'indice optique $n = n' + jn''$ des matériaux considérés est complexe. Sa partie réelle n' définit la célérité de l'onde électromagnétique, et sa partie imaginaire n'' conditionne l'absorption. Ainsi, la profondeur de pénétration optique s'exprime de la façon suivante :

$$\gamma_I^{-1} = 2q_0 n'' \quad (1.14)$$

où q_0 est le nombre d'onde optique dans le vide. Lorsque la pénétration optique est plus grande que la longueur d'onde acoustique, le matériau est considéré transparent. Dans le cas contraire, il est opaque.

La distribution spatiale de la ligne source suivant x_2 est décrite par une gaussienne G_b de largeur à mi-hauteur (FWHM³) définie par le paramètre χ_b . De même, la forme temporelle de l'impulsion est modélisée par une gaussienne f de FWHM τ . Ces fonctions sont normalisées de façon à ce que l'énergie de l'impulsion pompe soit conservée :

$$G_b(x_2) = \frac{1}{\chi_b} \sqrt{\frac{4\ln(2)}{\pi}} e^{-4\ln(2)x_2^2/\chi_b^2} \quad (1.15)$$

$$f(t) = \frac{1}{\tau} \sqrt{\frac{4\ln(2)}{\pi}} e^{-4\ln(2)t^2/\tau^2} \quad (1.16)$$

La divergence du faisceau pompe sur l'épaisseur d du film est négligée. Cela permet de considérer que la largeur de la gaussienne G_b n'évolue pas au cours de la propagation optique dans le film. En outre, une justification détaillée de la forme de f sera décrite dans le paragraphe 2.2.2 de façon à préciser la signification de la durée d'impulsion.

La linéarité des équations (1.6) et (1.7) autorise alors la convolution du terme source impulsionnel Q_I^δ avec les fonctions G_b et f , symbolisée par l'opérateur $*$, pour prendre en compte les formes spatiale et temporelle de la source optique. Le terme source Q_I du système (1.7) est alors obtenu :

$$Q_I(x_1, x_2, t) = Q_I^\delta(x_1, x_2, t) * G_b(x_2) * f(t) \quad (1.17)$$

La source Q_I possède dès lors une extension latérale non nulle ; elle sera alors qualifiée de quasi-punctuelle. La profondeur de pénétration optique dans le milieu I est supposée être plus faible que son épaisseur, c'est-à-dire $\gamma_I d \geq 1$. Par conséquent, aucune radiation électromagnétique n'atteint le milieu II , et il n'y a pas de terme source pour l'équation régissant la température dans le substrat. En outre, la distance de diffusion électronique dans le milieu I est également supposée plus faible que son épaisseur. Il n'y a donc pas de flux électronique à travers l'interface film/substrat. Alors l'évolution de la température T_{II} dans le milieu II est régie par l'équation de diffusion parabolique (1.8) sans source, ne prenant pas en compte les phénomènes microscopiques.

Dès lors, le terme source de l'équation (1.7) est complètement déterminé, et les champs de température des électrons et du réseau vont maintenant être exprimés analytiquement, dans le domaine de Fourier.

1.4 Détermination du champ de température

L'évolution de la température dans le film est décrite par le modèle à deux températures. La profondeur de diffusion des électrons $x_1^e = \sqrt{\kappa_1/g}$ est de l'ordre de la centaine de nanomètres pour les métaux où ces phénomènes microscopiques prédominent, tels que l'or [62]. Ainsi, celle-ci est dorénavant supposée être inférieure à l'épaisseur d . La température dans le substrat est donc simplement décrite par l'équation de diffusion de la chaleur macroscopique de type Fourier (1.8).

La divergence du flux de chaleur électronique $\nabla \cdot ({}^{(2)}\bar{\kappa} \nabla T)$ utilisée dans les équations (1.7) et (1.8) traduit le phénomène de diffusion thermique. Les équations (1.7) et (1.8) sont alors

³Full Width at Half Maximum.

du second ordre en espace, et du premier ordre en temps. Afin de réduire le nombre de variables différentielles, et ainsi obtenir une expression semi-analytique du spectre de la réponse en température, une double transformée de Fourier en temps et en espace est appliquée.

Dès lors, les convolutions introduites dans l'équation (1.17) deviennent des multiplications. Etant donné que les équations (1.7) sont linéaires, le spectre de la réponse impulsionnelle, aussi appelé noyau de Green, peut être déterminé indépendamment de la forme de la source. La multiplication par les spectres des formes spatiale et temporelle G_b et f de l'impulsion laser source est ensuite effectuée à la fin du calcul. Puisque l'équation (1.6) est également linéaire, le même raisonnement sera appliqué pour la détermination du spectre du champ de déplacement.

La solution des équations ainsi formulées est recherchée classiquement comme la somme d'une solution particulière et d'une solution homogène de l'équation sans source. L'amplitude de cette dernière est enfin déterminée en appliquant des conditions limites thermiques. Un système matriciel est alors obtenu, et son inversion conduit à l'expression du champ de température.

1.4.1 Décomposition spectrale de la solution

Une double transformée de Fourier est appliquée dans l'espace (x_2, t) . Cette opération mathématique sera notée à l'aide du graphème tilde placé au dessus de la lettre, et l'espace dual associé sera désigné par (k_2, ω) . Le système (1.7) est ainsi réécrit dans le milieu I :

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}_I^e}{\partial x_1^2} - \frac{1}{\kappa_1^I} [g_I - \omega^2 C_e^I + k_2^2 \kappa_2^I] \tilde{T}_I^e + g_I \tilde{T}_I^l = -\frac{\tilde{Q}_I}{\kappa_1^I} \quad (1.18)$$

$$\tilde{T}_I^l = \frac{g_I}{g_I + j\omega C_l^I} \tilde{T}_I^e \quad (1.19)$$

Le fait de négliger la diffusion du réseau permet d'exprimer linéairement $\tilde{T}_I^l$ en fonction de $\tilde{T}_I^e$ grâce à l'équation (1.19). Alors, en introduisant cette dernière dans l'équation (1.18), le système (1.7) devient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \tilde{T}_I^e}{\partial x_1^2} - \Gamma_I^2 \tilde{T}_I^e &= -\frac{\tilde{Q}_I}{\kappa_1^I} \\ \tilde{T}_I^l &= \frac{g_I}{g_I + j\omega C_l^I} \tilde{T}_I^e \end{aligned} \quad (1.20)$$

avec

$$\Gamma_I(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[\frac{j\omega g_I (C_e^I + C_l^I) - \omega^2 C_e^I C_l^I}{g_I + j\omega C_l^I} + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \quad (1.21)$$

Ainsi l'expression de la température électronique peut être déterminée indépendamment de $\tilde{T}_I^l$, uniquement à partir de la première équation du système (1.20).

Dans le milieu II , l'évolution de la température est régie par une équation de diffusion parabolique (1.8) donc l'écriture dans l'espace dual est :

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}_{II}}{\partial x_1^2} - \Gamma_{II}^2 \tilde{T}_{II} = 0 \quad (1.22)$$

avec :

$$\Gamma_{II}(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^{II}} [j\omega C_l^{II} + k_2^2 \kappa_2^{II}] \right\}^{1/2} \quad (1.23)$$

Une expression similaire pour Γ_{II} peut être déduite de l'équation (1.21) en imposant $g \rightarrow +\infty$ et en utilisant le fait que $C_e^I \ll C_l^I$.

La température électronique est déterminée à l'aide de la première équation du système (1.20) seule. Elle est recherchée comme la somme d'une solution homogène et d'une solution particulière, supposée être de la même forme que la source (1.17) :

$$\tilde{T}_I^e(x_1, k_2, \omega) = T_I^{h-}(k_2, \omega)e^{-\Gamma_I x_1} + T_I^{h+}(k_2, \omega)e^{\Gamma_I x_1} + T_I^p(k_2, \omega)e^{-\gamma_I x_1} \quad (1.24)$$

où Γ_I est donné par l'équation (1.21) pour le milieu I . L'amplitude T_I^p de la solution particulière est obtenue en injectant $T_I^p e^{-\gamma_I x_1}$ dans l'équation (1.20) :

$$T_I^p = \frac{\tilde{Q}_I}{\kappa_1^I(\Gamma_I^2 - \gamma_I^2)} \quad (1.25)$$

Afin d'établir les équations de continuité à l'interface film/substrat, la température dans le substrat semi-infini $T_{II}(x_1, k_2, \omega)$ doit être exprimée. Son évolution est décrite par l'équation parabolique de la chaleur sans source (1.22). Sa solution s'écrit alors :

$$\tilde{T}_{II}(x_1, k_2, \omega) = T_{II}^{h-}(k_2, \omega)e^{-\Gamma_{II}(x_1-d)} \quad (1.26)$$

Le terme $T_{II}^{h+}(k_2, \omega)e^{\Gamma_{II}(x_1-d)}$ n'est pas considéré dans l'équation ci-dessus car les conditions limites imposent que $\tilde{T}_{II}(x_1 = +\infty) = 0$. Puisqu'il a été supposé que $\gamma_I^{-1} < d$, il n'y a pas de terme source dans l'équation (1.22). Par conséquent, l'amplitude de la solution particulière dans le milieu II est nulle.

Les amplitudes des solutions homogènes dans les milieux I et II vont maintenant être exprimées à partir des conditions limites à la surface libre et à l'interface entre les deux matériaux étudiés.

1.4.2 Conditions limites thermiques

Les équations (1.24) et (1.26) font intervenir trois inconnues d'amplitude en température T_I^{h-} , T_I^{h+} et T_{II}^{h-} . L'énonciation de trois conditions limites permet donc de les déterminer. La première est obtenue en considérant que la diffusivité dans l'air est très faible par rapport à celle dans les métaux. Cela conduit à supposer que le flux de température à la surface libre est adiabatique :

$$\left. \frac{\partial \tilde{T}_I^l}{\partial x_1} \right|_{x_1=0} = 0 \quad (1.27)$$

Etant donnée la structure semi-couplée des équations (1.7), le spectre de la température électronique est proportionnel à celui de la température du réseau, comme indiqué par l'équation (1.19). Ainsi, que la condition ci-dessus porte sur $\tilde{T}_I^e$ ou $\tilde{T}_I^l$ est équivalent car $\partial \tilde{T}_I^l / \partial x_1 \propto \partial \tilde{T}_I^e / \partial x_1$.

De plus, puisque l'épaisseur d du film est supposée supérieure à la profondeur de diffusion électronique x_e^e , il n'y a pas de flux de chaleur électronique traversant l'interface film/substrat. En outre, la diffusion électronique n'est pas prise en compte dans le substrat. Par conséquent, la continuité des flux thermiques et des températures du réseau en $x_1 = d$ fournissent les équations

aux limites nécessaires à la résolution du système :

$$\begin{aligned} \kappa_1^I \frac{\partial \tilde{T}_I^l}{\partial x_1} \Big|_{x_1=d} &= \kappa_1^{II} \frac{\partial \tilde{T}_{II}}{\partial x_1} \Big|_{x_1=d} \\ \tilde{T}_I^l \Big|_{x_1=d} &= \tilde{T}_{II} \Big|_{x_1=d} \end{aligned} \quad (1.28)$$

Ces trois équations aux limites sont mises sous forme matricielle afin de permettre une résolution plus aisée :

$$\begin{bmatrix} -\Gamma_I & \Gamma_I & 0 \\ e^{-\Gamma_I d} & e^{\Gamma_I d} & -1/M_I \\ -\kappa_1^I \Gamma_I e^{-\Gamma_I d} & \kappa_1^I \Gamma_I e^{\Gamma_I d} & \kappa_1^{II} \Gamma_{II}/M_I \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} T_I^{h-} \\ T_I^{h+} \\ T_{II}^{h-} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \gamma_I \\ -e^{-\gamma_I d} \\ \kappa_1^I \Gamma_I e^{-\gamma_I d} \end{Bmatrix} T_I^p \quad (1.29)$$

où $M_I = g_I/(g_I + j\omega C_I^I)$ correspond au rapport $\tilde{T}_I^l/\tilde{T}_I^e$ dans le milieu I . L'inversion de la matrice du système permet d'accéder aux amplitudes des solutions homogènes pour les températures dans les milieux I et II .

1.5 Détermination du champ de déplacement

En suivant la même méthodologie que pour la température, l'équation (1.6) est écrite dans l'espace dual (k_2, ω) , et un système différentiel du second ordre est ainsi obtenu. La solution est ensuite recherchée comme la somme d'une solution homogène de l'équation sans source et d'une solution particulière. Les détails de ces calculs, bien que relatifs à des termes sources différents, peuvent être trouvés dans les mémoires de thèse de H. Méri [32] et M. Perton [28], et seront donc rapidement rappelés.

1.5.1 Décomposition de la solution en somme d'ondes planes monochromatiques

Il a été démontré au paragraphe 1.2 que la réponse à une source ponctuelle pouvait être calculée à partir de la transformée de Fourier $\tilde{\mathbf{u}}(x_1, k_2, \omega)$ de la réponse à une source linéique $\mathbf{u}(x_1, x_2, t)$. L'écriture de cette dernière est alors la suivante :

$$\mathbf{u}(x_1, x_2, t) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\mathbf{u}}(x_1, k_2, \omega) e^{j(k_2 x_2 + \omega t)} dk_2 d\omega \quad (1.30)$$

Le spectre $\tilde{\mathbf{u}}$ du déplacement solution de l'équation (1.6) est ensuite exprimé comme la somme $\tilde{\mathbf{u}} = \tilde{\mathbf{u}}^h + \tilde{\mathbf{u}}^p$ d'une solution homogène $\tilde{\mathbf{u}}^h$ et d'une solution particulière $\tilde{\mathbf{u}}^p$.

Le spectre de la solution homogène $\tilde{\mathbf{u}}^h$ s'exprime comme $\tilde{\mathbf{u}}^h(x_1, k_2, \omega) = \mathbf{U}(k_2, \omega) e^{j k_1 x_1}$, où k_1 définit alors la projection du vecteur d'onde $\mathbf{k}$ sur la direction $\mathbf{x}_1$, en supposant⁴ que la variable x_1 puisse être séparée de k_2 et ω . Par conséquent, le déplacement homogène $\mathbf{u}^h$ s'écrit à partir de l'équation (1.30) :

$$\mathbf{u}^h(x_1, x_2, t) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{U}(k_2, \omega) e^{j(k_1 x_1 + k_2 x_2 + \omega t)} dk_2 d\omega \quad (1.31)$$

⁴C'est cette hypothèse qui permet une décomposition en ondes planes. Il sera exposé dans la partie suivante que ce n'est plus possible dans le cas d'une équation différentielle à coefficients non constants.

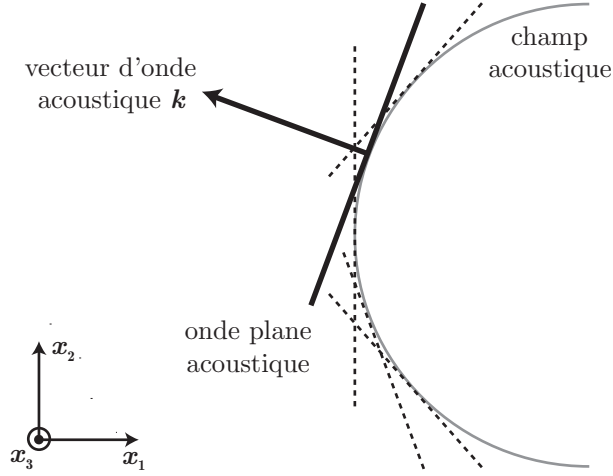


FIG. 1.2 – Le champ acoustique généré par une source linéique orientée suivant x_3 est représenté en gris. Il est décomposé en une somme d'ondes planes monochromatiques se propageant dans les directions définies par les vecteurs d'onde $\mathbf{k}$.

Apparaît alors que $\mathbf{u}^h(x_1, x_2, t)$ s'exprime comme une somme continue d'ondes planes monochromatiques se propageant dans les directions définies par les vecteurs d'onde $\mathbf{k} = k_1 x_1 + k_2 x_2$, et dont l'amplitude est définie par $\mathbf{U}(k_2, \omega)$. Cette remarque fondamentale, illustrée sur la figure 1.2, permet de donner un sens physique au noyau de la transformée de Fourier. Elle sera utilisée dans la deuxième partie de ce mémoire pour analyser les phénomènes de diffraction optique par les composantes propagatives de la solution de l'équation d'onde (1.6).

1.5.2 Forme générale de la solution homogène

Rechercher le spectre de la solution homogène $\tilde{\mathbf{u}}^h$ dans le milieu $m = I, II$ sous la forme $\tilde{\mathbf{u}}_m^h(x_1, k_2, \omega) = \mathbf{U}_m(k_2, \omega) e^{jk_1^m x_1}$ permet d'écrire l'équation (1.6) sans source de la façon suivante :

$$[M_m(k_1^m, k_2, \omega)] \mathbf{U}_m(k_2, \omega) = 0 \quad (1.32)$$

avec

$$[M_m] = \begin{bmatrix} \rho_m \omega^2 - (k_1^m)^2 C_{11}^m - k_2^2 C_{66}^m & -k_1^m k_2 (C_{12}^m + C_{66}^m) \\ -k_1^m k_2 (C_{12}^m + C_{66}^m) & \rho_m \omega^2 - (k_1^m)^2 C_{66}^m - k_2^2 C_{22}^m \end{bmatrix} \quad (1.33)$$

$$\mathbf{U}_m = \begin{Bmatrix} U_{m1} \\ U_{m2} \end{Bmatrix} \quad (1.34)$$

où U_{mi} définit l'amplitude de la solution homogène dans le milieu m , projetée sur la direction x_i . Il apparaît alors que $\mathbf{U}_m$ est un vecteur du noyau de l'application linéaire $\mathcal{L}_m$ associée à la matrice $[M_m]$. Ce dernier est non vide si et seulement si $\det M_m = 0$, puisqu'alors la matrice n'est pas inversible. Cette condition fournit l'équation de dispersion acoustique bicarrée en k_1^m . Ses quatre solutions sont $\pm^n k_1^m$, où les valeurs de l'indice $n = L, T$ dénotent respectivement les modes longitudinal et transverse. Puisque la matrice est singulière, le noyau de $\mathcal{L}_m$ est de dimension un, et chaque nombre d'onde défini par $\pm^n k_1^m$ est associé à un seul vecteur du noyau

$U_m^{n\pm}$. La solution homogène se décompose alors comme la somme de ces quatre contributions dans le milieu I :

$$\tilde{u}_I^h = \sum_{n=L,T} A_n^- U_I^{n-} e^{-j^n k_1^I x_1} + A_n^+ U_I^{n+} e^{j^n k_1^I x_1} \quad (1.35)$$

Le milieu II est supposé semi-infini, ce qui autorise l'ajout d'une condition de Dirichlet $u_{II}|_{x_1=+\infty} = 0$. Dès lors, la solution homogène dans le milieu II devient :

$$\tilde{u}_{II}^h = \sum_{n=L,T} B_n^- U_{II}^{n-} e^{-j^n k_1^{II}(x_1-d)} \quad (1.36)$$

Etant donnée la structure de la matrice $[M]$, la convention suivante est choisie :

$$\begin{aligned} U_{m1}^{n+} &= U_{m1}^{n-} = U_{m1}^n \\ U_{m2}^{n+} &= -U_{m2}^{n-} = U_{m2}^n \end{aligned} \quad (1.37)$$

Les amplitudes A_n^- , A_n^+ et B_n^- seront déterminées par la suite en imposant des conditions limites. Celles-ci s'appliqueront sur la solution totale de l'équation (1.6), somme des solutions homogène $\tilde{u}^h$ et particulière $\tilde{u}^p$.

1.5.3 Expression de la solution totale

A présent que la solution homogène a été décrite, l'écriture de la solution totale nécessite l'expression de la solution particulière. Cette dernière est recherchée comme étant de la même forme que les termes sources :

$$\begin{aligned} \tilde{u}_I^p &= U_I^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I x_1} + U_I^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I x_1} + U_I^{p\gamma} e^{-\gamma_I x_1} \\ \tilde{u}_{II}^p &= U_{II}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_{II}(x_1-d)} \end{aligned} \quad (1.38)$$

avec $U_m^{p\Gamma-}$ et $U_I^{p\Gamma+}$ les amplitudes de la solution particulière dues à la contrainte thermique, et $U_I^{p\gamma}$ celle due à l'absorption de la radiation dans le milieu I . Elles sont déterminées en substituant chacun des termes de l'équation (1.38) dans l'équation (1.6), et en identifiant les termes exponentiels. La solution totale est alors obtenue :

$$\begin{aligned} \tilde{u}_I &= \sum_{n=L,T} A_n^- U_I^{n-} e^{-j^n k_1^I x_1} + A_n^+ U_I^{n+} e^{j^n k_1^I x_1} + U_I^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I x_1} + U_I^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I x_1} + U_I^{p\gamma} e^{-\gamma_I x_1} \\ \tilde{u}_{II} &= \sum_{n=L,T} B_n^- U_{II}^{n-} e^{-j^n k_1^{II}(x_1-d)} + U_{II}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_{II}(x_1-d)} \end{aligned} \quad (1.39)$$

avec

$$\begin{aligned} U_I^{p\Gamma-} &= [M_I^p(\Gamma_I)]^{-1} \mathbf{V}_I^p(\Gamma_I) T_I^{h-} \\ U_I^{p\Gamma+} &= [M_I^p(-\Gamma_I)]^{-1} \mathbf{V}_I^p(-\Gamma_I) T_I^{h+} \\ U_I^{p\gamma} &= [M_I^p(\gamma_I)]^{-1} \mathbf{V}_I^p(\gamma_I) T_I^p \\ U_{II}^{p\Gamma-} &= [M_{II}^p(\Gamma_{II})]^{-1} \mathbf{V}_{II}^p(\Gamma_{II}) T_{II}^{h-} \end{aligned} \quad (1.40)$$

où la matrice $[M_m^p(y)]$ et le vecteur $\mathbf{V}_m^p(y)$ sont exprimés de la façon suivante en fonction du paramètre y :

$$[M_m^p(y)] = \begin{bmatrix} \rho_m \omega^2 - k_2^2 C_{66}^m + y^2 C_{11}^m & j k_2 (C_{12}^m + C_{66}^m) y \\ j k_2 (C_{12}^m + C_{66}^m) y & \rho_m \omega^2 - k_2^2 C_{66}^m + y^2 C_{66}^m \end{bmatrix} \quad (1.41)$$

$$\mathbf{V}_m^p(y) = \begin{Bmatrix} -\lambda_1^m y \\ -j k_2 \lambda_2^m \end{Bmatrix} \quad (1.42)$$

Il est à noter ici que seule la solution homogène participe à la détermination des échos acoustiques, la solution particulière décrivant uniquement la lente décroissance due à la diffusion thermique et à l'absorption de la radiation électromagnétique.

1.5.4 Conditions limites

De façon classique, les continuités des vecteurs contrainte et déplacement normaux à l'interface film/substrat, et l'annulation du vecteur contrainte normal à la surface libre permettent de résoudre complètement le système :

$$\begin{aligned} [\tilde{\sigma}^I] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=0} &= 0 \\ [\tilde{\sigma}^I] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=d} &= [\tilde{\sigma}^{II}] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=d} \\ \tilde{\mathbf{u}}_I|_{x_1=d} &= \tilde{\mathbf{u}}_{II}|_{x_1=d} \end{aligned} \quad (1.43)$$

Ces conditions limites fournissent les équations nécessaires à la détermination des amplitudes A_n^- , A_n^+ et B_n^- des solutions homogènes dans les milieux I et II . Elles sont écrites sous forme matricielle pour obtenir le système suivant, dont le détail est donné dans l'annexe A :

$$[\Lambda^h] \mathbf{X} = \mathbf{Y} \quad (1.44)$$

Il s'agit d'un système 6×6 où le vecteur $\mathbf{Y}$ contient les conditions limites associées aux solutions particulières. Le vecteur $\mathbf{X}$ regroupe les inconnues en amplitude A_n^- , A_n^+ et B_n^- du champ acoustique dans le film et dans le substrat. Cependant, la détermination du déplacement dans le substrat n'est pas nécessaire et, en manipulant la matrice du système, il est possible de se ramener à un unique système 4×4 . Finalement, ce dernier est inversé pour aboutir à la solution.

1.6 Conclusion

Le modèle à deux températures a été étendu au cas tridimensionnel pour décrire la génération photo-thermique par une source laser focalisée dans les métaux isotropes transverses. Les champs de température électronique et du réseau ont fourni le terme source de l'équation du mouvement. Celle-ci a été résolue analytiquement dans le domaine de Fourier, en adaptant le savoir accumulé au sein du laboratoire.

Les calculs sont simplifiés par la modélisation d'un substrat semi-infini, puisqu'il en résulte uniquement un système 4×4 à inverser. De façon à observer la diffraction acoustique, il est

nécessaire de considérer des épaisseurs de film de l'ordre de la centaine de nanomètres. Or, aux longueurs d'onde optiques utilisées, la profondeur de pénétration optique est inférieure. Il semble donc suffisant, si le film est un métal, de négliger le terme source dans le substrat.

De même, dans le cadre du modèle à deux températures, la distance de diffusion électronique est inférieure à l'épaisseur, et il est raisonnable de supposer un flux électronique nul à l'interface film/substrat. En revanche, pour traiter un film transparent déposé sur un transducteur métallique, il serait intéressant d'implémenter le modèle à deux températures dans le substrat également.

C'est la durée d'impulsion qui fixe la frontière entre le régime macroscopique et le régime microscopique. Son influence sur la réflectivité mesurée en acoustique picoseconde, et sur celle obtenue à partir des calculs présentés ici, sera analysée au chapitre suivant. L'existence d'un maximum de génération acoustique sera alors discutée en confrontant les approches théorique et expérimentale.

Chapitre 2

Influence de la durée de l'impulsion pompe sur la réflectivité 1D

La durée de l'impulsion optique source détermine le régime du couplage photo-thermique, et conditionne la nécessité de considérer les phénomènes microscopiques. Dès lors, l'objet de ce chapitre sera de faire varier continûment la largeur temporelle de l'impulsion dans une large gamme, et d'examiner l'évolution du signal mesuré lors des expériences d'acoustique picoseconde. Peu d'études existent sur le sujet [63], et la méthode proposée ici caractérisera le comportement du modèle à deux températures dans des films sub-micrométriques en fonction de la durée d'impulsion. En outre, étant donné le faible signal expérimental (de 10^{-4} à 10^{-6}), il est intéressant de pouvoir optimiser la durée d'impulsion de la pompe afin d'augmenter l'efficacité de la réponse élasto-optique.

Afin d'étudier l'influence de la durée d'impulsion sur le signal mesuré en acoustique picoseconde séparément des effets de diffraction, un cas unidimensionnel sera étudié dans ce chapitre. L'extension latérale de la source laser sera alors supposée grande devant l'épaisseur du film métallique. Seule la participation des ondes planes acoustiques se propageant normalement aux interfaces sera présente, et aucune diffraction acoustique n'est à attendre.

Un dispositif optique, inspiré par une partie d'un système couramment utilisée pour amplifier les impulsions [64], sera inclus dans un montage expérimental pompe-sonde. Sa conception, basée sur un réseau optique, permet de séparer spatialement les longueurs d'onde constituant l'impulsion. La durée de la source sera alors modifiée dans une gamme allant de 100 fs à 150 ps. Ce procédé, autorisant la variation de la durée d'impulsion, sera appliqué à des expériences d'acoustique picoseconde dans un film métallique mince. Alors, afin d'effectuer une comparaison avec les calculs théoriques, il est nécessaire d'introduire le processus de détection.

Le faisceau laser sonde pénètre au sein de la matière, et la variation de son intensité réfléchie est dictée par la variation de l'indice optique. Classiquement, celui-ci ne dépend que de la déformation acoustique dans le film [8]. Cependant, il a paru très tôt raisonnable d'introduire les phénomènes thermiques dans les modèles théoriques [46] pour décrire complètement les signaux expérimentaux. Dans le cadre de l'évaluation des propriétés thermiques uniquement, la dépendance au champ de température seule est parfois considérée. Son influence est alors décomposée en une contribution électronique et une contribution du réseau, à l'aide du modèle à deux tem-

pératures, résolu au moyen des différences finies [65, 66, 55]. L'influence simultanée des deux températures et de la déformation a été formalisée récemment [67, 68], mais la contribution de la température électronique n'a jamais été employée pour représenter les signaux expérimentaux.

La description microscopique du processus de diffusion thermique, présentée précédemment, permet de représenter la dynamique électronique rapide générée par l'absorption de l'énergie du laser. Ce phénomène est observé au pic de coïncidence, lorsque les impulsions pompe et sonde sont proches dans le temps [69]. De même, la diffusion électronique influence la forme temporelle des échos acoustiques [45]. En outre, l'évolution de la température à des temps plus longs, c'est-à-dire le fond thermique, est également prise en compte. Dans ce chapitre, les trois contributions des températures électronique et du réseau, ainsi que de la déformation, seront considérées simultanément de façon semi-analytique. Alors, avec l'implémentation du modèle à deux températures, les échos acoustiques, de même que le signal thermique complet incluant le pic de coïncidence, seront représentés à n'importe quelle échelle temporelle.

Après la description et la calibration du dispositif expérimental, des mesures interférométriques et réflectométriques, basées sur des techniques de détection différentes, seront présentées. Par conséquent, l'expression du changement de réflectivité, correspondant aux grandeurs appréciables, sera exposée brièvement, le détail des calculs et leur signification étant développés dans la seconde partie de ce mémoire. Les effets de la durée de l'impulsion pompe sur les formes d'ondes et sur le spectre des premiers échos seront discutés à partir d'une comparaison des résultats expérimentaux avec les développements théoriques. En outre, l'influence de la durée d'impulsion sur les effets électroniques rapides apparaissant aux temps courts, identifiés par l'approche microscopique, sera étudiée. À partir de ces observations, l'existence et les caractéristiques d'un maximum d'efficacité de la génération acoustique seront examinées.

2.1 Expression du changement de réflectivité

Le processus de génération a été complètement décrit au chapitre précédent. Une source laser très large par rapport à l'épaisseur du film est considérée, et les matériaux sont supposés isotropes transverses dans le plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$. Par conséquent, seul le déplacement normal $\mathbf{u}_m \cdot \mathbf{x}_1 = u_{m1}$, dû à l'onde longitudinale, est non nul. Les phénomènes thermiques et acoustiques résultants sont ensuite détectés par l'impulsion laser sonde. Lorsque le matériau est fortement absorbant, le calcul du déplacement de la surface libre suffit à représenter la détection interférométrique. Cependant, dès que l'on considère l'absorption optique du film, il est nécessaire de prendre en compte le fait que, dans la zone de pénétration optique, le faisceau laser sonde est sensible à la variation de l'indice optique, quelle qu'en soit la cause [46]. Une approche semi-analytique est ici proposée pour prendre en compte à la fois les contributions des températures électronique, du réseau et de la déformation au changement de réflectivité [67, 68]. Ainsi, la variation ε_I^s de la constante diélectrique est supposée dépendre de la fonction $A_I(x_1, \omega)$ dans le milieu I , laquelle peut représenter les températures électronique T_I^e ou du réseau T_I^l , ou la déformation η_{I1} engendrée par l'onde longitudinale :

$$\varepsilon_I^s(x_1, t) = 2n_I \frac{\partial n_I}{\partial A} A_I(x_1, t) \quad (2.1)$$

avec n_I l'indice optique dans le milieu I .

Le changement de réflectivité est alors calculé comme la somme de quatre termes, prenant en compte le déplacement de la surface libre $u_{I1}(0, t)$, la déformation en profondeur η_{I1} due à la propagation de l'onde élastique dans le film, et les températures électronique T_I^e et du réseau T_I^l :

$$\frac{r^s(t)}{r^h} = 2jq_0u_{I1}(0, t) + \int_0^d \left[\frac{\partial n_I}{\partial \eta_1} \eta_{I1}(x_1, t) + \frac{\partial n_I}{\partial T^l} T_I^l(x_1, t) + \frac{\partial n_I}{\partial T^e} T_I^e(x_1, t) \right] f_I^s(x_1) dx_1 \quad (2.2)$$

avec q_0 le nombre d'onde optique dans le vide, et r^h le coefficient de réflexion à la surface libre. La fonction f_I^s relie la variation de réflectivité r^s à une perturbation impulsionnelle localisée de la permittivité diélectrique ε_I^s . C'est donc une fonction de sensibilité qui décrit les interactions thermo-optique et élasto-optique, calculées dans la partie suivante. Les constantes élasto-optique $\partial n_I / \partial \eta_1$ et thermo-optiques $\partial n_I / \partial T^l$ et $\partial n_I / \partial T^e$ pondèrent les influences respectives de la déformation et des températures du réseau et des électrons. Considérant une faible variation de la température, leur dépendance par rapport à cette grandeur est négligée. Cette hypothèse n'est cependant pas justifiée pour décrire le pic de coïncidence, puisqu'alors l'amplitude de la variation de la température électronique est grande.

La déformation acoustique $\eta_{I1} = \partial u_{I1} / \partial x_1$ est calculée à partir du déplacement u_{I1} , donné par l'équation (1.39). Quant à eux, les champs thermiques électronique T_I^e et du réseau T_I^l sont calculés à l'aide du modèle à deux températures (1.7). Cependant, afin de représenter plus finement l'interface film/substrat, une résistance thermique est prise en compte. Une approche complète consisterait à introduire une couche intermédiaire entre le film et le substrat, appelée résistance de contact thermique [70]. Dans le cas d'une interface parfaite [71] considéré ici, celle-ci s'apparente à la résistance de Kapitza R_{th} [72]. Une discontinuité des champs de température du réseau à l'interface [73] est alors introduite dans les conditions limites (1.28) :

$$\begin{aligned} \kappa_1^I \frac{\partial \tilde{T}_I^l}{\partial x_1} \Big|_{x_1=d} &= \kappa_1^{II} \frac{\partial \tilde{T}_{II}}{\partial x_1} \Big|_{x_1=d} \\ \kappa_1^{II} \frac{\partial \tilde{T}_{II}}{\partial x_1} \Big|_{x_1=d} &= \frac{1}{R_{th}} \left(\tilde{T}_I^l \Big|_{x_1=d} - \tilde{T}_{II} \Big|_{x_1=d} \right) \end{aligned} \quad (2.3)$$

Pour $T_I^l < 30$ K, la résistance thermique est proportionnelle à l'inverse du cube de la température [74]. Cependant, pour des films dont l'épaisseur est plus grande que la profondeur de diffusion thermique $(\kappa_1^I t_c / C_I^I)^{1/2}$ pendant le temps caractéristique t_c , l'amplitude de la variation de la température à l'interface est faible. Dans ce cas, R_{th} est supposée constante [75]. A titre d'exemple, pour le tungstène, en un temps $t_c = 1$ ns, la profondeur de diffusion thermique est de 260 nm. La prise en compte de la résistance thermique confine une partie de l'énergie thermique dans le film. Puisque la chaleur ne peut pas être totalement absorbée par le substrat, le processus de diffusion est ralenti.

2.2 Description et caractérisation du montage expérimental

Les expériences sont menées avec une technique pompe-sonde utilisant un interféromètre de Michelson [76], décrite dans la figure 2.1. Des mesures réflectométriques sont également rendues

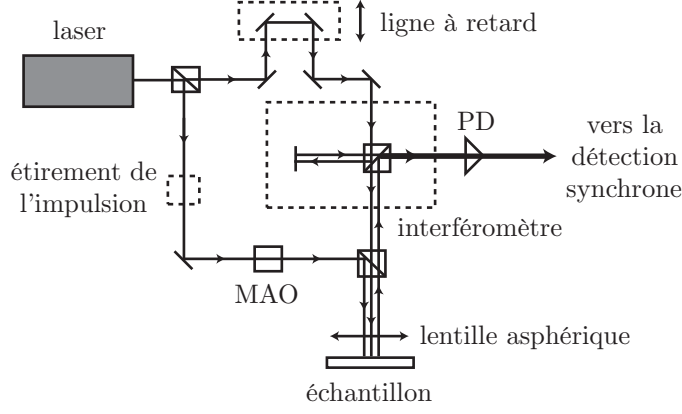


FIG. 2.1 – Montages réflectométrique et interférométrique basés sur une source laser Ti :Saphir (795 nm, 82 MHz, 5 nJ, 100 fs). Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés par une lentille asphérique.

possibles en masquant un bras de l'interféromètre pour éviter les interférences sur la photodiode (PD). L'onde acoustique est générée par l'absorption de la radiation d'un laser Ti :Saphir dont la longueur d'onde native est 795 nm. Des impulsions d'énergie 5 nJ et d'une durée initiale de 100 fs sont émises avec un taux de répétition de 82 MHz.

Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés à travers une lentille asphérique pour former des taches de $2\text{ }\mu\text{m}$ sur la surface de l'échantillon. Le faisceau pompe est modulé par un modulateur acousto-optique (MAO) à la fréquence de référence de 300 kHz pour extraire les signaux du faisceau sonde par détection synchrone. En augmentant le chemin parcouru par la sonde, la ligne à retard permet de faire varier la différence temporelle entre la génération et la détection. Ainsi, le changement de réflectivité peut être mesuré en fonction du temps.

Le dispositif d'étirement de l'impulsion sera présenté dans le paragraphe suivant. Son insertion dans le montage interférométrique et son fonctionnement seront décrits. Puis, à travers des considérations de dispersion optique, la durée d'impulsion résultante sera prédite analytiquement. Le système sera calibré en comparant ces résultats avec les mesures expérimentales.

2.2.1 Dispositif d'étirement de l'impulsion

Afin d'augmenter la durée d'impulsion, un dispositif dédié est inséré sur le trajet parcouru par le faisceau pompe [64]. Il permet de décaler dans l'espace les diverses longueurs d'onde constituant l'impulsion, à l'aide d'un réseau optique, comme schématisé sur la figure 2.2. Deux lentilles identiques sont éloignées de deux fois leur distance focale f . Le faisceau initial arrive sur le premier réseau, et ses longueurs d'onde constitutives sont diffractées. Puis, ces composantes passent à travers les lentilles et le second réseau, pour finalement sortir parallèles les unes par rapport aux autres.

Enfin, un miroir réfléchit les faisceaux qui repassent à travers les réseaux une deuxième fois, et se superposent pour former l'impulsion élargie. En effet, la longueur d'onde rouge λ_R parcourt une distance plus petite que la bleue λ_B , et arrive en premier à la sortie du dispositif. Par conséquent, ce montage introduit un retard de phase entre les longueurs d'onde et crée de la dispersion. Les deux réseaux optiques sont initialement à des distances d_1 et d_2 des lentilles,

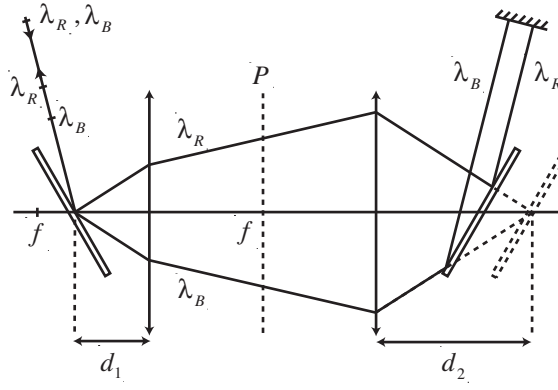


FIG. 2.2 – Dispositif expérimental utilisé pour étirer les impulsions laser.

de telle manière que $d_1 + d_2 = 2f$. Dans cette position, la durée d'impulsion n'est pas changée. Lorsque la distance d_2 est augmentée en rapprochant le deuxième réseau de la lentille, la durée d'impulsion augmente.

Puisque le dispositif présenté ci-dessus est symétrique par rapport au plan P , un miroir est placé dans le plan focal de la première lentille pour simplifier le montage. Ainsi, l'ensemble composé par ce miroir et la première lentille est déplacé par rapport au réseau. Dans cette configuration, il n'y a pas de dispersion quand $d_1 = f$. De façon à ce que ce montage soit équivalent à celui décrit dans la figure 2.2, le faisceau incident passe quatre fois à travers le réseau. L'orientation du réseau est optimisée afin de maximiser le premier ordre de diffraction.

2.2.2 Calcul de la durée d'impulsion

La durée d'impulsion τ est définie par la largeur à mi-hauteur de la gaussienne en intensité, laquelle est proportionnelle au carré de l'amplitude. Elle est déduite ici de la durée d'impulsion initiale du laser τ_0 . Le dispositif optique crée une variation de phase $\phi(\omega)$, qui peut être développée en une série de Taylor autour de la fréquence centrale de l'impulsion ω_0 [77] :

$$\phi(\omega) = L \left[q(\omega_0) + \frac{dq}{d\omega} \Big|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} \frac{d^2q}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \right] \quad (2.4)$$

où $L = 2(f - d_1)$ est la longueur du système dispersif et $q(\omega)$ le nombre d'onde optique. L'amplitude du champ électrique peut ensuite être exprimée [77] :

$$E(x_1, t) = E_0 \exp \left\{ j\omega_0 \left[t - \frac{x_1}{c(\omega_0)} \right] - \Gamma(x_1) \left[t - \frac{x_1}{c_g(\omega_0)} \right]^2 \right\} \quad (2.5)$$

Le premier terme de l'exponentielle correspond à la propagation de l'onde électromagnétique à la célérité de phase c . Le second terme définit la forme et la vitesse de l'enveloppe de l'impulsion. Cette dernière se propage à la célérité de groupe c_g , qui est l'inverse du terme de dispersion du premier ordre dans l'équation (2.4). Les autres termes du développement de Taylor contribuent à la durée d'impulsion et sont rassemblés dans la variable $\Gamma(x_1)$. En considérant uniquement le second ordre, la durée τ est exprimée dans le cas d'une impulsion de forme gaussienne [77] :

$$\tau = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln(2) \phi''}{\tau_0^2} \right)^2} \quad (2.6)$$

où ϕ'' décrit le second ordre de la dispersion :

$$\phi'' = L \left. \frac{d^2 q}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} = L \frac{d}{d\omega} \left[\frac{1}{c_g(\omega)} \right] \Big|_{\omega_0} \quad (2.7)$$

Lorsque c_g est exprimée comme une fonction des paramètres du dispositif optique [78], en considérant la variation du chemin parcouru par chacune des longueurs d'onde, la forme suivante est obtenue [79] :

$$\phi'' = \frac{(f - d_1)\lambda^3}{\pi c_0^2 a^2 \cos^2 \theta_d} \quad (2.8)$$

avec c_0 , a et θ_d respectivement la célérité de phase dans le vide, le pas du réseau et l'angle de diffraction. Dès lors, la durée d'impulsion est reliée à la distance d_1 . La calibration du système va ensuite être vérifiée en comparant la loi (2.6) avec la durée d'impulsion mesurée expérimentalement.

2.2.3 Vérification de la calibration du dispositif expérimental

La durée d'impulsion est maintenant mesurée expérimentalement. Après le dispositif d'étirement, la forme temporelle de l'impulsion est supposée être une gaussienne de largeur à mi-hauteur τ , dont l'expression est donnée par l'équation (2.6). Cette largeur est mesurée à l'aide d'un interféromètre de Michelson, en utilisant une diode à deux photons comme photo-détecteur [80], afin d'effectuer une auto-corrélation du second ordre de l'amplitude $E(t)$ [81] :

$$C(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} E^2(t) E^2(t - \tau) dt \quad (2.9)$$

Une gaussienne de largeur à mi-hauteur τ_G est ajustée sur le signal de sortie $C(\tau)$, et la relation $\tau_G = \sqrt{2}\tau$ permet alors d'obtenir la durée d'impulsion [82].

La comparaison entre la durée d'impulsion calculée à l'aide de l'équation (2.6) et la valeur donnée par la mesure interférométrique est tracée sur la figure 2.3(a) en fonction de la distance $f - d_1$ entre la focale de la lentille et le réseau. Un agrandissement autour des plus petites durées est représenté sur la figure 2.3(b). Le très bon accord observé autorise à déterminer directement la durée d'impulsion à partir de la distance d_1 dans les expériences suivantes.

A l'aide de ce montage, l'impulsion de durée initiale 100 fs peut être étirée jusqu'à 150 ps. Comme il sera montré dans les sections suivantes, le faible rapport signal sur bruit des échos acoustiques mesurés expérimentalement limite cette extension à 25 ps.

2.3 Comparaison du calcul du processus thermique avec les données expérimentales

L'échantillon utilisé est un film de tungstène de 250 nm d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, dont les propriétés sont définies en annexe B. Les signaux réflectométriques mesurés à l'aide du montage précédent sont tracés en traits pleins sur la figure 2.4 pour plusieurs durées d'impulsion. Un agrandissement autour des temps courts est représenté dans l'insert. Dans cette section, l'analyse porte sur les processus thermiques, et les échos acoustiques apparaissant vers 100, 200 et 300 ps seront examinés dans la section suivante.

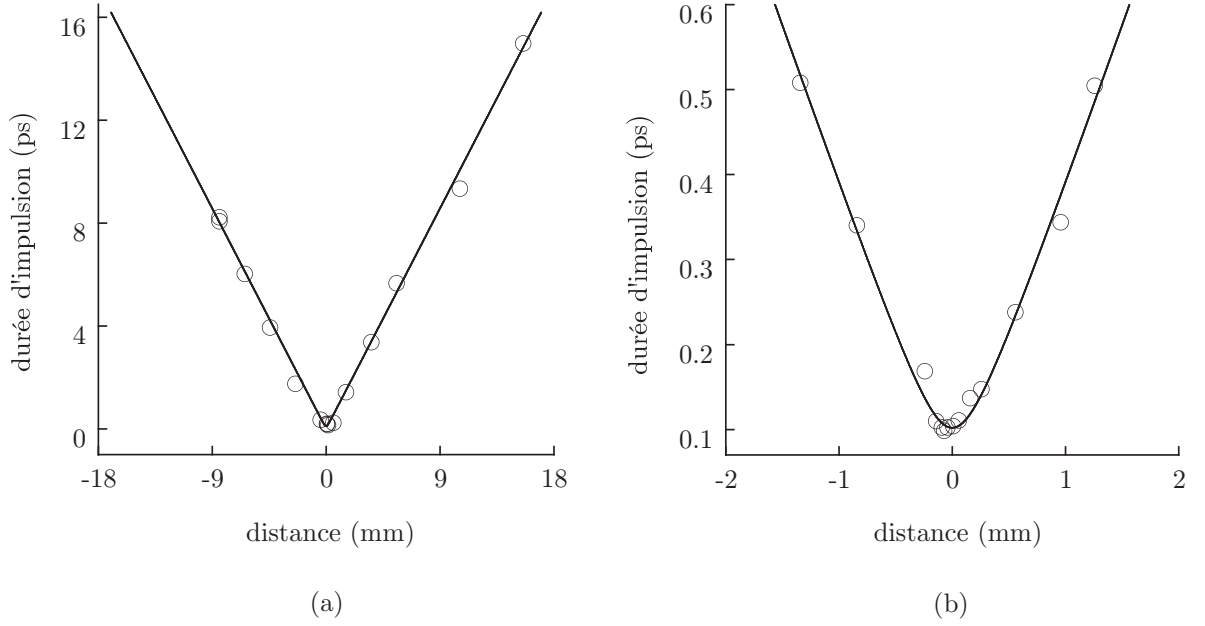


FIG. 2.3 – (a) Comparaison entre la durée d'impulsion calculée (trait plein) et les valeurs données par les mesures interférométriques (cercles) en fonction de la distance entre la lentille et le réseau. (b) Agrandissement autour des plus petites distances.

Pour des durées d'impulsions courtes, un pic étroit est observé aux temps courts. Il s'agit du pic de coïncidence, apparaissant lorsque les impulsions pompe et sonde sont proches dans le temps. Il correspond à l'absorption de l'énergie des photons incidents par les électrons, avant que ceux-ci ne transfèrent leur énergie au réseau. Ce processus rapide génère un contenu haute fréquence dans le signal, qui disparaît lorsque la durée d'impulsion augmente. Après quelques picosecondes, les électrons ont transféré toute leur énergie au réseau et les deux sous-systèmes sont en équilibre. Alors, une lente décroissance est observée ; elle correspond à la diffusion thermique dans le film.

Afin de représenter l'évolution de ces deux phénomènes en fonction de la durée d'impulsion, le modèle semi-analytique développé précédemment est mis en œuvre. Le signal réflectométrique correspond à l'amplitude de la variation de l'intensité du champ électrique réfléchi. Celle-ci est proportionnelle à la partie réelle de r^s [76], déterminée à partir de l'équation (2.2). De la même manière, le signal interférométrique, présenté plus loin, correspond à la phase de la variation de l'intensité du champ électrique réfléchi. Il est calculé à partir de la partie imaginaire de r^s .

La partie réelle de r^s est alors superposée en pointillés aux mesures expérimentales sur la figure 2.4. Les constantes élasto-optiques et thermo-optiques, ainsi que la résistance thermique, sont ajustées pour obtenir les valeurs indiquées dans le tableau 2.1. Toutes les autres grandeurs sont données en annexe B, et seule la durée d'impulsion τ varie d'une courbe à l'autre. La valeur déterminée pour $\partial n_I / \partial \eta_1$ est du même ordre de grandeur que celle présente dans la littérature [83]. Peu de valeurs de constantes thermo-optiques peuvent être trouvées [68, 46] et, une fois encore, seul l'ordre de grandeur, qui est cohérent, peut être comparé. R_{th} est déterminée en ajustant le fond thermique pour les temps longs sur les données expérimentales. Bien que

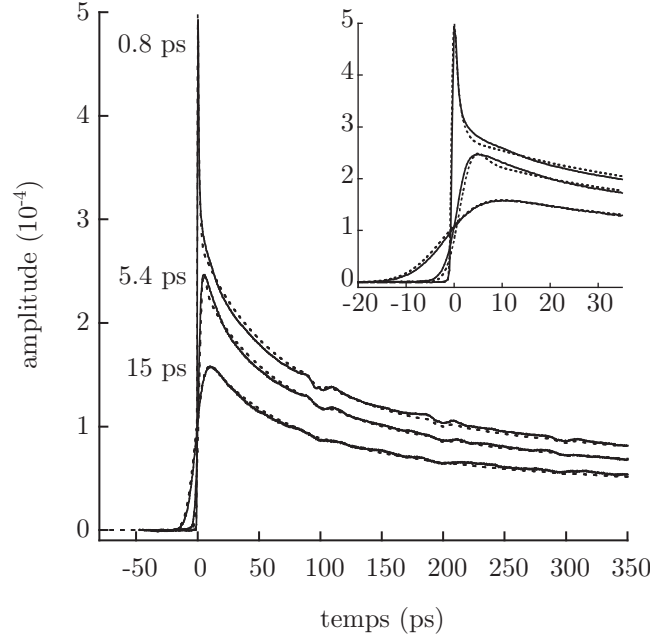


FIG. 2.4 – Comparaison des signaux réflectométriques expérimentaux (traits pleins) avec les calculs théoriques (pointillés) pour des durées d’impulsion de 0.8, 5.4 et 15 ps. Un agrandissement du pic de coïncidence est effectué dans l’insert.

la fenêtre temporelle n’ait pas été choisie de façon à obtenir une estimation précise de ce paramètre, l’ordre de grandeur est en accord avec les valeurs classiques correspondant à une interface métal/silicium [84, 71].

Le pic de coïncidence est bien représenté par le modèle à deux températures, principalement à travers la constante $\partial n_I / \partial T^e$. Puisqu’il contribue aux hautes fréquences du signal réflectométrique, il est filtré par la convolution avec la forme temporelle de l’impulsion source effectuée dans l’équation (1.17). Par conséquent, ce pic disparaît lorsque la durée d’impulsion augmente. En effet, si cette dernière est plus longue que le temps de relaxation des électrons, c’est-à-dire $\tau \gg C_e / g$, le déséquilibre microscopique $T_I^l \neq T_I^e$ se produit pendant l’excitation et n’est pas visible sur le signal. Dans ce cas, l’évolution de la température est régie par une équation parabolique de diffusion de la chaleur. La lente décroissance qui suit le pic de coïncidence, correspondant à la diffusion thermique, n’est pas affectée par la durée d’impulsion car elle n’est composée que de très basses fréquences. Elle est elle aussi bien décrite par les calculs théoriques.

Un léger désaccord est observé dans la figure 2.4 autour de 10 ps, juste après le pic de coïncidence, pour des durées d’impulsion de 0.8 et 5.4 ps. Cela peut être dû aux approximations faites dans le modèle thermique, supposant la constance de κ_e^I et C_e^I . Une description plus précise du processus thermique devrait être implémentée, prenant en compte la dépendance de ces paramètres vis-à-vis de la température électronique [44, 66]. Il existe également des représentations plus complexes de l’interaction thermo-optique dans les métaux, tels que le modèle athermique [85] qui considère les collisions électron-électron. Cependant, le modèle exposé dans ce mémoire permet de représenter précisément l’influence de la durée d’impulsion avec un seul modèle, et un jeu unique de paramètres électroniques, élasto-optiques et thermo-optiques. Cela

TAB. 2.1 – Les constantes élasto-optiques et thermo-optiques, ainsi que la résistance thermique du film de tungstène déposé sur un substrat de silicium sont identifiées en ajustant le modèle théorique sur les données expérimentales à $\lambda=796$ nm.

	$\partial n_I / \partial \eta$	$\partial n_I / \partial T^e \times 10^{-4}$	$\partial n_I / \partial T^l \times 10^{-4}$	$R_{th} \times 10^{-8}$
W sur Si	6.5+1.5j	0.4+0.3j	8.8+6.7j	1 K m ² W ⁻¹

met en évidence l'avantage de cette formulation semi-analytique, qui permet de décrire fidèlement le signal thermique à n'importe quelle échelle temporelle, et pour toutes les durées d'impulsion dans la gamme étudiée.

2.4 Influence de la durée d'impulsion sur les échos acoustiques

La lente décroissance du fond thermique est maintenant soustraite des signaux expérimentaux en retranchant un polynôme. Les premiers échos acoustiques obtenus en réflectométrie et en interférométrie sont ensuite comparés aux calculs théoriques (les parties réelle et imaginaire de r^s respectivement), pour plusieurs durées d'impulsions, dans la figure 2.5(a) et 2.5(b). En utilisant les valeurs données en annexe B, et en changeant uniquement τ , un bon accord entre les données expérimentales et les prédictions théoriques est observé. La différence entre les lignes de base s'explique par le choix du polynôme soustrait. De plus, le choix du modèle d'atténuation acoustique et la définition de l'interface film/substrat, qui ne prend pas en compte les gradients de propriétés mécaniques [86], peut introduire des écarts.

Comme il pouvait être attendu, l'augmentation de la durée d'impulsion tend à élargir les échos. En outre, l'équation (2.2) montre que la réflectivité est proportionnelle à l'intensité du laser pompe. Or, lorsque la durée d'impulsion augmente, la puissance du laser diminue car son énergie est répartie sur une période plus longue. C'est pourquoi, en normalisant les signaux par rapport à la fluence du laser¹, il apparaît sur la figure 2.5 que l'amplitude des échos décroît, de même que le rapport signal sur bruit.

C'est pourquoi il y a une limite à l'augmentation de la durée d'impulsion. Pour un film de tungstène, il n'y a presque plus de signal en réflectométrie après 25 ps. L'interférométrie permet d'aller plus loin que cette frontière, puisque les échos sont encore clairement visibles à 25 ps sur la figure 2.5. En effet, la condition limite imposant une contrainte nulle à la surface, couplée à la diminution de l'amplitude du champ électrique dans la zone de pénétration optique, implique que le déplacement de la surface libre (signal interférométrique) est plus visible que la déformation se propageant en profondeur (réflectométrie). Le rapport signal sur bruit est donc plus important en interférométrie qu'en réflectométrie.

Il est également intéressant de noter l'évolution de la petite remontée au milieu des échos réflectométriques. Cette contribution est due à la pénétration optique : le signal réfléchi par la variation d'indice optique interfère avec celui réfléchi à la surface libre du film. Ce phénomène crée une oscillation, appelée oscillation Brillouin [69]. Elle est ici rapidement atténuée car le matériau

¹La fluence est l'énergie déposée sur la surface illuminée.

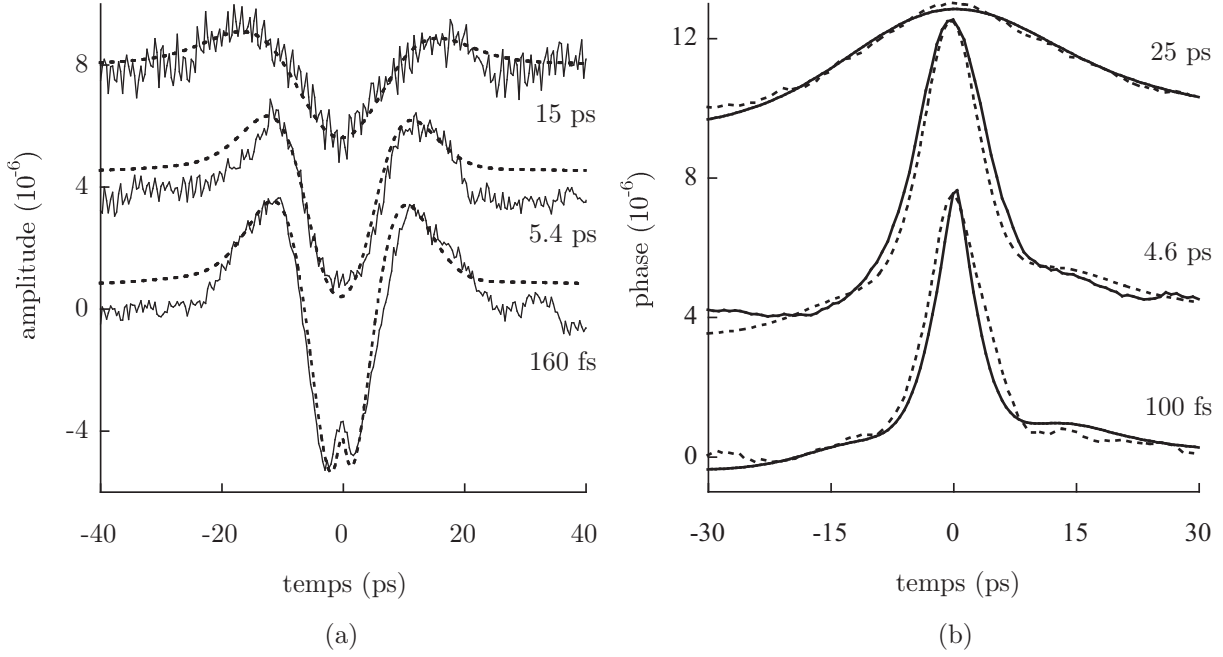


FIG. 2.5 – Comparaison entre les données expérimentales (trait plein) et le calcul semi-analytique (pointillés) du premier écho acoustique. (a) Premiers échos réflectométriques pour des durées d’impulsion de 160 fs, 5.4 ps et 15 ps. (b) Premiers échos interférométriques pour des durées d’impulsion de 100 fs, 4.6 ps et 25 ps.

possède une forte absorption optique, c’est-à-dire une faible pénétration optique. Son amplitude dépend de la constante élasto-optique $\partial n_I / \partial \eta_1$, et donc de la longueur d’onde [83]. Ainsi, elle peut disparaître à certaines longueurs d’onde. Ici, un autre mécanisme est à l’œuvre : quand la convolution avec la forme de l’impulsion est effectuée (1.17), un effet de filtre se produit. Par conséquent, cette composante haute fréquence est supprimée avec l’augmentation de la largeur de l’impulsion. Afin de vérifier cette hypothèse, une étude dans le domaine fréquentiel sera conduite.

2.5 Identification du contenu fréquentiel des échos acoustiques

Dans le tungstène, la diffusion électronique $x_1^e = (\kappa_1^I / g_I)^{1/2} = 45$ nm est plus grande que la pénétration optique $\gamma_I^{-1} = 25$ nm. L’extension de la source acoustique dans la direction de $\mathbf{x}_1$ peut donc être estimée par x_1^e si la diffusion thermique est négligée. Par conséquent, les longueurs d’onde générées sont centrées autour de $2x_1^e$. Alors le spectre du premier écho acoustique, obtenu en réflectométrie pour une durée d’impulsion de 160 fs, est centré autour d’une fréquence qui correspond approximativement à $f_m = v_L^I / 2x_1^e = 60$ GHz, avec v_L^I la célérité de l’onde acoustique longitudinale. Cette fréquence est légèrement surestimée car elle ne tient pas compte de la pénétration optique, ni de la diffusion thermique. La fréquence f_m est en outre du même ordre de grandeur que la fréquence Brillouin $f_b = 2n_I' v_L^I / \lambda_r = 47$ GHz [69], où les variables n_I' et λ_r représentent respectivement la partie réelle de l’indice optique et la longueur d’onde du faisceau laser incident. Dans le tungstène, ces fréquences sont trop proches par rapport à la largeur de

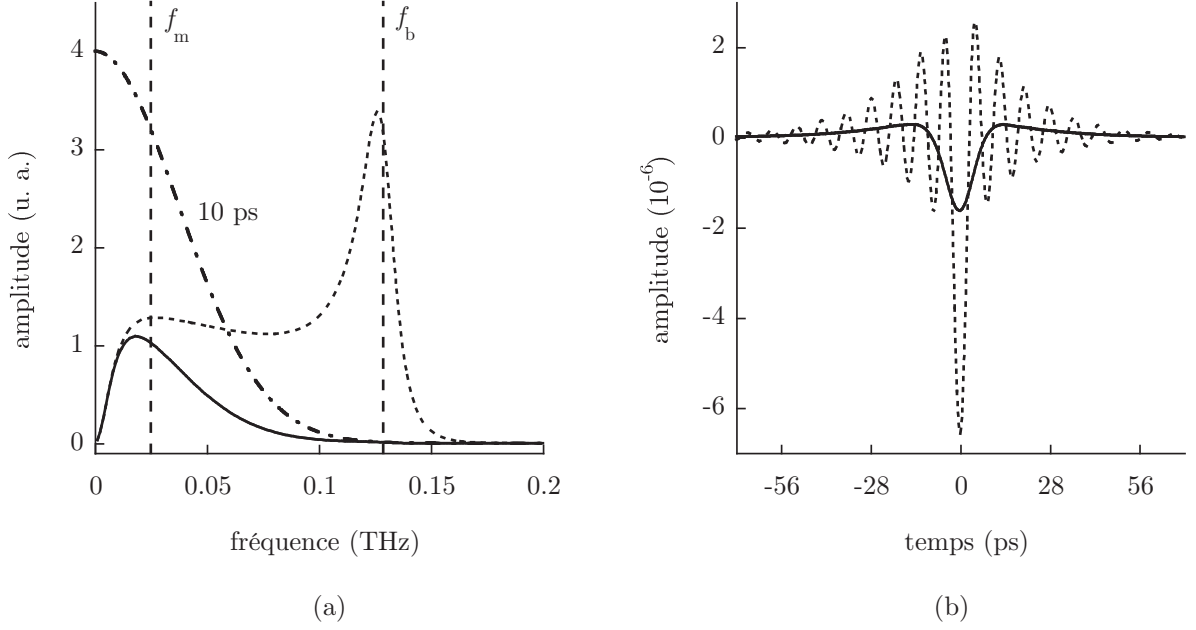


FIG. 2.6 – (a) Spectre d'une impulsion d'une durée de 10 ps (trait mixte). Réponses à un Dirac temporel (pointillés) et à une impulsion d'une durée de 10 ps (trait plein). (b) Réponses temporelles à un Dirac temporel (pointillés) et à une impulsion d'une durée de 10 ps (trait plein).

leur pics et se superposent donc. C'est pourquoi elles ne peuvent pas être identifiées clairement.

Afin de séparer les deux fréquences f_m et f_b , une expérience numérique est conduite sur un matériau différant du tungstène par son coefficient d'élasticité $C_{11}^I = 800 + 10j\omega$ GPa (au lieu de $C_{11}^I = 522 + j\omega$ GPa) et par son indice optique $n_I = 7 + 0.5j$ (au lieu de $n_I = 3.58 + 2.73j$) à 795 nm. L'importante partie imaginaire de C_{11}^I est choisie afin de réduire l'amplitude du pic de Brillouin. L'indice optique et la vitesse de propagation acoustique sont choisis de telle sorte que f_m et f_b soient suffisamment distantes. Pour ce matériau, c'est maintenant la pénétration optique $\gamma_I^{-1} = 130$ nm qui prévaut sur la diffusion électronique. Dès lors, le spectre des longueurs d'onde acoustiques est centré autour de $2/\gamma_I$. Dans ce cas, les fréquences $f_m = v_L^I \gamma_I / 2 = 25$ GHz et $f_b = 130$ GHz sont clairement distinctes.

Le spectre du premier écho acoustique alors obtenu pour une excitation temporelle de type Dirac est représenté en pointillés sur la figure 2.6(a). Puis, ce spectre est multiplié par celui d'une impulsion d'une durée de 10 ps symbolisé par le trait mixte. Le résultat de ce produit apparaît en trait plein. Les fréquences f_m et f_b sont matérialisées par les traits discontinus verticaux. Les signaux temporels correspondant à ces spectres (sauf celui de l'impulsion) sont représentés sur la figure 2.6(b) avec les mêmes conventions. Comme indiqué sur la figure 2.6(a), le choix de la haute valeur d'atténuation acoustique décale légèrement la fréquence Brillouin f_b vers la gauche de sa valeur théorique. La multiplication des deux spectres agit comme un filtre et la fréquence Brillouin est totalement supprimée du spectre en trait plein. Réciproquement, l'influence de la convolution dans le domaine temporel au sein de l'équation (1.17) (c'est-à-dire la multiplication dans le domaine fréquentiel) peut être observée sur la figure 2.6(b). Les pointillés correspondent à la réponse à un Dirac. Quand la fréquence Brillouin est supprimée, l'écho en trait plein, où

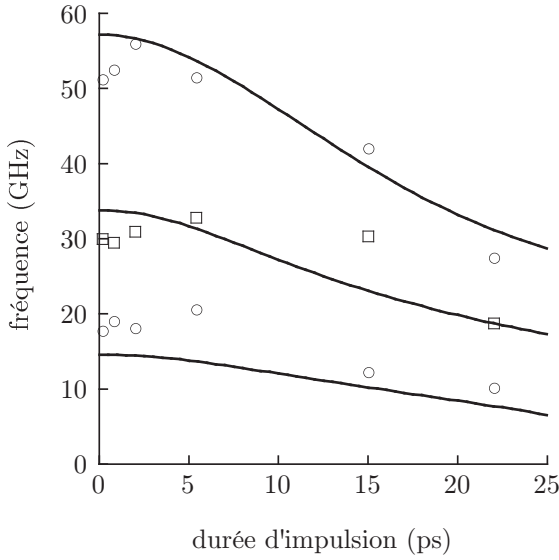


FIG. 2.7 – Fréquence centrale ($\square$) et fréquences à mi-hauteur ($\circ$) du spectre du premier écho en réflectométrie. Comparaison entre théorie (—) et expérience (marqueurs).

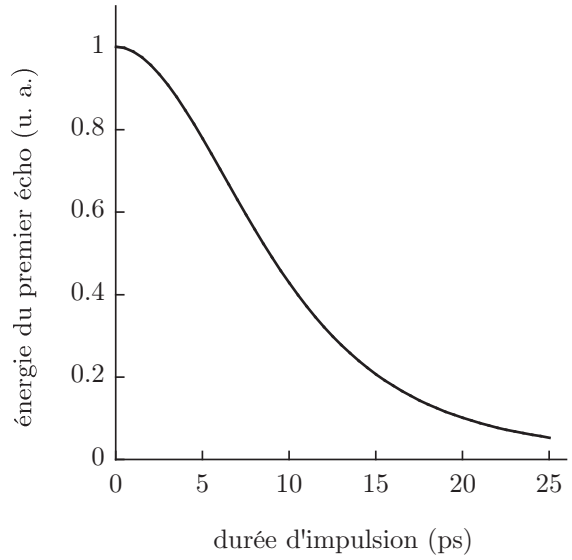


FIG. 2.8 – Prédiction théorique de l'évolution de l'énergie du premier écho acoustique en fonction de la durée d'impulsion.

plus aucune oscillation ne subsiste, est obtenu.

Cette illustration confirme que la composante haute fréquence présente dans le spectre de l'écho acoustique obtenu dans le tungstène est due à une oscillation Brillouin rapidement atténuée [87]. Elle peut être supprimée en augmentant la durée d'impulsion. Ce procédé peut être utile lorsque l'oscillation Brillouin masque la partie acoustique du signal, comme c'est souvent le cas dans les semi-conducteurs [88, 89]. Même si ce modèle ne s'applique pas à ce type de matériaux, puisqu'ils sont régis par différents mécanismes de génération, le même principe d'augmentation de la durée d'impulsion peut être appliqué.

2.6 Caractéristiques et existence du maximum de génération

A partir de la transformée de Fourier du premier écho en réflectométrie, il est possible d'observer l'évolution du spectre acoustique lorsque τ augmente. Ainsi sont tracées sur la figure 2.7 la fréquence centrale et les fréquences à mi-hauteur en fonction de la durée d'impulsion. Lorsque cette dernière augmente, le spectre du premier écho devient plus étroit. Ceci est en relation, comme énoncé précédemment, avec l'élargissement des échos temporels lors de la convolution de la fonction de transfert avec la forme gaussienne représentant l'impulsion laser, dans l'équation (1.17).

Ainsi qu'il peut être observé sur la figure 2.7 en $\tau = 0$ (excitation de type Dirac), la tangente aux courbes, représentant l'évolution du spectre acoustique en fonction de la durée d'impulsion, est horizontale. Cela signifie que, dans une certaine gamme, la durée d'impulsion a peu d'effet sur le spectre des échos. Plus le rapport de la profondeur de pénétration optique γ_I^{-1} à la vitesse de propagation acoustique v_I , c'est-à-dire la fréquence f_m , est grande, plus la réponse du matériau est sensible à la durée d'impulsion.

Il est délicat de conserver les mêmes conditions pendant toute la durée des expériences. L'ajustement entre la pompe et la sonde est difficile à maintenir, notamment avec l'utilisation du dispositif d'étirement de l'impulsion. De plus, les conditions au point de mesure sur l'échantillon varient au cours des mesures qui durent plusieurs heures. Par conséquent, l'estimation de l'énergie des échos en fonction de la durée d'impulsion n'est pas fiable.

Cependant, les développements analytiques ont démontrés leur pertinence, puisqu'ils permettent de représenter fidèlement la forme temporelle des échos, ainsi que leur contenu fréquentiel. Dès lors, les résultats numériques sont exploités afin d'analyser l'évolution de l'énergie du premier écho réflectométrique en fonction de la durée d'impulsion représenté sur la figure 2.8. Pour cela, la transformée de Fourier est rendue analytique en imposant que l'amplitude du spectre pour les fréquences négatives soit nulle [90]. Alors l'énergie de ce signal modifié est donnée par la valeur en zéro de son auto-corrélation. Il apparaît sur la figure 2.8 que la variation de cette énergie est une fonction monotone décroissante de la durée d'impulsion, et qu'aucun maximum ne peut être observé. Cette constatation est similaire aux résultats énoncés par V. E. Gusev et A. A. Karabutov [91].

Contrairement à l'interférométrie, le spectre d'un écho réflectométrique est centré sur f_m , avec $f_m \neq 0$ puisque la forme temporelle n'est pas unipolaire, ainsi qu'il est observé sur la figure 2.5. Ce spectre est ensuite multiplié par une fonction de Gauss qui réduit les hautes fréquences et augmente les basses fréquences, comme le montre la figure 2.6(a). Ainsi, pour des durées d'impulsions proches de $1/f_m$, un maximum d'énergie pourrait être attendu. Comme ce n'est pas le cas, l'effet de filtre dû à l'augmentation de la durée d'impulsion a plus d'influence que la concentration de l'énergie sur les fréquences les plus basses due à la conservation de l'énergie de l'impulsion. Par conséquent, aucune maximisation de l'efficacité de la génération acoustique n'est à attendre quand la durée d'impulsion varie. Pour une fluence de laser fixée, plus l'impulsion est courte, plus la génération est efficace.

Le processus d'endommagement s'initie lorsque la température du réseau atteint le point de fusion [92, 93]. De façon à analyser la limite du régime d'ablation, le maximum de température du réseau est donc tracé sur la figure 2.9 pour la capacité calorifique du tungstène $C_l^I = 2.55 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ (trait plein). En augmentant la durée d'impulsion, la même énergie est apportée au matériau en un temps plus long, et la diffusion thermique est déjà en train de répartir la chaleur dans le film pendant l'excitation. Ainsi qu'il est observé, la température maximale du réseau diminue lorsque la durée d'impulsion augmente. L'énergie nécessaire pour initier l'endommagement augmente donc avec la durée d'impulsion [44]. Par conséquent, pour une durée d'impulsion donnée, la puissance du laser pourrait être augmentée afin d'obtenir un maximum de température du réseau constant, en dessous du seuil d'ablation. Ainsi, les conditions thermiques seraient toujours en deçà du point de fusion, mais avec une énergie d'impulsion laser plus grande. La génération acoustique serait alors améliorée pour un jeu de puissance et de durée du laser adéquatement choisi.

Concernant le tungstène, la diffusion thermique est trop lente pour avoir une incidence drastique sur l'évolution de la température maximale du réseau, tracée en trait plein sur la figure 2.9. Un matériau virtuel, où ce processus est plus rapide, est modélisé en altérant les propriétés du tungstène de façon à ce que la capacité calorifique soit $C_l^I = 0.5 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$. Il est alors observé

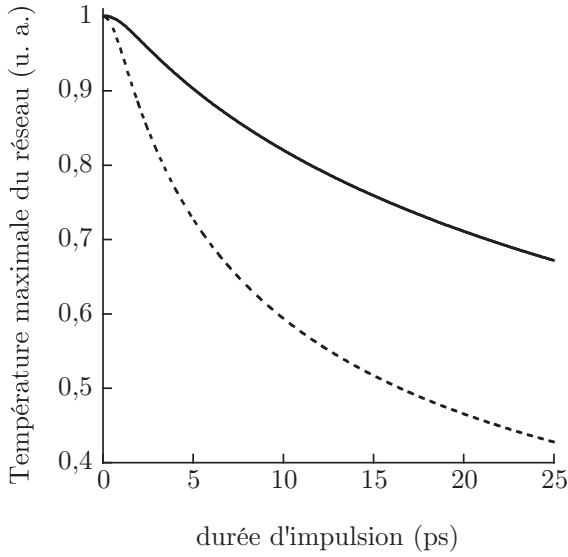


FIG. 2.9 – Evolution de la température maximale du réseau calculée pour la capacité calorifique du tungstène $C_l^I = 2.55 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ (trait plein) et pour une valeur modifiée $C_l^I = 0.5 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ (pointillés).

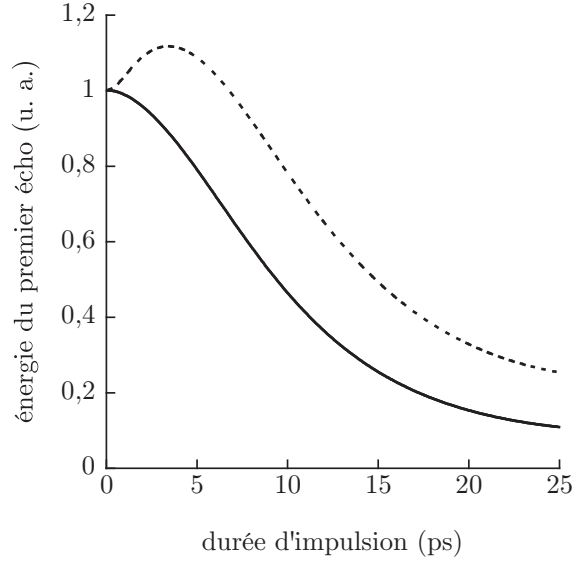


FIG. 2.10 – Evolution de l'énergie du premier écho acoustique en réflectométrie (trait plein). Énergie du premier écho normalisée par rapport à la température maximale du réseau (pointillés).

en pointillés sur la figure 2.9 que la température maximale du réseau varie beaucoup plus vite dans ce cas. La quantité de chaleur que le réseau peut retenir est plus faible, et le processus de diffusion est donc plus rapide. L'équation (1.20) montre que la température du réseau T_I^l est proportionnelle à l'énergie de l'impulsion laser incidente. L'énergie du premier écho est donc normalisée par rapport à la température T_I^l maximale. L'évolution de cette énergie normalisée (pointillés) est alors comparée à l'évolution de l'énergie du premier écho (trait plein) en fonction de la durée d'impulsion sur la figure 2.10. Ainsi, si la température maximale du réseau diminue suffisamment vite par rapport à la diminution de l'énergie du premier écho, un maximum de génération est observé.

Dès lors, l'énergie acoustique serait maximisée pour une durée d'impulsion $\tau = 5 \text{ ps}$, et une fluence de l'impulsion laser incidente légèrement inférieure au seuil d'ablation.

2.7 Conclusion

Un dispositif optique a été introduit dans un montage d'acoustique picoseconde afin de faire varier continûment la durée de l'impulsion laser de 100 fs à 150 ps. Les phénomènes physiques impliqués dans la modification de la réflectivité ont été interprétés à travers un modèle analytique. Le signal réflectométrique complet, incluant le fond thermique décroissant et le pic de coïncidence, ainsi que les échos acoustiques, correspond parfaitement avec les données expérimentales.

Cet accord est obtenu pour un seul jeu de valeurs, grâce à la prise en compte simultanée des contributions électronique, du réseau et de la déformation. Le modèle représente l'évolution du signal à n'importe quelle échelle temporelle, et quelle que soit la durée d'impulsion. La précision

de cette résolution semi-analytique est un avantage supplémentaire par rapport à une résolution par différences finies.

Ainsi, la combinaison des approches expérimentale et théorique a permis de démontrer l'influence de la durée d'impulsion sur la composante Brillouin des échos acoustiques et sur le pic de coïncidence. De plus, malgré le fait que le maximum de signal soit obtenu, à énergie optique constante, pour les durées d'impulsions les plus courtes, la génération acoustique peut être améliorée pour des impulsions dimensionnées afin de maintenir une température maximale du réseau en dessous du point de fusion.

En outre, l'augmentation de la durée d'impulsion agit comme un filtre qui élimine les composantes hautes fréquences du signal. Cela permet de supprimer les oscillations Brillouin du signal acoustique pur, et par conséquent d'identifier les échos clairement. Ce filtrage est particulièrement intéressant quand la partie imaginaire de l'indice optique est faible, comme dans le cas des semi-conducteurs par exemple. Même si le mécanisme de génération diffère de celui présenté ici dans les métaux, les processus de détection sont identiques, et le même effet de filtre est attendu.

Chapitre 3

Influence de l'extension latérale de la source optique

Le modèle de diffusion parabolique classique ne permet pas de décrire précisément les signaux expérimentaux dans les métaux pour des durées d'impulsions inférieures à la picoseconde. Pour simuler la diffusion électronique en profondeur, il est alors inévitable d'augmenter de manière artificielle la pénétration optique [30]. De plus, afin de représenter la diffraction des basses fréquences, il est nécessaire de réduire arbitrairement la diffusivité du matériau [28].

Dans le chapitre précédent, il a été montré que le modèle à deux températures permet de représenter de façon précise le comportement unidimensionnel dans les métaux. Le but de ce troisième chapitre est donc d'étudier l'influence de la diffusion électronique sur la diffraction acoustique pour des configurations bidimensionnelles.

Des études sur l'évolution de l'extension latérale du champ de température en surface [50, 51] ont été menées par éléments finis dans d'autres équipes, à travers l'exploration du modèle à deux températures en 2D. Cependant, afin d'analyser l'effet de ce dernier sur la diffraction acoustique, le couplage thermo-élastique sera considéré de manière analytique dans les développements présentés dans ce chapitre.

Un examen des fréquences et des longueurs d'onde acoustiques sera donc conduit. Il mettra en évidence, de façon inattendue, l'influence de la diffusion électronique sur le contenu basse fréquence du signal acoustique. Puis des signaux expérimentaux mesurés dans un film d'or permettront notamment, à travers l'analyse de l'onde de Rayleigh, de valider les prédictions théoriques à basse fréquence.

3.1 Etude du caractère bidimensionnel du champ de température

En suivant une méthodologie similaire à celle développée dans des travaux précédents [36, 91, 94], une discussion sur les fréquences et les longueurs d'onde est menée. Avant d'étudier l'effet de la diffusion électronique sur la diffraction du champ thermique, et donc acoustique, différents domaines fréquentiels seront identifiés. Dans ce chapitre, des films d'or seront considérés afin d'illustrer les propos exposés. C'est l'un des métaux le plus sensible à la diffusion électronique,

et ses caractéristiques seront introduites dans cette section afin de fixer les ordres de grandeurs. La discussion n'en restera pas moins générale, et pourra s'appliquer à n'importe quel métal.

3.1.1 Identification des régimes fréquentiels

L'aspect bidimensionnel du champ de température dans le film est décrit par la dépendance en k_2 de l'équation (1.21). En utilisant le fait que $C_l^I \gg C_e^I$, cette équation est simplifiée :

$$\Gamma_I(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[j\omega C_l^I \frac{g_I + j\omega C_e^I}{g_I + j\omega C_l^I} + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \quad (3.1)$$

Les parties réelle et imaginaires sont alors séparées :

$$\begin{aligned} \Gamma_I(k_2, \omega) &= \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[j\omega C_l^I \frac{g_I^2 + \omega^2 C_l^I C_e^I}{g_I^2 + (\omega C_l^I)^2} + \frac{g_I (\omega C_l^I)^2}{g_I^2 + (\omega C_l^I)^2} + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \\ &= \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[j\omega C_l^I \frac{1 + \omega^2 \tau_r^I \tau_e^I}{1 + (\omega \tau_r^I)^2} + \frac{C_l^I \tau_r^I \omega^2}{1 + (\omega \tau_r^I)^2} + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \end{aligned} \quad (3.2)$$

où $\tau_r^I = C_l^I/g_I$ et $\tau_e^I = C_e^I/g_I$ représentent respectivement le temps de montée de la température du réseau et le temps de relaxation des électrons¹. Les fréquences $\omega \tau_r^I \ll 1$ générées par l'expansion macroscopique de la source, limitée par le temps de montée de la température du réseau, sont alors distinguées de celles résultant uniquement de l'expansion électronique, telles que $\omega \tau_r^I \gg 1$.

Pour les fréquences les plus basses, c'est-à-dire $\omega \tau_r^I \ll 1$ (avec $1/\tau_r^I = 8$ GHz dans l'or), Γ_I s'exprime de la façon suivante :

$$\Gamma_I(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[C_l^I (j\omega + \tau_r^I \omega^2) + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \quad (3.3)$$

et diffère alors de la description fournie par le modèle de diffusion parabolique, comme le montre l'équation (1.23). Apparaît en effet à présent le temps de montée de la température du réseau $\tau_r^I = C_l^I/g_I$. Ainsi, dans les matériaux où la constante de couplage g_I est relativement faible, même les basses fréquences ont un comportement différent de celui décrit par un modèle macroscopique. Ce résultat est inattendu car il peut sembler *a priori* que le modèle à deux températures ne soit utile que pour décrire les comportements à haute fréquence dus à la dynamique électronique. Il mérite à ce titre d'être mis en exergue.

A l'inverse, lorsque $\omega \tau_r^I \gg 1$, l'expression (3.2) devient :

$$\Gamma_I(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} \left[j\omega C_e^I + g_I + k_2^2 \kappa_2^I \right] \right\}^{1/2} \quad (3.4)$$

Cette forme asymptotique de Γ_I ne concerne que les fréquences les plus élevées, lesquelles sont limitées par la durée τ de l'impulsion : $\omega/2\pi \leq 1/\tau \approx 60$ THz. Ainsi, la capacité calorifique électronique n'a d'influence que sur les très hautes fréquences, présentes essentiellement au moment de la coïncidence. Puisque le contenu fréquentiel du signal acoustique pur est inférieur aux fréquences décrites par ce régime, la dépendance de C_e^I avec la température électronique

¹Pour la plupart des métaux, le temps de relaxation du réseau est tel que $\tau_r^I \approx 100\tau_e^I$.

peut être négligée en vue d'une représentation des échos acoustiques. Cette remarque justifie l'hypothèse faite au paragraphe 1.1.2.

Dans le cas de l'or, puisque la pénétration optique est inférieure à la profondeur de diffusion électronique x_1^e , le contenu fréquentiel des ondes de volume peut être estimé à partir de x_1^e , comme il a été fait au chapitre 2. Ainsi, les fréquences constituant les échos acoustiques longitudinaux sont centrées autour de $f_m = v_L^I/2x_1^e = 13$ GHz, où v_L^I est la célérité de phase. En outre, les fréquences des ondes transverses et des ondes de surface seront inférieures à cette valeur. Ainsi, toutes les fréquences acoustiques sont proches de la fréquence $1/\tau_r^I = g_I/C_l^I = 8$ GHz imposée par le temps de montée de la température du réseau. La nécessité de prendre en compte les effets de diffusion électronique semble alors évidente.

A titre de comparaison, dans l'aluminium, $g_I/C_l^I = 300$ GHz [95], et il est raisonnable de ne pas considérer le régime haute fréquence². Une approche intermédiaire entre le modèle à deux températures et le modèle parabolique consiste alors, pour des temps de montée de la température du réseau proches de la picoseconde ($\tau_r^I \approx 3$ ps dans l'aluminium), à considérer un modèle hyperbolique [96] :

$$C_l^I \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \tau_r^I \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} \right) = \nabla \cdot \left({}^{(2)}\bar{\kappa}^I \nabla T \right) + Q_I + \tau_r^I \frac{\partial Q_I}{\partial t} \quad (3.5)$$

Dans ce cas, le coefficient de diffusion thermique Γ_I^{hyp} s'écrit [32] :

$$\Gamma_I^{hyp}(k_2, \omega) = \left\{ \frac{1}{\kappa_1^I} [C_l^I (j\omega - \tau_r^I \omega^2) + k_2^2 \kappa_2^I] \right\}^{1/2} \quad (3.6)$$

Il apparaît ainsi une forme identique à l'équation (3.3). Ce modèle, initialement développé pour corriger la vitesse de diffusion infinie aux temps courts dans le modèle parabolique [97], n'est pas étudié dans ce mémoire. Il serait cependant intéressant d'analyser le parallèle avec le modèle à deux températures, mis en évidence par la comparaison des équations (3.3) et (3.6), au regard de la diffraction basse fréquence.

3.1.2 Influence de la diffusion électronique sur la distribution spatiale du champ de température

L'objectif de ce paragraphe est de déterminer à quelles conditions l'évolution latérale du champ de température doit être considérée. L'influence de la diffusion électronique sur la répartition spatiale de l'agitation thermique doit donc être analysée. Pour ce faire, la forme du champ de température est maintenant étudiée dans les deux régimes fréquentiels exposés. Il est alors nécessaire de comparer les différents termes composant respectivement les expressions (3.3) et (3.4).

²En revanche, l'augmentation de la pénétration optique effective doit être prise en compte.

3.1.2.1 Régime basse fréquence

Les parties réelle et imaginaire de Γ_I sont séparées pour le régime basse fréquence $\omega\tau_r^I \ll 1$ à partir de l'équation (3.3) :

$$\mathcal{Re}(\Gamma_I) = \left\{ \frac{1}{2\kappa_1^I} \left(\sqrt{(k_2^2\kappa_2^I + \tau_r^I\omega^2 C_l^I)^2 + (\omega C_l^I)^2} + k_2^2\kappa_2^I + \tau_r^I\omega^2 C_l^I \right) \right\}^{1/2} \quad (3.7)$$

$$\mathcal{Im}(\Gamma_I) = \left\{ \frac{1}{2\kappa_1^I} \left(\sqrt{(k_2^2\kappa_2^I + \tau_r^I\omega^2 C_l^I)^2 + (\omega C_l^I)^2} - k_2^2\kappa_2^I - \tau_r^I\omega^2 C_l^I \right) \right\}^{1/2} \quad (3.8)$$

Afin d'étudier l'évolution latérale du champ de température, étant donnée la forme des équations ci-dessus, $k_2^2\kappa_2^I$ doit être comparé à $\tau_r^I\omega^2 C_l^I$ et à ωC_l^I . S'il est plus grand (ou du même ordre) que ces termes, la répartition spatiale du champ de température est bidimensionnelle. Dans le cas contraire, la diffusion thermique est unidimensionnelle. Dans le but de caractériser ces régimes spatiaux, les configurations critiques où $k_2^2\kappa_2^I = \tau_r^I\omega^2 C_l^I$ et $k_2^2\kappa_2^I = \omega C_l^I$ sont déterminées :

$$\begin{aligned} k_2^2\kappa_2^I = \tau_r^I\omega^2 C_l^I &\Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2} \left(\frac{C_l^I}{\kappa_2^I\tau_r^I} \right)^{1/2} \omega\tau_r^I \Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2x_2^e} \omega\tau_r^I \\ k_2^2\kappa_2^I = \omega C_l^I &\Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2} \left(\frac{C_l^I}{\kappa_2^I} \omega \right)^{1/2} \Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2x_2^e} (\omega\tau_r^I)^{1/2} \end{aligned} \quad (3.9)$$

avec $x_2^e = (\kappa_2^I/g_I)^{1/2}$ la distance latérale de diffusion électronique dans la direction $\mathbf{x}_2$.

La première condition provient de la prise en compte du temps de montée de la température du réseau dans les équations de diffusion thermique, grâce à la modélisation du couplage électron-phonon. Il s'agit donc d'une condition microscopique qui peut s'exprimer comme $x_2^e = \omega\tau_r^I/k_2$; l'expansion latérale macroscopique de la source pendant le temps τ_r^I est égale à la distance de diffusion instantanée des électrons suivant $\mathbf{x}_2$. Une vitesse de création de la source thermique par couplage électron-phonon est ainsi définie.

La seconde condition était déjà fournie par le modèle de diffusion parabolique [32]. Elle peut s'exprimer comme $k_2 = (\zeta^I\omega)^{1/2}$, avec $\zeta^I = \kappa_2^I/C_l^I$ la diffusivité thermique du réseau. Elle définit alors la vitesse latérale d'expansion de la source optique due à la diffusion macroscopique.

En outre, il est impossible de générer par diffraction des longueurs d'onde dont la projection sur la surface serait plus courte que la dimension latérale de la source optique. Ainsi, le plus grand k_2 qui puisse être généré correspond à la loi suivante :

$$\frac{k_2\chi}{2} = 1 \quad (3.10)$$

Pour illustrer la discussion, les courbes correspondant aux équations (3.9) (traits pleins) et (3.10) (pointillés horizontaux) sont tracées sur la figure 3.1 dans le cas de l'or pour $\chi = 500$ nm. La limite du régime basse fréquence est également symbolisée (pointillés verticaux). La région rectangulaire étudiée est donc délimitée par les pointillés et trois zones y sont identifiées.

La zone hachurée correspond à des vitesses acoustiques inférieures à la vitesse d'expansion latérale de la source. La diffusion thermique suivant $\mathbf{x}_2$ influence le champ acoustique et doit être considérée. A l'inverse, dans la zone grisée, les vitesses acoustiques sont supérieures à la vitesse d'expansion latérale de la source thermique. La diffusion thermique suivant $\mathbf{x}_2$ n'influe pas sur le

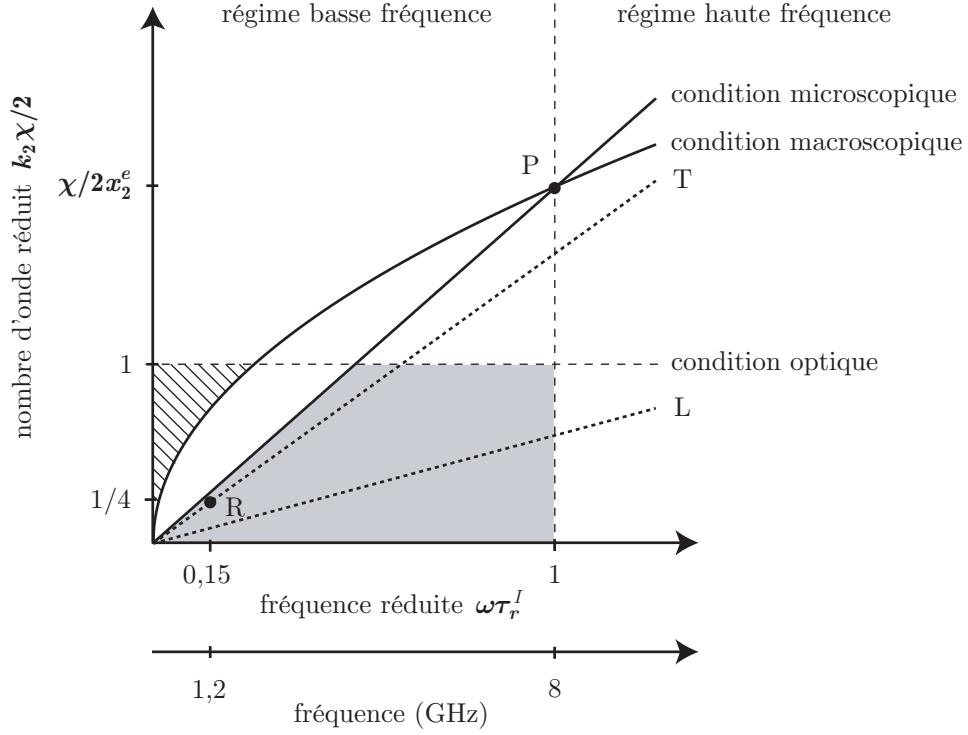


FIG. 3.1 – La répartition spatiale du champ de température est représentée dans le régime basse fréquence $\omega\tau_r^I \ll 1$. La zone hachurée correspond à des vitesses acoustiques inférieures à la vitesse d'expansion latérale de la source. La diffusion thermique suivant x_2 influence le champ acoustique et doit être considérée. A l'inverse, dans la zone grisée, les vitesses acoustiques sont supérieures à la vitesse d'expansion latérale de la source thermique. La diffusion thermique suivant x_2 n'influe pas sur le champ acoustique, et peut être négligée. Les droites en pointillés décrivent les courbes de dispersion des ondes longitudinales L et transverses T. Le point noté R représente l'onde de Rayleigh.

champ acoustique, et peut être négligée. La zone blanche intermédiaire décrit la transition entre les deux régimes précédents. Les vitesses acoustiques y sont supérieures à la vitesse d'expansion macroscopique de la source, mais inférieures à la vitesse de création de la source.

Ainsi, il est observé géométriquement que, plus le point P est situé vers les hautes fréquences, c'est-à-dire plus le rapport $k_2/\omega = \tau_r^I/x_2^e = C_l^I/(\kappa_2^I g_I)^{1/2}$ est faible, plus la zone hachurée, où la diffusion thermique gêne la diffraction acoustique, est étendue. Cette condition est satisfaite dans les matériaux où la distance de diffusion électronique est faible ($g_I \rightarrow +\infty$).

3.1.2.2 Régime haute fréquence

Le régime haute fréquence $\omega\tau_r^I \gg 1$ est à présent considéré. Les parties réelle et imaginaire de Γ_I sont séparées à partir de l'équation (3.4) :

$$\mathcal{Re}(\Gamma_I) = \left\{ \frac{1}{2\kappa_1^I} \left(\sqrt{(k_2^2 \kappa_2^I + g_I)^2 + (\omega C_e^I)^2 + k_2^2 \kappa_2^I + g_I} \right) \right\}^{1/2} \quad (3.11)$$

$$\mathcal{Im}(\Gamma_I) = \left\{ \frac{1}{2\kappa_1^I} \left(\sqrt{(k_2^2 \kappa_2^I + g_I)^2 + (\omega C_e^I)^2 - k_2^2 \kappa_2^I - g_I} \right) \right\}^{1/2} \quad (3.12)$$

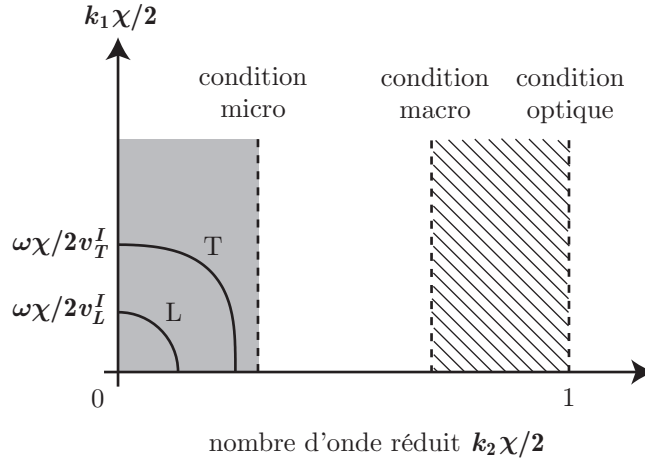


FIG. 3.2 – La projection des lenteurs de phase pour les ondes longitudinale (L) et transverse (T) est représentée. Cette vue correspond à une coupe de la figure 3.1 à $\omega\tau_r^I$ fixé. Ainsi, les zones thermiques définies précédemment sont superposées aux lenteurs acoustiques.

Afin d'étudier l'évolution latérale du champ de température, étant donnée la forme des équations ci-dessus, $k_2^2\kappa_2^I$ doit être comparé à g_I et à ωC_e^I . De la même manière que pour les basses fréquences, les conditions critiques suivantes sont obtenues :

$$\begin{aligned} k_2^2\kappa_2^I = g_I &\Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2} \left(\frac{g_I}{\kappa_2^I} \right)^{1/2} \Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2x_2^e} \\ k_2^2\kappa_2^I = \omega C_e^I &\Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2} \left(\omega \frac{C_e^I}{\kappa_2^I} \right)^{1/2} \Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2x_2^e} \left(\frac{\tau_e^I}{\tau_r^I} \right)^{1/2} (\omega\tau_r^I)^{1/2} \end{aligned} \quad (3.13)$$

où $\tau_e^I = C_e^I/g_I$ est le temps de relaxation des électrons. La condition la plus contraignante est imposée par la première équation. Elle montre en effet que les longueurs d'onde générées par diffraction sont limitées par l'expansion latérale instantanée de la source due à la diffusion électronique sur une distance x_2^e . La seconde condition provient de la relaxation de la source électronique par couplage avec les phonons.

Dans l'or, où la distance de diffusion électronique est importante, x_2^e est de l'ordre de 125 nm. Or, la meilleure focalisation obtenue dans les expériences est de l'ordre de 500 nm pour la pompe. Par conséquent, l'expansion latérale instantanée de la source par diffusion électronique doit être considérée à haute fréquence. Il en résulte une augmentation de la dimension latérale effective de la source, qui limite la diffraction acoustique.

3.1.3 Lien entre la diffusion électronique latérale et la diffraction acoustique

Les champs de températures sont décrits à l'aide du modèle à deux températures, et leur évolution spatiale dépend de k_2 à travers le coefficient de diffusion thermique Γ_I . Les contraintes thermiques qu'ils génèrent sont ensuite introduites dans l'équation d'onde (1.6). C'est donc la diffusion thermique qui gouverne le caractère bidimensionnel de la source acoustique. L'extension latérale de cette dernière dépend alors du régime fréquentiel considéré.

Pour les hautes fréquences telles que $\omega\tau_r^I \gg 1$, l'expansion latérale instantanée de la source par diffusion électronique limite la diffraction acoustique et doit être considérée. En revanche,

pour qu'il y ait diffraction acoustique à basse fréquence, c'est-à-dire $\omega\tau_r^I \ll 1$, il faut que les vitesses acoustiques soient supérieures à la vitesse d'expansion latérale de la source thermique. Cette condition va maintenant être explicitée à partir des surfaces de lenteur, puis des courbes de dispersion acoustiques. A titre d'illustration, celles-ci seront évaluées dans le cas d'un film d'or isotrope transverse.

3.1.3.1 Condition sur les lenteurs de phase acoustiques

La projection des lenteurs de phase pour les ondes longitudinale (L) et transverse (T) sur le plan $(k_1\chi/2, k_2\chi/2)$ est représentée sur la figure 3.2. Cette vue correspond à une coupe de la figure 3.1 à $\omega\tau_r^I$ fixé. Les zones thermiques définies précédemment sont alors superposées aux lenteurs acoustiques.

Pour qu'il y ait de la diffraction, il faut que les vitesses acoustiques soient supérieures à la vitesse d'expansion latérale de la source thermique. Il est donc nécessaire que les courbes de lenteur de phase soient comprises dans la zone grise. Cela implique que la lenteur du mode $n = L, T$ considéré soit inférieure à la condition microscopique décrite par la première équation du système (3.9) :

$$\frac{\omega\chi}{2v_n^I} < \frac{\chi\omega\tau_r^I}{2x_2^e} \Leftrightarrow v_n^I > \frac{x_2^e}{\tau_r^I} \quad (3.14)$$

où v_n^I est la célérité de phase du mode n . Il faut donc que la vitesse acoustique soit supérieure à la vitesse de création de la source thermique par couplage électron-phonon [98]. Plus le rapport $x_2^e/\tau_r^I = (\kappa_2^I g_I)^{1/2}/C_l^I$ est petit, mieux cette condition est vérifiée. Ainsi, il apparaît que la diffraction acoustique est favorisée dans les matériaux où la constante de couplage g est faible.

3.1.3.2 Condition sur les courbes de dispersion acoustiques

Il est également possible de retrouver les résultats précédents en considérant les courbes de dispersion acoustiques. Cela permet d'obtenir une vision complémentaire de celle fournie par les courbes de lenteurs.

Pour qu'il y ait diffraction acoustique à basse fréquence, il est nécessaire que les courbes de dispersion acoustiques intersectent la zone grisée de la figure 3.1. Les courbes de dispersion acoustiques sont obtenues par la relation suivante :

$$k_2 = \frac{\omega}{v_n^I} \Leftrightarrow \frac{k_2\chi}{2} = \frac{\chi}{2v_n^I\tau_r^I}\omega\tau_r^I \quad (3.15)$$

Afin que ces droites soient dans la zone grisée, il faut que leurs coefficients directeurs soient plus petits que celui de la droite définie par la première équation du système (3.9) :

$$\frac{\chi}{2v_n^I\tau_r^I} < \frac{\chi}{2x_2^e} \Leftrightarrow v_n^I > \frac{x_2^e}{\tau_r^I} \quad (3.16)$$

La même condition que celle obtenue à partir des courbes de lenteur est ainsi retrouvée. Les courbes de dispersion des modes longitudinal (L) et transverse (T) sont évaluées avec les vitesses de phase sur la surface $v_L^I = (C_{22}^I/\rho_I)^{1/2} = 3.30$ nm/ps et $v_T^I = (C_{66}^I/\rho_I)^{1/2} = 1.25$ nm/ps pour l'or. Elles sont superposées aux conditions thermiques exposées précédemment, et tracées en pointillés sur la figure 3.1.

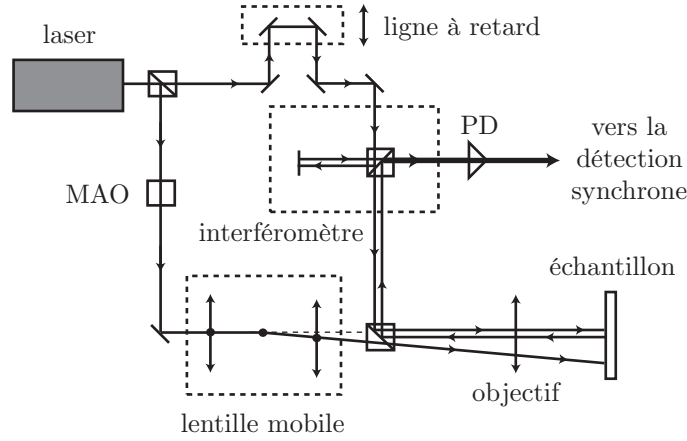


FIG. 3.3 – Montage interférométrique basé sur une source laser Ti :Saphir (796 nm, 82 MHz, 5 nJ, 100 fs). Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés par un objectif de microscope. Le jeu de deux lentilles de plans focaux confondus, dont la seconde est mobile, permet de modifier l'écart entre les faisceaux pompe et sonde sur la surface de l'échantillon.

Il apparaît alors qu'elles sont dans la zone grisée et que, par conséquent, la diffraction acoustique pour les ondes de volumes n'est pas gênée par la diffusion électronique dans l'or. En revanche, la courbe de dispersion du mode transverse intersecte la condition optique (ligne pointillée sur la figure 3.1) autour de 5 GHz. Au-delà de cette limite, il n'est pas possible qu'une onde transverse soit diffractée. La diffraction de l'onde transverse est donc essentiellement limitée par la dimension latérale de la source optique.

3.1.3.3 Cas de l'onde de Rayleigh

La même étude est à présent menée pour l'onde de Rayleigh. Sa longueur d'onde est estimée par 2χ , c'est-à-dire $k_2\chi/2 = 1/4$, et sa célérité v_R^I est assimilée à celle de l'onde transverse v_T^I sur la surface. Elle est représentée par le point R sur la figure 3.1. Elle est donc très proche de la condition microscopique imposée par le modèle à deux températures. Dès lors, elle devrait être sensible à la diffusion électronique. Cette hypothèse sera discutée dans les paragraphes suivants à partir des résultats expérimentaux.

Cette étude analytique démontre donc que, contrairement à ce que pourrait laisser penser un raisonnement intuitif, la diffusion électronique latérale a un effet sur le caractère bidimensionnel du champ de température à basse fréquence. Cela n'est pas sensible sur les ondes acoustiques de volume dans l'or. En revanche, en ce qui concerne l'onde de Rayleigh, l'influence de la diffusion électronique semble non négligeable. Cette conclusion sera illustrée dans la section 3.3.2.

3.2 Description du dispositif expérimental

Lorsque la taille de la source est réduite, le champ de température, et par conséquent le champ acoustique, revêtent un caractère bidimensionnel. Dans le cadre d'expériences d'acoustique picoseconde, les fréquences générées sont de l'ordre de la dizaine de gigahertz. Pour être sensible à la diffraction, il faut donc une extension latérale de la source laser de l'ordre du

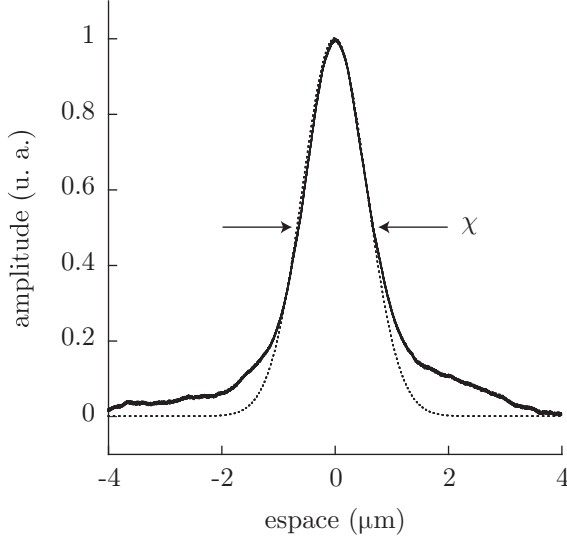


FIG. 3.4 – Une gaussienne de FWHM χ (pointillés) est ajustée sur la corrélation croisée des faisceaux pompe et sonde (trait plein).

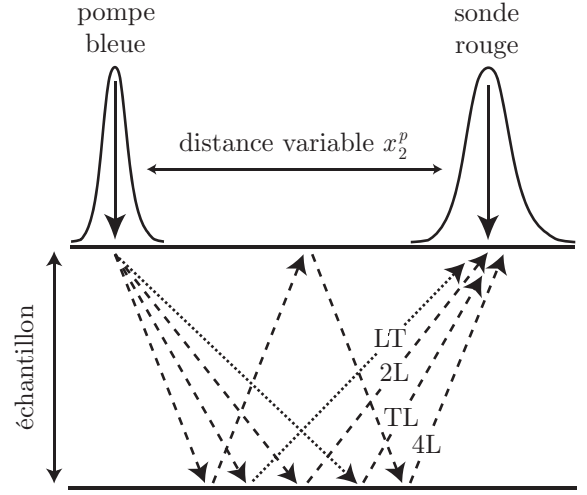


FIG. 3.5 – Les réflexions des ondes longitudinales (trait discontinu) et transverses (pointillés) sont distinguées. Les chemins des ondes réfléchies avec (LT , TL) ou sans ($2L$, $4L$) conversion de mode sont représentés pour une distance pompe-sonde x_2^p .

micromètre. Pour ce faire, les faisceaux pompe et sonde sont focalisés à travers un objectif de microscope [25, 26] comme indiqué sur la figure 3.3.

La dimension de tache focale obtenue en focalisant les faisceaux laser pompe et sonde dépend du grandissement³ de l'objectif utilisé, ainsi que de la longueur d'onde optique λ_r . En effet, le processus de focalisation est limité par la diffraction optique, et il est impossible d'atteindre des tailles inférieures à $\lambda_r/2$. Par conséquent, la couleur du laser est modifiée pour optimiser la focalisation. La longueur d'onde du laser, utilisée pour la sonde, est initialement $\lambda_r=796$ nm (proche infra-rouge), tandis que le faisceau pompe passe à travers un cristal doubleur afin d'obtenir une longueur d'onde $\lambda_b=398$ nm (bleu). Dès lors, l'extension latérale de la sonde est deux fois plus grande que celle de la pompe.

Un objectif de grandissement $\times 100$ permet d'obtenir une tache focale dont le diamètre est de $1\text{ }\mu\text{m}$ environ [27]. Cette valeur peut varier, selon que l'échantillon est placé plus ou moins exactement au point de focalisation de la pompe et de la sonde à la fois. La distribution spatiale de l'intensité des faisceaux pompe et sonde est définie par des fonctions gaussiennes de FWHM respectives χ_b et χ_r . Par la suite, l'extension latérale des taches focales est confondue avec les FWHM. Afin d'estimer cette dernière, une corrélation croisée spatiale des faisceaux est effectuée. Sur la figure 3.4, une gaussienne de FWHM $\chi = (\chi_b^2 + \chi_r^2)^{1/2} = 1.2\text{ }\mu\text{m}$ est ajustée sur le motif obtenu, à titre d'exemple.

Puisque la distance de travail de l'objectif est de l'ordre du millimètre, les faisceaux pompe et sonde ne peuvent pas être focalisés sur la même face de l'échantillon par des objectifs différents; ils doivent donc passer à travers le même objectif. Par conséquent, une lentille mobile, représentée sur la figure 3.3, est utilisée pour modifier légèrement l'angle d'incidence de la pompe

³Le grandissement est le rapport de la taille d'un objet à la taille de son image dans le plan focal d'un système optique.

sur l'objectif, et déplacer ainsi le faisceau sur la surface de l'échantillon [28]. Comme indiqué sur la figure 3.5, si la pompe et la sonde ne sont pas aux mêmes positions, des ondes acoustiques se propageant dans des directions obliques sont observées. La distance pompe-sonde est ensuite augmentée afin d'obtenir des informations sur le matériau dans ces directions. Des ondes longitudinales et transverses peuvent alors être détectées.

En outre, des ondes de surface apparaissent, se propageant entre la pompe et la sonde. Elles englobent les ondes de têtes, les ondes rasantes longitudinales et transverses, et l'onde de Rayleigh [99]. Cette dernière est ici distinguée. Provenant d'une combinaison d'ondes longitudinales et transverses, elle se propage le long de la surface sans dispersion. Sa célérité est légèrement inférieure à celle de l'onde transverse. Sa longueur d'onde Λ est imposée par l'extension latérale de la source optique. Au regard de l'étude menée au paragraphe 3.1.3, celle-ci est plus grande que la pénétration optique, le contenu fréquentiel de l'onde de Rayleigh est par conséquent plus basse fréquence que celui des ondes de volume. Elle devrait donc, à ce titre, être plus sensible à la diffusion électronique. Cette onde provoque une perturbation présente jusqu'à une profondeur de l'ordre de Λ [100]. Lorsque Λ n'est plus petite devant l'épaisseur d du film, l'onde de Rayleigh devient alors dispersive.

Le déplacement de la surface dans des films d'or de différentes épaisseurs, déposés sur des substrats de silicium, est mesuré par détection de distorsion de faisceau [101]. En introduisant un diaphragme sur le trajet de la sonde, une partie de la photodiode est alors masquée, et la variation d'intensité du faisceau est mesurée⁴. Au contraire d'un montage interférométrique classique [63], cette technique simple ne nécessite pas de bras de référence pour faire interférer le faisceau réfléchi par l'échantillon. Le signal obtenu est alors riche des contributions de l'interférométrie, de la réflectométrie et du déplacement de la surface libre ; leur pondération dépend du matériau considéré. Dans le cas de l'or, le terme lié au déplacement de la surface est prédominant aux fréquences acoustiques [101]. Cependant, les fréquences les plus basses, correspondant au fond thermique, proviennent également de la réflectométrie.

3.3 Comparaison des signaux expérimentaux et théoriques obtenus dans un film d'or

3.3.1 Configuration unidimensionnelle

Une littérature abondante existe sur les films minces d'or [102, 52, 45, 103] et permet l'estimation d'une partie des grandeurs mécanique, thermique et électronique. De façon à valider celles-ci pour l'échantillon considéré ici, des mesures expérimentales sont d'abord effectuées dans le cas unidimensionnel pour un film de $1.3 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les résultats sont présentés sur la figure 3.6. Les faisceaux sont ici focalisés avec un objectif de grandissement $\times 20$ et $\chi = 10 \mu\text{m}$. Les deux pics apparaissant à 0,8 et 1,6 ns correspondent aux arrivées des échos longitudinaux $2L$ et $4L$. Il n'y a pas d'effet de diffraction puisque la taille de la source laser est large.

Les calculs semi-analytiques sont ensuite comparés aux mesures expérimentales sur la figure 3.6. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (trait discontinu) et à deux

⁴Cette technique a été introduite en anglais sous le nom "Beam Distortion Detection" (BDD).

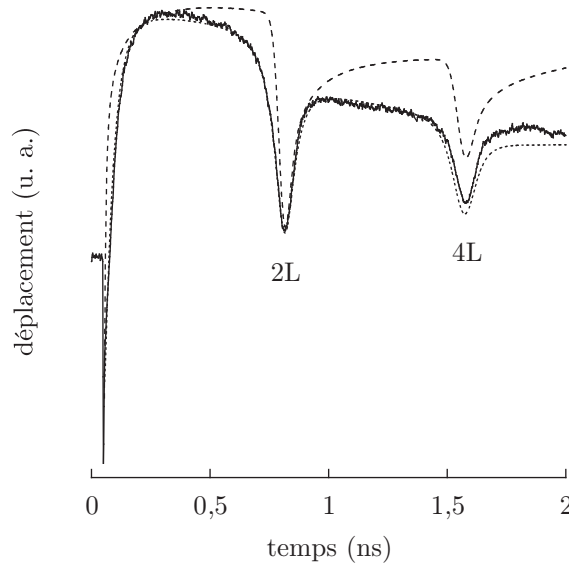


FIG. 3.6 – Comparaison entre les données expérimentales (trait plein) et le calcul théorique du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $1.3 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 10 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (trait discontinu) et à deux températures (pointillés) sont représentés. Les échos longitudinaux $2L$ et $4L$ sont observés.

températures (pointillés) sont représentés. Les valeurs numériques utilisées sont indiquées en annexe B ; seuls les coefficients d'élasticité ont été ajustés à partir des valeurs données par M. Perton [28]. Un modèle de diffusion macroscopique, s'il est suffisant pour estimer les temps d'arrivée, ne permet pas de représenter fidèlement les échos acoustiques. La largeur de ces derniers est sous-estimée puisque la diffusion électronique n'est pas prise en compte. En outre, la diffusion parabolique rend les échos dissymétriques.

En revanche, un très bon accord entre les données expérimentales et le modèle à deux températures est observé. La légère différence apparaissant sur le deuxième écho longitudinal provient d'une mésestimation de l'interface film/substrat d'un point de vue thermique, principalement, et acoustique. La concordance des deux approches montre que les valeurs numériques permettent de représenter les signaux expérimentaux issus de la technique BDD. Ainsi est mis en exergue, de la même manière que pour le tungstène précédemment, l'apport du modèle à deux température pour la description de la forme des échos acoustiques pour des tailles de sources larges. L'effet de la diffusion électronique sur la diffraction acoustique est à présent considéré à travers des configurations bidimensionnelles.

3.3.2 Configuration bidimensionnelle

Afin d'augmenter les effets de diffraction, un film d'or de $2.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur est maintenant utilisé, et la source laser est focalisée de telle sorte que $\chi = 1 \mu\text{m}$. Les signaux expérimentaux issus de la technique BDD sont ensuite tracés sur la figure 3.7 pour une distance pompe-sonde nulle (à l'épicentre de la génération acoustique). En plus des échos longitudinaux $2L$ et $4L$ apparaît maintenant l'onde de Rayleigh R , visible autour de 1 ns . Etant donné que sa longueur d'onde est plus petite que l'épaisseur du film, elle devrait être peu sensible à la dispersion. Il

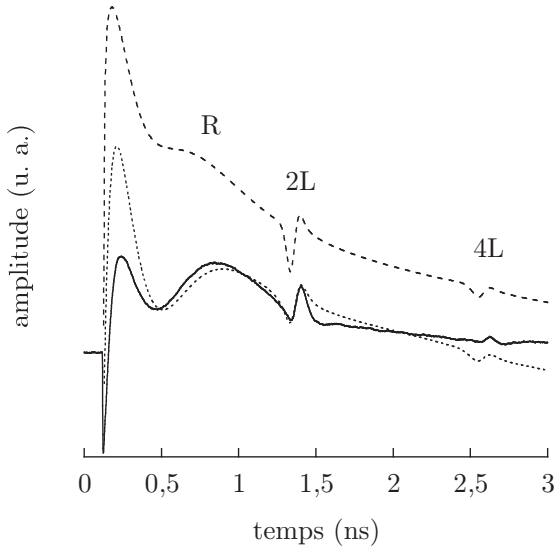


FIG. 3.7 – Mesure à l'épicentre (trait plein) du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $2.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 1 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (traits discontinus) et électronique (pointillés) sont représentés.

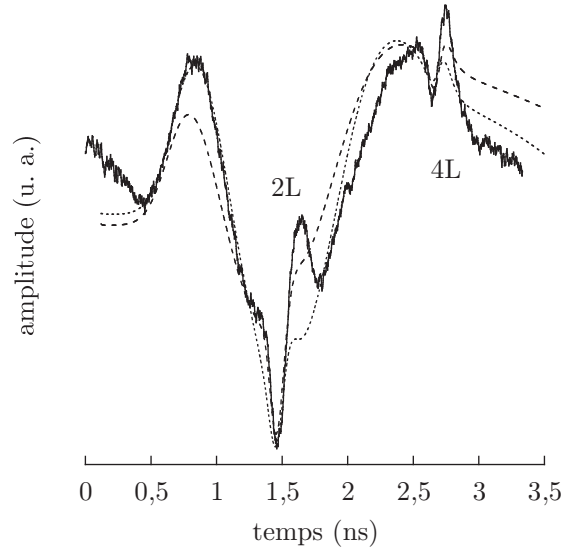


FIG. 3.8 – Mesure à $2 \mu\text{m}$ de l'épicentre (trait plein) du déplacement de la surface libre d'un film d'or de $2.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur un substrat de silicium, pour $\chi = 1 \mu\text{m}$. Les résultats issus des modèles de diffusion parabolique (traits discontinus) et électronique (pointillés) sont représentés.

apparaît clairement sur la figure 3.7 que, comme énoncé précédemment, son contenu fréquentiel est plus faible que celui des ondes longitudinales. Les modèles de diffusion parabolique (traits discontinus) et à deux températures (pointillés) sont utilisés pour représenter les signaux (les résultats du modèle parabolique sont décalés verticalement pour ne pas être superposés aux résultats du modèle à deux températures).

Le modèle à deux températures présente alors deux avantages. Il permet, comme attendu, d'améliorer la description des échos acoustiques dus aux ondes de volume longitudinales. En outre, ainsi qu'il avait été prédit théoriquement dans l'équation (3.3), il influence la représentation des basses fréquences constituant l'onde de Rayleigh, en prenant en compte le temps de relaxation du réseau τ_r . De plus, la diffusion électronique dans la direction $\mathbf{x}_1$ favorise la génération latérale⁵. L'onde de Rayleigh basse fréquence est ainsi parfaitement décrite, contrairement au modèle parabolique. Cependant, dans cette configuration 2D, et quel que soit le modèle utilisé, une légère décroissance exponentielle semble écarter les calculs des résultats expérimentaux. Les mesures BDD contiennent à présent, en plus de la contribution du déplacement pur, la contribution de la réflectométrie [101] à travers le couplage thermo-optique. Cette participation n'est pas prise en compte théoriquement en 2D.

En augmentant la distance pompe-sonde comme indiqué sur la figure 3.5, les résultats de la figure 3.8 sont obtenus à $2 \mu\text{m}$ de l'épicentre. Les échos longitudinaux 2L et 4L sont toujours identifiés, mais l'onde de Rayleigh se superpose maintenant à ces derniers. Elle a en effet parcouru $2 \mu\text{m}$, et son temps d'arrivée est donc modifié. En outre, la limite du champ proche peut être

⁵La diffusion électronique peut être vue comme une augmentation de la pénétration optique.

estimée, pour une onde monochromatique, par $x_2^d = \chi^2/\lambda$ avec λ la longueur d'onde considérée. Dans le cas de l'onde de Rayleigh, il est supposé que $\lambda = 2\chi$, donc $x_2^d = \chi/2 = 0.5 \mu\text{m}$. Dès lors, à $2 \mu\text{m}$ de l'épicentre, l'onde de Rayleigh est détectée en champ lointain. Puisqu'à l'épicentre sa forme est monopolaire (champ proche), elle est bipolaire à $2 \mu\text{m}$.

Les amplitudes des échos longitudinaux sont sous-estimées par les deux modèles. Cette tendance était déjà observable à l'épicentre. Cela peut être dû à la qualité de l'interface, qui est sensible aux conditions de préparation. L'adhésion du film d'or sur le substrat de silicium est en effet liée à l'oxide SiO_2 qui se crée à l'interface, au moment de la déposition [104]. En outre, l'or et le silicium s'entremêlent au niveau atomique pour former un alliage [105]. Un gradient de propriétés mécanique et thermique se forme alors entre le film et le substrat, changeant ainsi les conditions de réflexion des ondes acoustiques. En revanche, l'onde de Rayleigh, peu sensible à l'interface car sa longueur d'onde est inférieure à l'épaisseur du film, est toujours très bien décrite par le modèle à deux températures, ce qui n'est pas le cas du modèle parabolique.

Le fait que le pic dû à l'onde de Rayleigh, observé vers 0.7 ns , soit minimisé par le modèle parabolique indique que la limite de champ proche x_2^d , et donc la longueur d'onde, est sous-évaluée. Le modèle à deux températures prend en compte l'élargissement latéral de la source laser dû à la diffusion électronique dans la direction $\mathbf{x}_2$. C'est ce qui permet, hors épicentre, la description fidèle du contenu basse fréquence de l'onde de Rayleigh.

3.4 Conclusion

A partir du modèle à deux températures, une étude analytique sur les fréquences temporelles et les longueurs d'onde spatiales a montré que la diffusion électronique empêche la diffraction acoustique à haute fréquence, lorsque la tache focale est plus large que la distance de diffusion électronique. Pour être sensible à de tels effets à haute fréquence, une focalisation inférieure à la centaine de nanomètres est nécessaire, ce qui semble difficile à réaliser à l'heure actuelle.

En revanche, il a été démontré que, à basse fréquence, le rôle de la diffusion électronique sur la diffraction acoustique n'est plus négligeable. La représentation théorique des observations expérimentales faites dans un film d'or sur l'onde de Rayleigh basse fréquence confirme cette déduction. Un écart entre les calculs et les données expérimentales subsiste en raison de l'interface or/silicium qui n'est pas complètement décrite. Le modèle à deux températures présenté dans ce chapitre offre la précision nécessaire pour prétendre à caractériser cette dernière en implémentant, dans la simulation actuelle, des modèles la décrivant.

En outre, il serait intéressant d'analyser la description de l'onde de Rayleigh par le modèle hyperbolique, plus simple à mettre en œuvre pour une représentation uniquement basse fréquence des ondes acoustiques.

Conclusion

La génération photo-élastique dans les métaux par une impulsion laser focalisée, de durée inférieure à la picoseconde, a été introduite. Pour y parvenir, le modèle à deux températures a été étendu au cas tridimensionnel. Le cas d'un film métallique, déposé sur un substrat semi-infini où les effets électroniques sont négligés, a été considéré. La résolution analytique des équations thermiques et acoustiques, dans l'espace dual des fréquences et des nombres d'onde, a permis une étude théorique et une comparaison avec des résultats expérimentaux obtenus dans des films de tungstène et d'or.

Dans les configurations unidimensionnelles, lorsque l'extension latérale de la source optique est grande devant l'épaisseur du film, la précision de la description des échos acoustiques dans des films d'or et de tungstène a été vérifiée. En outre, la prise en compte simultanée des couplages élasto-optique et thermo-optique, et plus particulièrement la contribution de la température électronique au changement de réflectivité, offre la possibilité de représenter complètement les mesures expérimentales. Les signaux acoustique et thermique, notamment le pic de coïncidence, sont ainsi décrits fidèlement avec un unique jeu de paramètres, quelle que soit l'échelle temporelle.

L'analyse de l'influence de la durée d'impulsion a identifié la contribution des oscillations Brillouin au signal acoustique mesuré en réflectométrie dans les films fortement absorbants. Un effet de filtre, permettant notamment de supprimer les oscillations Brillouin du signal acoustique pur, a alors été mis en évidence. La même étude pourrait être conduite dans les semi-conducteurs, afin d'isoler les échos acoustiques des oscillations optiques hautes fréquences. En outre, un maximum de génération acoustique pour des impulsions dimensionnées de façon à obtenir un maximum de température du réseau constant a été mis en exergue. Une étude expérimentale dans un matériau à faible capacité calorifique permettrait d'illustrer cette prédiction.

Dans les configurations bidimensionnelles, l'effet de la diffusion électronique sur la diffraction acoustique, décrite par le modèle à deux températures, a été démontré. Une étude analytique du comportement théorique à basse fréquence, ainsi que des expériences menées sur un film d'or, ont justifié cette conclusion. A l'épicentre, la prise en compte de la diffusion électronique en profondeur offre une description parfaite de l'amplitude et de la forme de l'onde de Rayleigh, dont le contenu spectral est basse fréquence. Hors épicentre, c'est la diffusion électronique latérale qui permet la représentation exacte de la limite de champ proche pour cette onde. Etant donné le parallèle qui a été fait, à basse fréquence, avec le modèle hyperbolique, il serait intéressant d'analyser la description de l'onde de Rayleigh par ce dernier.

Bien qu'il n'y ait pas d'effet sur les hautes fréquences lorsque l'extension latérale de la source optique est inférieure à la distance de diffusion des électrons, le modèle est donc nécessaire à

la description de la diffraction dans les métaux. L'amélioration de la résolution temporelle, en utilisant des impulsions plus courtes [106] permet déjà une analyse précise du couplage photo-thermique à une échelle microscopique. En outre, l'emploi de sources de dimensions spatiales inférieures à la distance de diffusion des électrons [107] mettrait en évidence, à haute fréquence, une influence des processus microscopiques sur la diffraction acoustique.

Cette étude permet de compléter la gamme des matériaux pouvant être modélisés lors d'expériences d'acoustique picoseconde. Une approche plus fine consisterait maintenant à prendre en compte la propagation balistique des électrons [108], en modifiant conséquemment les distributions des électrons et des phonons.

La description de la génération en acoustique picoseconde est nécessaire pour comprendre les phénomènes thermiques et élastiques en présence. Cependant, leur détection doit être explicitée. Si cette dernière est largement documentée dans les cas unidimensionnels, les configurations bidimensionnelles n'ont jamais été étudiées. C'est ainsi l'objet de la seconde partie de ce mémoire.

Deuxième partie

Détection par couplage élasto-optique 3D d'un champ acoustique diffracté

Introduction

L'impulsion pompe est absorbée par la matière et, par couplage photo-élastique, génère un champ acoustique qui diffracte. Les caractéristiques de celui-ci ont été analysées dans la première partie de ce mémoire. Les mécanismes électromagnétiques permettant la détection de cette perturbation élastique sont à présent examinés dans cette seconde partie.

De la même manière que l'impulsion pompe, l'impulsion sonde se réfléchit partiellement sur la surface de l'échantillon. L'énergie transmise pénètre alors dans la matière où elle est absorbée, sur une distance plus ou moins courte selon les propriétés optiques du milieu considéré. Dans cette zone de pénétration optique, le faisceau sonde, moins énergétique que le faisceau pompe, ne génère pas d'onde élastique. En revanche, au travers du couplage élasto-optique, il interagit avec le champ acoustique diffracté généré par l'impulsion pompe. C'est par ce mécanisme que la détection optique des ondes élastiques est rendue possible.

La détection optique est donc sensible au déplacement de la surface libre où il y a réflexion partielle, ainsi qu'à la propagation acoustique en profondeur. Le déplacement de la surface libre modifie le chemin optique parcouru par le champ électromagnétique réfléchi ; il n'affecte par conséquent que sa phase. Lorsque le champ acoustique diffracté se propage au sein du matériau, la déformation induite modifie l'indice optique à son passage par couplage élasto-optique. Le milieu devient alors anisotrope au regard de la propagation optique, et le faisceau sonde est diffracté.

Dans le cas d'impulsions d'une durée de l'ordre de la nanoseconde, si la profondeur de pénétration optique est plus petite que les longueurs d'onde constituant le champ acoustique diffracté, l'interaction élasto-optique peut être négligée. Dès lors, le déplacement de la surface libre suffit seul à décrire le processus de détection. C'est notamment le cas lorsque des matériaux fortement absorbants sont étudiés, c'est-à-dire lorsque la pénétration optique est faible devant la longueur d'onde acoustique. À l'inverse, quand des matériaux transparents sont considérés, c'est-à-dire quand la pénétration optique est de l'ordre du millimètre, le couplage élasto-optique doit être pris en compte.

Dans le cas d'impulsions de durées inférieures à la picoseconde, les longueurs d'onde acoustiques sont essentiellement imposées par la profondeur de pénétration optique [109]. Par conséquent, l'interaction élasto-optique ne peut plus être négligée. Cependant, selon que la phase ou l'amplitude du champ optique diffracté est considérée, certaines approximations peuvent être faites. En effet, lorsque la pénétration optique est faible, l'influence du déplacement de la surface libre est bien supérieure à celle de la déformation en profondeur. Alors la variation de phase

du champ optique diffracté peut être assimilée au déplacement de la surface libre seul. Mais, dès que l'amplitude du champ optique diffracté est examinée, ou dès que la pénétration optique augmente, le couplage élasto-optique doit être apprécié.

Ainsi, pour l'étude de la réponse de matériaux transparents, et ce quel que soit le régime d'impulsion, ou pour l'évaluation de l'amplitude du champ optique diffracté pour des impulsions sub-picoseconde, le couplage élasto-optique doit être considéré.

L'historique de la détection est évidemment étroitement lié à celui de la génération. A la fin du XIX^{ème} siècle, F. Pockels [12] mit en évidence l'effet de la déformation subie par un cristal sur la propagation d'un champ électrique en son sein. Cette interaction fut par la suite largement utilisée en photo-élasticité [110] pour visualiser des champs de contraintes statiques. Puis L. Brillouin [13] décrivit théoriquement l'interaction entre une onde acoustique, créant une répartition sinusoïdale de pression propagative, et une onde lumineuse. Il mit alors en évidence, avec la conservation des moments [111], l'existence de directions de diffraction privilégiées. Dix ans plus tard, R. Lucas et P. Biquard [112] mesurèrent plusieurs régimes basés sur cette théorie. Ils observèrent la diffusion de la lumière lorsque la longueur d'onde acoustique était plus grande que la longueur d'onde optique, et de la diffraction dans le cas contraire. C'est cette seconde configuration qui fera l'objet de cette partie.

La propagation de l'onde de déformation au sein du matériau modifie l'indice optique de façon périodique et transitoire. Ce réseau de propriétés optiques diffracte alors la lumière et des interférences, qui affectent à la fois l'amplitude et la phase du champ optique, se produisent. Ce phénomène apparaît dans les matériaux transparents sous forme d'oscillations [8] appelées oscillations Brillouin. Ce processus d'interaction, base de la détection en acoustique picoseconde, a été décrit dans la littérature pour des cas unidimensionnels [69, 113]. Néanmoins, dans le cas d'une génération quasi-ponctuelle, traité dans la première partie de ce travail, et d'une détection quasi-ponctuelle, les signaux expérimentaux ont démontré l'existence d'ondes transverses [27, 28]. C'est le signe que les processus de détection optique sont sensibles à la diffraction acoustique.

Dès lors, la diffraction acoustique, engendrée par l'extension latérale finie de la source laser, impose d'étudier l'interaction entre le champ acoustique tridimensionnel et le faisceau sonde gaussien.

Il s'agit d'une interaction complexe puisqu'elle fait intervenir des aspects tridimensionnels, à la fois d'un point de vue acoustique et optique. La démarche suivie dans la seconde partie de ce mémoire pour analyser ce couplage est donc détaillée sur la figure 3.9 ; celle-ci peut être séparée en deux colonnes. Celle de gauche correspond à l'examen du champ acoustique effectué dans la première partie. Tout d'abord, la transformée de Hankel a permis de se ramener analytiquement à un problème bidimensionnel, c'est-à-dire à une source laser linéique. Puis, afin de rendre ordinaires les équations décrivant la propagation acoustique, une double transformée de Fourier en temps et en espace a été appliquée. Ainsi qu'il a été démontré dans la première partie, cette opération mathématique est considérée comme une décomposition du champ acoustique en une somme continue d'ondes planes monochromatiques se propageant dans des directions définies par les vecteurs d'onde, comme illustré sur la figure 3.10.

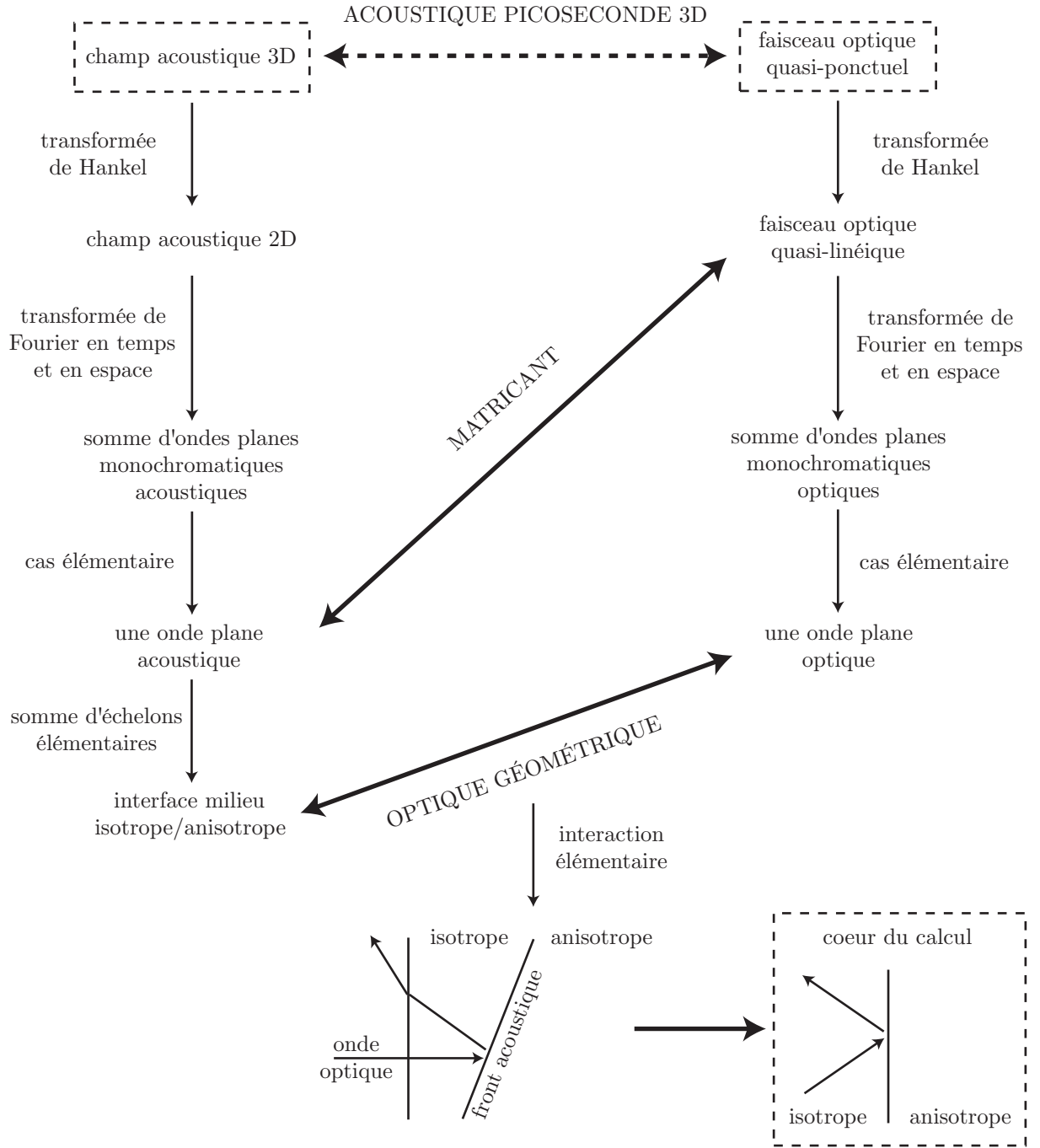


FIG. 3.9 – Principes et étapes permettant de décrire l'interaction d'un faisceau optique gaussien avec un champ acoustique 3D. Les deux colonnes représentent, de gauche à droite, le traitement analytique du champ acoustique 3D, et du faisceau optique gaussien. Les flèches entre les deux colonnes relient les niveaux où l'interaction élasto-optique est décrite, ainsi que le modèle correspondant.

La colonne de droite représente quant à elle le traitement analytique du faisceau optique gaussien. De la même manière que pour le champ acoustique, une transformée de Hankel et une double transformée de Fourier permettent de décomposer le faisceau optique quasi-ponctuel en une somme d'ondes planes monochromatiques. Alors, le couplage élasto-optique se réduit à l'étude de la diffraction d'une onde plane optique par une onde plane acoustique, comme

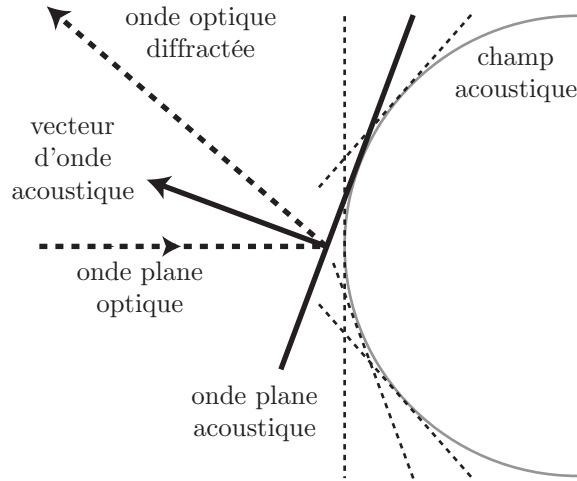


FIG. 3.10 – Le champ acoustique est décomposé en une somme d’ondes planes. Chaque onde plane optique incidente est ensuite diffractée indépendamment par chaque onde plane acoustique.

décrit par la figure 3.10. Afin de simplifier cette interaction, et d’identifier les mécanismes physiques à l’œuvre, chaque onde acoustique plane monochromatique est décomposée en une somme de fronts acoustiques élémentaires, correspondant chacun à une interface optique entre un milieu isotrope et un milieu anisotrope. Le cœur du calcul, représenté en bas de la figure 3.9, correspond alors simplement à la propagation optique en incidence oblique à travers une interface.

Le premier chapitre de cette partie sera consacré à la théorie de la propagation optique dans les milieux anisotropes, ainsi qu’à la définition tensorielle du couplage élasto-optique. Cette étape préliminaire servira de base à la compréhension des développements effectués plus loin.

Le second chapitre décrira l’interaction d’une onde plane optique avec une onde plane acoustique. Cette dernière y sera décomposée en une somme d’interfaces optiques élémentaires, et le problème sera traité par l’optique géométrique. En retrouvant de façon simple des résultats issus de la littérature et en les généralisant, cette étape permettra de comprendre l’origine physique du changement de réflectivité. Cependant, elle est difficile à mettre en application dans des configurations plus complexes. Par conséquent, une méthode plus simple et plus complète sera développée au chapitre suivant.

Le troisième chapitre étendra donc les résultats du deuxième chapitre à l’aide d’une méthode élégante, basée sur l’utilisation du matricant [114]. En outre, celle-ci décrira l’interaction d’une onde plane acoustique, cette fois-ci directement avec un faisceau optique gaussien linéique, sans faire de décomposition du champ optique.

Enfin, le quatrième et dernier chapitre exposera le calcul de la puissance mesurée expérimentalement à partir de la connaissance du champ optique diffracté. Le modèle théorique résultant de tous ces développements sera confronté à des résultats expérimentaux dans des milieux absorbants, puis transparents.

Chapitre 4

Interaction élasto-optique 3D

En statique, des observations qualitatives ont permis de montrer qu'un matériau soumis à un champ de contrainte voyait ses propriétés optiques modifiées [110]. Afin d'étudier ce phénomène en dynamique, il était alors intéressant de déterminer quelles étaient les grandeurs qui pouvaient être reliées. Pockels choisit ainsi raisonnablement, dès 1889, la déformation pour représenter les influences acoustiques [12]. Puis, en se basant sur l'ellipsoïde des indices, il formula une relation entre la déformation et la variation de l'inverse du tenseur de permittivité. Par conséquent, les fluctuations des propriétés optiques étaient reliées à la déformation présente au sein du matériau par un tenseur de rang quatre.

Or la déformation est en fait une combinaison linéaire de gradients de déplacements [115], symétrique et antisymétrique. C'est pourquoi D. F. Nelson et M. Lax [116] choisirent d'exprimer la variation de l'inverse du tenseur de permittivité en fonction du gradient de déplacement. Ils firent ainsi apparaître, en plus de la dépendance en déformation, une dépendance avec le tenseur des rotations. Si l'influence de ce dernier est classiquement négligée en élasticité linéaire [117], elle est à prendre en compte pour décrire le couplage élasto-optique, lorsque des rotations des éléments de volume interviennent au cours de la propagation acoustique. Cette contribution fait alors perdre sa symétrie au tenseur de rang 4 imaginé par Pockels [118]. Outre ces effets directs, les auteurs mirent également en relief des effets indirects, présents uniquement dans les matériaux piézo-électriques, qui ne seront pas étudiés ici.

Puisque la variation ainsi induite de l'indice optique est tensorielle, elle peut créer de l'anisotropie optique. Par conséquent, les équations de Maxwell sont écrites pour décrire la propagation des champs électrique et magnétique dans un matériau anisotrope. Puis, les relations de couplage élasto-optique tensorielles sont exprimées et commentées au regard de l'optique anisotrope.

Il a été démontré dans la partie précédente que, pour les matériaux isotropes transverses, la réponse acoustique à une source ponctuelle pouvait être déduite de la réponse à une source linéique orientée suivant un axe principal élastique. Par conséquent, de façon à simplifier les calculs, la propagation du champ électrique sera supposée être contenue dans le plan principal $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$. Cette hypothèse sera justifiée à partir de l'analyse de la forme du tenseur décrivant le couplage élasto-optique.

4.1 Propagation optique dans les milieux anisotropes

Les équations de Maxwell dans un milieu anisotrope sans charge sont écrites de façon à décrire la propagation du champ électromagnétique [119] :

$$\begin{aligned}\nabla \wedge \mathbf{E} &= -\frac{1}{c_0} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \wedge \mathbf{H} &= \frac{1}{c_0} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \\ \mathbf{D} &= {}^{(2)}\bar{\epsilon} \mathbf{E} \\ \mathbf{B} &= {}^{(2)}\bar{\mu} \mathbf{H}\end{aligned}\tag{4.1}$$

où $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ sont les vecteurs champs électrique et magnétique, et c_0 la célérité de la lumière dans le vide. La présence d'une perturbation élastique modifie les propriétés optiques. Les tenseurs de permittivité¹ diélectrique ${}^{(2)}\bar{\epsilon}$ et magnétique ${}^{(2)}\bar{\mu}$ sont donc définis comme des fonctions de l'espace $\mathbf{x}$ et du temps t . En restreignant l'étude aux seuls matériaux amagnétiques, le tenseur ${}^{(2)}\bar{\mu}$ s'écrit alors ${}^{(2)}\bar{\mu} = \mu {}^{(2)}\bar{I} = {}^{(2)}\bar{I}$, avec ${}^{(2)}\bar{I}$ le tenseur identité d'ordre deux. La variable μ est donc une quantité scalaire. Apparaissent également les vecteurs induction électrique $\mathbf{D}$ et magnétique $\mathbf{B}$ qui portent le déplacement des charges électromagnétiques, liées au déplacement des électrons [120]. A ce titre, $\mathbf{D}$ est souvent appelé vecteur déplacement électrique. Dans le cas général, les vecteurs induction ne sont pas parallèles aux champs puisqu'ils y sont reliés par une relation tensorielle. L'équation de propagation du champ électrique est ensuite déduite, en utilisant que $\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E}$:

$$\Delta \mathbf{E} - \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \frac{1}{c_0^2} \mu \frac{\partial^2 ({}^{(2)}\bar{\epsilon} \mathbf{E})}{\partial t^2} = 0\tag{4.2}$$

Comme la fréquence de la perturbation acoustique est beaucoup plus faible que celle de la lumière [121], il s'agit d'un problème quasi-statique et la dérivée temporelle de ${}^{(2)}\bar{\epsilon}$ est négligée. En recherchant des solutions harmoniques de pulsation ω , l'équation précédente devient alors :

$$\Delta \mathbf{E} - \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) + q_0^2 \mu {}^{(2)}\bar{\epsilon} \mathbf{E} = 0\tag{4.3}$$

avec $q_0 = \omega/c_0$ le nombre d'onde optique dans le vide. Puisque $\mu = 1$, ${}^{(2)}\bar{\epsilon}$ peut être identifié comme le tenseur des carrés des indices optiques : $\epsilon_{ij} = n_{ij}^2$. Dans la section suivante, leur évolution en fonction de la direction considérée sera décrite à travers la surface des lenteurs optiques, et l'anisotropie induite sera caractérisée.

4.2 Caractérisation de l'anisotropie optique induite par une perturbation élastique

4.2.1 Ellipsoïde des indices

Afin de caractériser l'anisotropie optique d'un matériau, la variation de la célérité de phase, c'est-à-dire de l'inverse des indices, en fonction de la direction de $\mathbf{D}$, est décrite pour former une

¹Il s'agit en fait de permittivités relatives, puisque les équations 4.1 sont normalisées par rapport à c_0 .

surface. Cette approche permet également de représenter l'anisotropie induite par la propagation de la déformation acoustique. Le fait que l'énergie électrique soit une forme quadratique définie positive impose que le tenseur diélectrique soit diagonalisable dans une base orthonormale de vecteurs propres. En y adjoignant une origine, cette dernière décrit le repère principal optique $(O, \mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$ dans lequel le tenseur diélectrique s'exprime sous sa forme matricielle :

$$[\varepsilon] = \begin{bmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{bmatrix} \quad (4.4)$$

La célérité de phase optique dans un milieu amagnétique d'indice n est définie par $c = c_0/n = c_0/\sqrt{\varepsilon}$. En écrivant que $\text{trace}^{(2)}\bar{\varepsilon} = 1$, qui correspond à la conservation de l'énergie électrique, la distribution des célérités dans l'espace propre est définie par l'équation suivante [120] :

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_3^2} = 1 \quad (4.5)$$

où x_i représentent les coordonnées d'un point M tel que $\mathbf{OM} \parallel \mathbf{D}$ et $\|\mathbf{OM}\| = n$. Le tenseur $^{(2)}\bar{B}$ est alors introduit :

$$B_{ij} = \frac{1}{n_{ij}^2} = \frac{1}{\varepsilon_{ij}} \quad (4.6)$$

L'équation (4.5) se réécrit ainsi en notation contractée :

$$B_{ij}x_ix_j = 1 \quad (4.7)$$

et l'intérêt de cette surface pour caractériser la variation du tenseur diélectrique apparaît alors. L'équation ci-dessus décrit une ellipsoïde dont la projection sur le plan principal $(\mathbf{x}_p, \mathbf{x}_q)$, normal à la direction $\mathbf{x}_r$, forme dans le cas général deux courbes. La première est une ellipse de semi-axes n_p et n_q dans les directions principales $\mathbf{x}_p$ et $\mathbf{x}_q$, et la seconde un cercle de rayon n_r . Si le milieu est isotrope, $n_1 = n_2 = n_3$, et l'ellipsoïde des indices est une sphère.

La surface des indices va ensuite être recherchée pour obtenir, non plus l'expression des célérités de phase, mais celle des indices.

4.2.2 Surface des indices

L'évolution de la lenteur de phase, autrement dit des indices optiques, est exprimée à partir de l'équation (4.5) écrite, non plus dans la direction de vibration $\mathbf{D}$, mais dans la direction de propagation $\mathbf{s}$ indiquée sur la figure 4.1. Les résultats précédents sont alors établis en faisant apparaître les célérités de phase c , exprimées dans le repère principal de $^{(2)}\bar{\varepsilon}$ [120] :

$$s_1^2 (c^2 - c_2^2) (c^2 - c_3^2) + s_2^2 (c^2 - c_1^2) (c^2 - c_3^2) + s_3^2 (c^2 - c_1^2) (c^2 - c_2^2) = 0 \quad (4.8)$$

où $c_i = c_0/n_i = c_0/\sqrt{\varepsilon_i}$ représente la célérité de phase dans la direction principale i . Afin de simplifier les calculs, la propagation est à présent supposée se faire dans le plan principal $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$. Cette hypothèse sera justifiée par la forme du tenseur élasto-optique dans la section 4.4. Cette simplification implique que $s_3 = 0$, et l'équation (4.8) est équivalente à :

$$c^2 - c_3^2 = 0 \quad (4.9)$$

$$s_1^2 (c^2 - c_2^2) + s_2^2 (c^2 - c_1^2) = 0 \quad (4.10)$$

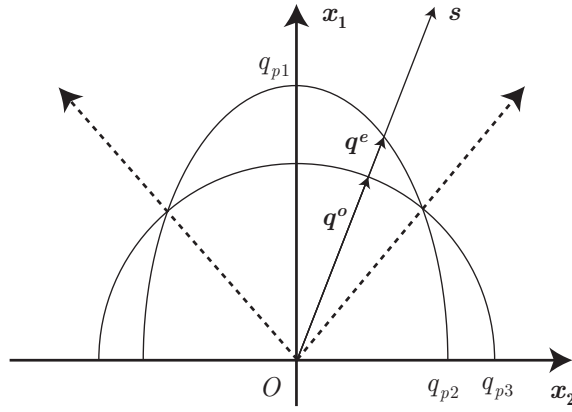


FIG. 4.1 – La surface des lenteurs optiques est projetée dans le plan principal $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$. Les vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ des modes optiques se propageant dans la direction $\mathbf{s}$ sont indiqués. Les axes optiques, correspondant aux directions où les deux vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ sont égaux, sont matérialisés en pointillés.

Ces équations sont maintenant inversées pour faire apparaître les composantes des nombres d'onde q . Puis elles sont exprimées en coordonnées polaires ($s_1 = \cos \theta$, $s_2 = \sin \theta$) pour identifier facilement les quadriques :

$$(q^o)^2 = q_{p3}^2 \quad (4.11)$$

$$(q^e)^2 = \frac{q_{p1}^2 q_{p2}^2}{q_{p1}^2 \cos^2(\theta) + q_{p2}^2 \sin^2(\theta)} \quad (4.12)$$

avec q_{pi} les nombres d'ondes principaux exprimés dans la direction principale $\mathbf{x}_i$. Le vecteur d'onde (*a fortiori* la lenteur de phase) est ainsi décrit par deux surfaces centrées en O dont les projections dans le plan principal sont un cercle de rayon q_{p3} et une ellipse de semi-axes q_{p1} et q_{p2} comme indiqué sur la figure 4.1. Les axes optiques, correspondant aux directions où les deux vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ sont égaux, y sont indiqués en pointillés.

Ainsi, il existe deux modes optiques pouvant se propager dans une direction $\mathbf{s}$ donnée. Le premier, dont le nombre d'onde q^o est indépendant de $\mathbf{s}$, est alors appelé mode ordinaire. Dans le cadre de la propagation dans le plan principal, il est polarisé hors plan. Le second mode voit l'évolution de son nombre d'onde régit par l'ellipse, et possède une polarisation comprise dans le plan de propagation.

Afin d'expliciter les nombres d'onde principaux, l'équation de dispersion optique va ensuite être écrite. Sa résolution va permettre de mettre en évidence les différents modes optiques pouvant exister à travers leurs vecteurs d'onde et leurs polarisations.

4.3 Equation de dispersion optique

De façon à décrire la propagation optique dans un milieu anisotrope, l'évolution des différents nombres d'onde existant dans une direction de propagation donnée est formulée. La géométrie utilisée est la même que celle de la première partie : le cas d'une source laser focalisée suivant

une ligne dans la direction $\mathbf{x}_3$ est considéré. Dès lors, $\partial/\partial x_3 = 0$ et la propagation optique se fait dans le plan principal $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$. De la même manière que pour l'équation d'onde acoustique (1.6), une double transformée de Fourier en (x_2, t) est appliquée afin de réduire le nombre de variables différentielles dans l'équation (4.2). Des solutions sous la forme $\mathbf{E} = E_i e^{q_1 x_1} \mathbf{x}_i$ sont ensuite recherchées. L'équation de propagation (4.2) devient alors :

$$\begin{bmatrix} q_0^2 \varepsilon_1 - k_2^2 & q_1 k_2 & 0 \\ q_1 k_2 & q_0^2 \varepsilon_2 - q_1^2 & 0 \\ 0 & 0 & q_0^2 \varepsilon_3 - k_2^2 - q_1^2 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{Bmatrix} = 0 \quad (4.13)$$

Pour que les solutions de ce système soient non toutes nulles, il faut que le déterminant de la matrice soit nul. Cela permet d'obtenir une relation entre q_1 et k_2 , autrement dit l'équation de dispersion optique, dont les solutions sont :

$$\begin{aligned} q_1^o &= \pm \sqrt{q_0^2 \varepsilon_3 - k_2^2} \\ q_1^e &= \pm \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} (q_0^2 \varepsilon_1 - k_2^2)} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Dans l'équation (4.2), l'anisotropie est pilotée par le terme $\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E})$ qui implique que seulement deux modes peuvent se propager. Dans l'équation de propagation du déplacement acoustique $\mathbf{u}$, l'anisotropie est décrite par $\nabla \cdot ({}^{(4)}\overline{\mathbf{C}} \nabla \mathbf{u})$. C'est le produit doublement contracté avec le tenseur d'élasticité ${}^{(4)}\overline{\mathbf{C}}$ qui diffère fondamentalement de l'optique, et permet l'existence de trois modes acoustiques.

Les modes optiques, définis par les vecteurs d'onde $\mathbf{q}^o = q_1^o \mathbf{x}_1 + k_2 \mathbf{x}_2$ et $\mathbf{q}^e = q_1^e \mathbf{x}_1 + k_2 \mathbf{x}_2$ sont respectivement associés aux polarisations $\mathbf{P}^o = \mathbf{x}_3$ et $\mathbf{P}^e = k_2 \varepsilon_2 \mathbf{x}_1 - \varepsilon_1 |q_1^e| \mathbf{x}_2$. Quelle que soit la direction de propagation dans le plan principal $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$, la norme de $\mathbf{q}^o$ est constante ; il s'agit du vecteur d'onde ordinaire. Par opposition, $\mathbf{q}^e$ est appelé vecteur d'onde extraordinaire.

Les polarisations de ces modes, correspondant aux vecteurs propres du noyau de la matrice du système (4.13), ne sont pas perpendiculaires à la direction de propagation, contrairement au cas optique isotrope. La vibration $\mathbf{D} = {}^{(2)}\overline{\varepsilon} \mathbf{E}$ n'est plus parallèle au champ électrique mais est en revanche toujours perpendiculaire à la direction de propagation. La relation $\mathbf{q} \cdot \mathbf{D} = 0$ est donc bien vérifiée. Etant donnée la symétrie du problème ($\mathbf{x}_3$ est un axe principal optique), le vecteur $\mathbf{q}^o$ sera associé à une polarisation hors plan d'incidence, quelle que soit la base choisie par rotation autour de $\mathbf{x}_3$, et, de même, la polarisation associée au vecteur $\mathbf{q}^e$ sera contenue dans le plan principal.

L'anisotropie optique a été caractérisée. Dans le présent travail, elle ne proviendra pas de la biréfringence naturelle du cristal considéré, mais sera induite par la propagation d'un champ acoustique. Deux modes optiques peuvent se propager et leurs vecteurs d'onde, ainsi que leur polarisations, ont été déterminés. Les relations et les concepts de base nécessaires à l'appréhension de l'optique anisotrope ont été exposés et l'interaction élasto-optique va maintenant être étudiée.

4.4 Interaction élasto-optique

Il est possible d'établir une relation, définie par un tenseur de rang quatre, entre le gradient du déplacement au sein du cristal et la variation $^{(2)}\overline{B}^s$ de l'inverse du tenseur diélectrique $^{(2)}\overline{B}$. En effet, l'absorption des photons transportés par le faisceau laser incident modifie la structure électronique des atomes. Réciproquement, une modification de la structure électronique change l'absorption. C'est exactement ce qui se passe en présence d'une déformation, par l'intermédiaire des phonons. Cet effet élasto-optique direct peut être décomposé en deux tenseurs de rang quatre [122]. Le premier possède les symétries du matériau et correspond au tenseur de Pockels [118]. Le second est antisymétrique et provient de l'anisotropie optique naturelle du matériau [116]. Existente également des effets élasto-optiques indirects, présents dans les structures piézo-électriques et semi-conductrices [123], qui ne seront pas considérés ici.

4.4.1 Tenseurs élasto-optiques

L'effet élasto-optique direct est sensible aux rotations des éléments de volume du cristal. Leur prise en compte nécessite l'utilisation de combinaisons antisymétriques des gradients de déplacement. Dans le cas où il n'y a pas de rotation des éléments de volume, l'effet direct peut être relié à des combinaisons symétriques des gradients de déplacements, c'est-à-dire à la déformation. Un tenseur $^{(4)}\overline{P}$ de rang quatre est alors défini tel que :

$$B_{ij}^s = P_{ijkl} (\nabla \mathbf{u})_{kl} \quad (4.15)$$

Le tenseur $^{(2)}\overline{B}$ défini par l'équation (4.6) est symétrique, donc P_{ijkl} est symétrique par rapport aux indices i et j : $P_{ijkl} = P_{jikl}$. L'équation (4.15) est alors développée pour faire apparaître les éléments symétriques par rapports aux indices k et l :

$$\begin{aligned} B_{ij}^s &= P_{ijkl}^{(1)} \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) + P_{ijkl}^{(2)} \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} - \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \\ &= P_{ijkl}^{(1)} \eta_{kl} + P_{ijkl}^{(2)} \Omega_{kl} \end{aligned} \quad (4.16)$$

où $^{(2)}\overline{\eta}$ et $^{(2)}\overline{\Omega}$ sont les tenseurs de déformation et de rotation. $^{(4)}\overline{P}^{(1)}$ est un tenseur d'ordre quatre, symétrique par rapport aux indices i, j et k, l . Il s'agit du tenseur initialement défini par Pockels, et sera noté $^{(4)}\overline{P}$. Quant à lui, $^{(4)}\overline{P}^{(2)}$ est un tenseur de rang quatre symétrique par rapport aux indices i, j , et antisymétrique par rapport aux indices k, l . Il représente la contribution des rotations introduite par D. F. Nelson et M. Lax, et sera donc noté $^{(4)}\overline{N}$:

$$^{(2)}\overline{B}^s = ^{(4)}\overline{P}^{(2)} \overline{\eta} + ^{(4)}\overline{N}^{(2)} \overline{\Omega} \quad (4.17)$$

Le tenseur des rotations, s'il est négligé dans la loi de comportement en élasticité linéaire [117], doit être pris en compte pour l'interaction élasto-optique [124]. En revanche, dans le cas des matériaux isotropes au regard de la propagation optique, le tenseur $^{(4)}\overline{N}$ est nul. De même, dans le cas des matériaux isotropes d'un point de vue élastique, le tenseur $^{(2)}\overline{\Omega}$ est nul. Quant à elle, la contribution de $^{(4)}\overline{N}$ ne peut être négligée que dans les matériaux où la biréfringence naturelle est faible [125].

Dans la suite, le matériau sera considéré suffisamment isotrope pour que seul le tenseur de Pockels soit nécessaire. Dans ce cas, la variation du tenseur diélectrique est exprimée [124] :

$$^{(2)}\overline{\varepsilon}^s = -(\varepsilon^h)^{2(2)}\overline{B}^s \quad (4.18)$$

soit, en introduisant l'équation (4.15) :

$$^{(2)}\overline{\varepsilon}^s = -(\varepsilon^h)^{2(4)}\overline{P}^{(2)}\overline{\eta} = {}^{(4)}\overline{p}^{(2)}\overline{\eta} \quad (4.19)$$

Cette formulation, largement employée, même pour décrire l'influence d'une onde transverse dans un matériau anisotrope [20], reste valide si la biréfringence naturelle du cristal est faible.

La déformation va maintenant être explicitée pour la géométrie exposée dans la première partie et son influence sur les propriétés optiques va être analysée.

4.4.2 Hétérogénéité optique transitoire induite par une perturbation élastique

Dans la première partie, l'expression analytique du spectre du déplacement $\tilde{\mathbf{u}}(x_1, k_2, \omega)$ a été obtenue. L'expression de la déformation $^{(2)}\overline{\eta}$ est à présent déduite en calculant le gradient symétrique du déplacement [100] :

$$\tilde{\eta}_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial x_i} \right) \quad (4.20)$$

Il a été démontré dans la partie précédente que, pour les matériaux isotropes transverses, la réponse acoustique à une source ponctuelle pouvait être déduite de la réponse à une source linéique orientée suivant l'axe principal élastique $\mathbf{x}_3$. Par conséquent, les déformations générées sont contenues dans le plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$. En utilisant la notation contractée de B. A. Auld [54], le tenseur des déformations est exprimé sous sa forme matricielle, pour la géométrie décrite dans la partie précédente :

$$[\tilde{\eta}(x_1, k_2, \omega)] = \begin{bmatrix} \tilde{\eta}_1 & \tilde{\eta}_6 & 0 \\ \tilde{\eta}_6 & \tilde{\eta}_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4.21)$$

Le changement des propriétés optiques de l'échantillon, dû à la propagation de la déformation, est décrit par l'interaction élasto-optique linéaire (4.19). La variation du tenseur diélectrique $^{(2)}\overline{\varepsilon}^s$ est reliée à la déformation par le tenseur $^{(4)}\overline{p}$ et, pour les matériaux isotropes, la relation suivante est obtenue :

$$\begin{aligned} [\varepsilon(x_1, x_2, t)] &= \varepsilon^h[I] + \begin{bmatrix} p_{11}\eta_1 + p_{12}\eta_2 & p_{66}\eta_6 & 0 \\ p_{66}\eta_6 & p_{12}\eta_1 + p_{11}\eta_2 & 0 \\ 0 & 0 & p_{12}(\eta_1 + \eta_2) \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} \varepsilon^h + \varepsilon_1^s & \varepsilon_6^s & 0 \\ \varepsilon_6^s & \varepsilon^h + \varepsilon_2^s & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon^h + \varepsilon_3^s \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4.22)$$

En l'absence de perturbation acoustique, la matrice diélectrique est proportionnelle à la matrice identité $[I]$. Du fait de la présence des déformations longitudinales η_1 et η_2 , les composantes diagonales de $[\varepsilon]$ ne sont plus égales. La surface des indices, définissant la répartition spatiale de la célérité de phase en fonction de la direction de propagation optique, est transformée en une ellipsoïde. Les composantes hors diagonale, dues à la contrainte transverse η_6 , changent les axes principaux optiques du matériau, et font tourner la surface des indices autour de l'axe $\mathbf{x}_3$. Ces changements sont modulés spatialement et temporellement par la propagation de l'onde élastique, et le matériau devient continûment hétérogène au regard de l'onde optique. En outre, $\mathbf{x}_3$ reste un axe optique principal. Cela permet de justifier, dans les sections précédentes, l'étude de la propagation optique dans le plan principal $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$ uniquement.

4.5 Conclusion

Le concept de la biréfringence dans les cristaux anisotropes a été rappelé. Il a permis de montrer que deux modes optiques pouvaient se propager, avec des vecteurs d'onde et des polarisations différents. Ceux-ci ont été définis pour la géométrie utilisée. L'analyse du couplage élasto-optique a mis en exergue la déformation de l'ellipsoïde des indices causée par la propagation des ondes acoustiques longitudinales, et la rotation des axes principaux optiques due aux ondes transverses.

Le cas d'une source laser linéique, focalisée suivant un axe élastique principal, a été considéré dans la partie précédente. Par conséquent, cet axe reste également un axe optique principal, et n'est pas modifié par la propagation acoustique. L'étude plus générale d'une source linéique, orientée hors des axes principaux d'un matériau initialement anisotrope, permettrait de faire intervenir toutes les composantes du tenseur de déformation dans l'interaction élasto-optique [126]. Ce mémoire se limitera cependant au cas isotrope transverse.

Le matériau est donc rendu anisotrope d'un point de vue optique, de façon transitoire temporellement et spatialement. Afin d'étudier le changement de réflectivité ainsi induit, il est nécessaire de considérer la propagation optique dans un milieu hétérogène. L'objet du chapitre suivant sera d'y parvenir en utilisant l'optique géométrique.

Chapitre 5

Calcul du changement de réflectivité en optique géométrique

Pour décrire le changement de réflectivité dans un matériau absorbant, il est nécessaire de prendre en compte le fait que, dans la zone de pénétration optique, le faisceau laser gaussien est sensible à la variation de l'indice optique causée par le champ acoustique tridimensionnel.

Par l'intermédiaire d'une transformée de Hankel, l'analyse du champ acoustique tridimensionnel dans un matériau isotrope transverse a été ramenée à l'étude d'un champ bidimensionnel. Dans la première partie de ce mémoire, celui-ci a été décomposé en une somme d'ondes planes monochromatiques par une double transformée de Fourier en temps et en espace. Le cas élémentaire de l'interaction d'une seule onde plane acoustique avec le faisceau optique gaussien sera donc considéré dans ce chapitre.

De manière à décrire le couplage élasto-optique, le faisceau gaussien est lui-même décomposé en une somme d'ondes planes monochromatiques. Alors, le problème de la diffraction du champ électromagnétique par le champ acoustique tridimensionnel se réduit à l'étude de la diffraction d'une seule onde plane optique par une onde plane acoustique. Cette situation sera ici traitée par une méthode basée sur l'optique géométrique.

Avec la propagation de l'onde acoustique plane, le milieu devient anisotrope au regard de l'onde optique, de façon induite et transitoire. Par conséquent, les développements présentés ici feront appel aux concepts liés à la propagation dans les milieux anisotropes exposés dans le chapitre précédent. Au lieu d'avoir un seul vecteur d'onde optique, la biréfringence induite du cristal étudié conduira à l'existence d'un mode ordinaire, et d'un mode extraordinaire, ayant des célérités différentes.

Le choix est fait d'avoir une approche physique simple du problème, en linéarisant les équations de Maxwell. Cette approximation permettra de décomposer la perturbation acoustique en une somme d'interfaces optiques localisées, qui correspondent aux plans de phase constituant l'onde acoustique plane. Alors, le changement de réflectivité pourra être calculé en considérant des réflexions optiques sur ces interfaces virtuelles. Dès lors, les développements analytiques se résument à des déterminations de coefficients de réflexion, et à des calculs de phase optique. De façon à avoir une démarche progressive et didactique, plusieurs cas de complexité croissante seront examinés.

Dans un premier temps, le cas unidimensionnel de l'interaction de l'onde optique plane en incidence normale sur l'onde acoustique plane sera considéré. Il s'agit de la configuration la plus simple, largement documentée dans la littérature d'acoustique picoseconde depuis H. J. Maris [69]. Ainsi les différentes étapes nécessaires au calcul du changement de réflectivité seront identifiées, et les résultats énoncés dans la première partie seront démontrés.

Ensuite, le principe du calcul est étendu au cas optique bidimensionnel mais unidimensionnel d'un point de vue élastique. L'onde optique plane est alors en incidence oblique sur un plan de phase acoustique parallèle à la surface libre. Cette étape permettra de retrouver les résultats exposés par A. Miklós [127] pour une onde plane longitudinale.

Enfin, l'interaction oblique d'une onde optique plane en incidence normale sur la surface libre avec une onde acoustique plane se propageant dans une direction quelconque sera envisagée. Cette configuration optique et élastique bidimensionnelle, plus générale, constitue le cœur du calcul du changement de réflectivité induit par un champ acoustique tridimensionnel.

5.1 Cas optique et élastique unidimensionnel

La taille latérale de la source est supposée d'extension infinie, et l'onde optique incidente peut être assimilée à une unique onde plane se propageant normalement à la surface libre. Il n'y a donc pas de diffraction et la composante $\tilde{\eta}_2$ du tenseur de déformation (4.21) est nulle. Le cas unidimensionnel, représenté sur la figure 5.1, définit alors l'interaction d'une onde optique plane en incidence normale sur le plan de phase d'une onde acoustique également plane. Un champ électrique incident polarisé suivant $\mathbf{x}_3$ est ici considéré.

5.1.1 Linéarisation de l'équation de Maxwell

La propagation du champ électrique $E_3\mathbf{x}_3$ se fait en incidence normale, suivant l'axe $\mathbf{x}_1$. Elle est alors décrite par l'équation de Maxwell dans un milieu hétérogène dont la permittivité diélectrique dépend de l'espace et du temps. Considérant un film isotrope, la simplification $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) = 0$ est faite à partir de l'équation (4.3). Puisqu'il s'agit d'un problème quasi-statique, la recherche de solutions harmoniques est assimilée à une résolution dans le domaine de Fourier en ω , et le graphème tilde est utilisé comme dans la première partie :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_3}{\partial x_1^2}(x_1, \omega) + q_0 \mu \tilde{\varepsilon}_3(x_1, \omega) \tilde{E}_3(x_1, \omega) = 0 \quad (5.1)$$

Il s'agit d'une équation à coefficients variables, difficile à manipuler analytiquement. Elle est donc linéarisée en décomposant la permittivité diélectrique en une partie non perturbée constante ε^h et une partie perturbée $\tilde{\varepsilon}_3^s$ de faible amplitude, de façon similaire à l'équation (4.22) :

$$\tilde{\varepsilon}_3(x_1, \omega) = \varepsilon^h + \tilde{\varepsilon}_3^s(x_1, \omega) \quad (5.2)$$

De la même manière, le champ électrique est écrit comme la somme d'une solution $\tilde{E}_3^h$, correspondant à la propagation dans le milieu non perturbé, et d'une perturbation $\tilde{E}_3^s$:

$$\tilde{E}_3(x_1, \omega) = \tilde{E}_3^h(x_1, \omega) + \tilde{E}_3^s(x_1, \omega) \quad (5.3)$$

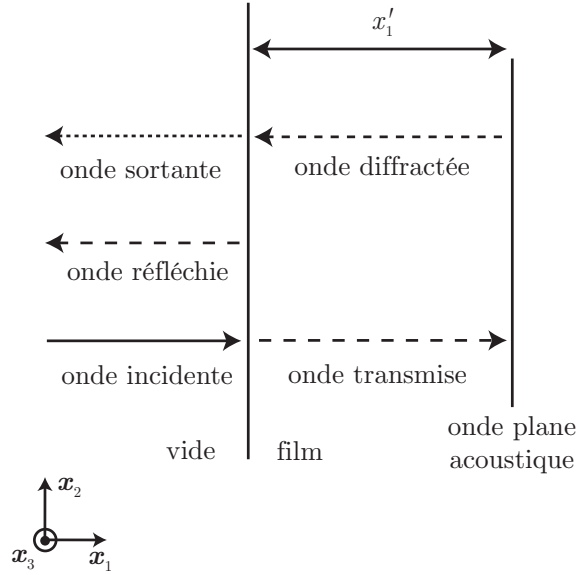


FIG. 5.1 – Le cas optique et élastique unidimensionnel est représenté. L'onde plane optique incidente traverse l'interface vide/film. Elle est ensuite réfléchi par l'onde acoustique symbolisée par une interface virtuelle. L'onde retransverse finalement l'interface pour sortir du film.

Le terme $\tilde{\varepsilon}_3^s \tilde{E}_3$ représente la diffraction du second ordre, c'est-à-dire la propagation du champ électrique perturbé dans le milieu perturbé. En négligeant ce dernier, l'équation (5.1) devient :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_3^s}{\partial x_1^2} + q_0 \mu \varepsilon^h \tilde{E}_3^s = -q_0 \mu \tilde{\varepsilon}_3^s \tilde{E}_3^h \quad (5.4)$$

Le membre de gauche, décrivant la propagation du champ perturbé dans le milieu homogène, n'est pas modifié par le changement d'indice au premier ordre. Par conséquent, la phase du champ électrique $\tilde{E}_3^s$ ne sera pas influencée. Seule son amplitude sera modifiée par le membre de droite, qui résulte de la propagation du champ homogène dans le milieu perturbé.

Il apparaît alors que, lorsque les termes d'ordre deux sont négligés, l'équation de propagation optique devient linéaire. Ainsi, il suffit d'étudier la propagation dans un milieu dont la permittivité diélectrique ε_3 dépend de l'espace et du temps. Et, puisque l'équation est linéaire, cette variation peut être décomposée en une somme continue de perturbations élémentaires de type Dirac, localisées en x_1' . Cela revient en fait à faire une convolution entre la réponse impulsionnelle et la forme spatiale de perturbation ε_3^s .

En outre, la réponse à un Dirac spatial peut être obtenue en dérivant la réponse à un Heaviside spatial. C'est donc cette dernière qui sera d'abord calculée, c'est-à-dire la réponse indicelle du système optique formé par le matériau perturbé. De façon à les distinguer, les réponses impulsionnelles seront précédées d'un δ , et les réponses indicelles d'un Δ .

5.1.2 Calcul du changement de réflectivité

La réponse à une perturbation de l'indice optique de type Heaviside correspond à étudier la propagation électromagnétique à travers une interface virtuelle localisée en x_1' entre deux milieux homogènes d'indices respectifs n et $n + \tilde{n}^s$. En différentiant la relation $\varepsilon = n^2$, la perturbation au

premier ordre de l'indice optique s'exprime par $n^s = \tilde{\varepsilon}_3^s/2n$. En incidence normale, la variation du coefficient de réflexion $\Delta\tilde{r}_3^s$ s'écrit alors facilement :

$$\Delta\tilde{r}_3^s = \frac{n - n - \tilde{n}^s}{n + n + \tilde{n}^s} = -\frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{4n^2} \frac{1}{1 + \frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{4n^2}} \quad (5.5)$$

En faisant un développement limité au premier ordre en $\tilde{\varepsilon}_3^s/4n^2$, cette expression se simplifie :

$$\Delta\tilde{r}_3^s = -\frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{4\varepsilon^h} + \mathcal{O}\left(\frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{4n^2}\right)^2 \quad (5.6)$$

Comme indiqué sur la figure 5.1, le champ électrique traverse la surface libre du film avec un coefficient de transmission t_{01} . Il se propage ensuite jusqu'à l'interface virtuelle localisée en x'_1 , où il se réfléchit avec un coefficient $\Delta\tilde{r}_3^s(x'_1)$. Il retransverse la surface libre avec un coefficient de transmission t_{10} . Dans le vide, le champ perturbé s'exprime donc de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \Delta\tilde{E}_3^s &= -t_{01}\Delta\tilde{r}_3^s(x'_1)t_{10}e^{2jq_0nx'_1}\tilde{E}_3^{inc}e^{-jq_0x_1} \\ &= t_{01}\frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{4\varepsilon^h}t_{10}e^{2jq_0nx'_1}\tilde{E}_3^{inc}e^{-jq_0x_1} \end{aligned} \quad (5.7)$$

avec $t_{01} = 2/(1+n)$, $t_{10} = 2n/(1+n)$ et $\tilde{E}_3^{inc}$ l'amplitude du champ électrique incident polarisé suivant $\mathbf{x}_3$.

L'exponentielle $\exp(2jq_0nx'_1)$ apparaissant dans l'équation (5.7) traduit le chemin optique parcouru par le champ électrique entre la surface libre et le saut d'indice localisé en x'_1 . La réponse impulsionnelle à un Dirac localisé en x'_1 est ensuite obtenue simplement en dérivant l'expression précédente par rapport à x'_1 :

$$\delta\tilde{E}_3^s = jt_{01}\frac{q_0\tilde{\varepsilon}_3^s}{2n}t_{10}e^{2jq_0nx'_1}\tilde{E}_3^{inc}e^{-jq_0x_1} \quad (5.8)$$

et le coefficient de réflexion correspondant, conforme à celui obtenu par C. Thomsen [69], est identifié :

$$\delta\tilde{r}_3^s = j\frac{q_0}{2n}\tilde{\varepsilon}_3^s \quad (5.9)$$

L'équation (5.8) est finalement intégrée par rapport à x'_1 pour prendre en compte la forme spatiale de la variation d'indice optique :

$$\tilde{E}_3^s = jt_{01}\frac{q_0}{2n}t_{10}\int_0^d \tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1)e^{2jq_0nx'_1}dx'_1\tilde{E}_3^{inc} \quad (5.10)$$

Cette opération peut être considérée comme la convolution de la réponse impulsionnelle avec la forme spatiale de l'impulsion acoustique, terme source de l'équation (5.4).

En écrivant que $\tilde{E}_3^s = \tilde{r}_3^s\tilde{E}_3^h$, la variation relative $\tilde{r}_3^s$ du coefficient de réflexion optique est déduite de l'équation ci-dessus :

$$\tilde{r}_3^s = jt_{01}\frac{q_0}{2n}t_{10}\int_0^d \tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1,\omega)e^{2jq_0nx'_1}dx'_1 \quad (5.11)$$

La fonction f^s , parfois appelée fonction de sensibilité puisqu'elle relie la perturbation $\tilde{\varepsilon}_3^s$ à la réponse impulsionnelle, est définie de la façon suivante :

$$f^s(x_1) = jt_{01}\frac{q_0}{2n}t_{10}e^{2jq_0nx_1} \quad (5.12)$$

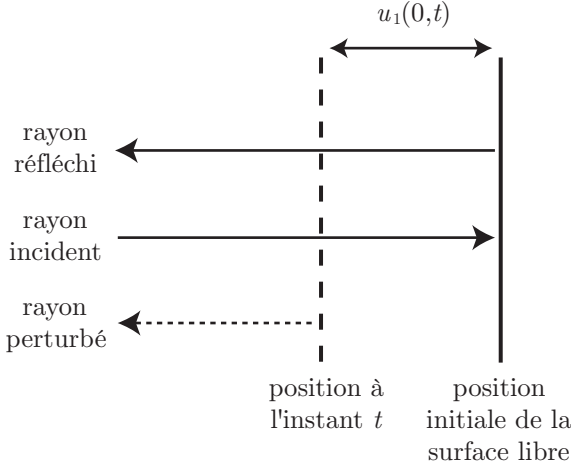


FIG. 5.2 – Le rayon réfléchi par la surface du film en l'absence de perturbation (trait plein) et le rayon perturbé par le déplacement $u_1(0, t)$ de la surface (pointillés) sont représentés.

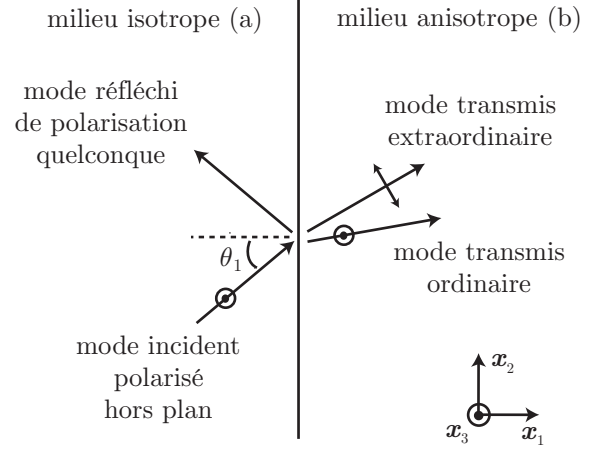


FIG. 5.3 – Réflexion et transmission d'un mode ordinaire faisant un angle θ_1 avec la normale à une interface isotrope/anisotrope dans un plan optique principal.

L'expression introduite dans l'équation (2.2) de la première partie est alors justifiée. Le terme $2jq_0u_1(0, t)$ de l'équation (2.2) se calcule en remarquant simplement qu'il correspond au déphasage créé par le déplacement de la surface libre $u_1(0, t)$. Comme représenté sur la figure 5.2, la différence de chemin optique entre le rayon perturbé par le déplacement de la surface et le rayon réfléchi en l'absence de perturbation est $2u_1(0, t)$.

5.1.3 Processus de détection dans le cas unidimensionnel

L'amplitude et la phase du faisceau sonde sont perturbées par la propagation acoustique au sein du matériau. Une mesure réflectométrique de l'intensité du champ rétrograde donne alors accès à son amplitude. En outre, une mesure interférométrique permet d'obtenir sa phase.

À présent que le coefficient de réflexion a été déterminé, il faut le relier aux quantités mesurées expérimentalement. Le champ rétrograde $\mathbf{E}^r$ est la superposition du champ électrique diffracté $\mathbf{E}^s$ et du champ réfléchi à la surface $r^h \mathbf{E}^{inc}$:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^r &= r^h \mathbf{E}^{inc} + \mathbf{E}^s = \left(r^h E_3^{inc} + E_3^s \right) e^{-j(q_0 x_1 + \omega t)} \mathbf{x}_3 \\ &= r^h \left(1 + \frac{r_3^s}{r^h} \right) E_3^{inc} e^{-j(q_0 x_1 + \omega t)} \mathbf{x}_3 \end{aligned} \quad (5.13)$$

La propagation de l'onde acoustique au sein du matériau modifie l'amplitude et la phase du coefficient de réflexion r^h dans le milieu non perturbé respectivement des quantités ρ et φ . Le coefficient de réflexion r résultant de cette variation peut donc s'écrire sous la forme suivante [30, 31] :

$$r(t) = r^h (1 + \rho(t)) e^{j\varphi(t)} \quad (5.14)$$

Comme les quantités ρ et φ sont petites, il est possible de faire un développement limité à l'ordre 2. Ainsi, la variation relative du coefficient de réflexion peut s'exprimer à partir de (5.13)

et (5.14) :

$$\frac{r - r^h}{r^h} = \frac{r_3^s}{r^h} = \rho(t) + j\varphi(t) \quad (5.15)$$

Un changement de réflectivité complexe est donc obtenu. Au premier ordre, sa partie réelle décrit donc son amplitude, et sa partie imaginaire, sa phase. Celles-ci représentent respectivement le signal obtenu en réflectométrie et en interférométrie.

Puisque le changement de réflectivité r_3^s est complexe, le spectre de Fourier $\tilde{r}_3^s$ en ω , qui est exprimé analytiquement par l'équation (5.11), n'est pas hermitien [128]. Cela implique que la partie du spectre qui correspond aux fréquences négatives ne peut pas se déduire de celle correspondant aux fréquences positives. Il sera donc nécessaire numériquement de calculer entièrement le spectre en ω , ce qui double le temps de calcul. Il est démontré dans l'annexe C qu'il est possible d'obtenir un spectre hermitien en séparant les parties réelle et imaginaire du changement de réflectivité r_3^s .

Les calculs de changement de réflectivité ainsi présentés sont maintenant étendus au cas bidimensionnel d'une incidence oblique sur le plan de phase de l'onde acoustique. Par la suite, seul le spectre $\tilde{r}_3^s$ sera exprimé.

5.2 Réflexion optique 2D à une interface entre milieux isotrope et anisotrope

De la même manière que précédemment, une interface virtuelle entre un milieu isotrope (a) et un milieu homogène anisotrope (b) va être considérée. Cette fois-ci, étant donnée la structure du tenseur diélectrique, les modes optiques ordinaire et extraordinaire, définis au quatrième chapitre, pourront exister dans le milieu (b). Les vecteurs d'onde associés $\mathbf{q}^o$ et $\mathbf{q}^e$ seront donc utilisés. Le cas d'une onde en incidence oblique, polarisée hors plan suivant $\mathbf{x}_3$, est considéré sur la figure (5.3). Puisque le milieu (a) est isotrope, sa réflexion sur l'interface donne naissance à deux modes transmis, un ordinaire et un extraordinaire, et à un mode réfléchi de polarisation quelconque. Celle-ci sera déterminée dans cette section, de même que le coefficient de réflexion correspondant.

A partir de l'équation de propagation optique (4.3), la linéarisation permet de rechercher des solutions sous forme d'ondes planes pour le champ électrique dans les deux milieux. Les trois composantes du champ électrique total peuvent être écrites dans le milieu (a) :

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{1a} &= R_1 e^{-j(q_{1a}x_1 - k_2x_2)} \\ \tilde{E}_{2a} &= R_2 e^{-j(q_{1a}x_1 - k_2x_2)} \\ \tilde{E}_{3a} &= R_3 e^{-j(q_{1a}x_1 - k_2x_2)} + C e^{j(q_{1a}x_1 + k_2x_2)} \end{aligned} \quad (5.16)$$

avec C l'amplitude du mode incident ordinaire, et R_i l'amplitude du mode réfléchi projetée sur chaque direction $\mathbf{x}_i$. Puisque le milieu (a) est isotrope, il n'y a qu'un seul nombre d'onde¹, et sa

¹La notion d'onde ordinaire ou extraordinaire n'est utilisée que dans les milieux anisotropes.

projection sur la direction x_1 est notée $q_{1a} = q_0 n \cos \theta_1$. De même, dans le milieu (b) :

$$\begin{aligned}\tilde{E}_{1b} &= T_1 e^{j(q_{1b}^e x_1 + k_2 x_2)} \\ \tilde{E}_{2b} &= T_2 e^{j(q_{1b}^e x_1 + k_2 x_2)} \\ \tilde{E}_{3b} &= T_3 e^{j(q_{1b}^o x_1 + k_2 x_2)}\end{aligned}\tag{5.17}$$

avec T_i l'amplitude des modes transmis sur chaque direction $\mathbf{x}_i$. Les projections q_{1b}^o et q_{1b}^e des nombres d'onde ordinaire et extraordinaire sur la direction $\mathbf{x}_1$ correspondent à celles définies par l'équation (4.14) pour le milieu (b). Les projections k_2 des nombres d'onde sur la direction $\mathbf{x}_2$ sont égales dans les deux milieux de façon à satisfaire la loi de Snell-Descartes.

De plus, les équations (4.1) permettent d'exprimer le champ magnétique dans le milieu (a), afin d'appliquer les conditions limites :

$$\begin{aligned}\tilde{H}_{1a} &= -\frac{k_2}{\omega\mu} \left[C e^{j(q_{1a} x_1 + k_2 x_2)} + R_3 e^{-j(q_{1a} x_1 - k_2 x_2)} \right] \\ \tilde{H}_{2a} &= \frac{q_{1a}}{\omega\mu} \left[C e^{j(q_{1a} x_1 + k_2 x_2)} - R_3 e^{-j(q_{1a} x_1 - k_2 x_2)} \right] \\ \tilde{H}_{3a} &= \frac{1}{\omega\mu} \left[q_{1a} R_2 e^{-j(q_{1a} x_1 - k_2 x_2)} + k_2 R_1 e^{-j(q_{1a} x_1 - k_2 x_2)} \right]\end{aligned}\tag{5.18}$$

et dans le milieu (b) :

$$\begin{aligned}\tilde{H}_{1b} &= -\frac{k_2}{\omega\mu} T_3 e^{j(q_{1b}^o x_1 + k_2 x_2)} \\ \tilde{H}_{2b} &= \frac{q_{1b}^o}{\omega\mu} T_3 e^{j(q_{1b}^o x_1 + k_2 x_2)} \\ \tilde{H}_{3b} &= \frac{1}{\omega\mu} \left[-q_{1b}^e T_2 e^{j(q_{1b}^e x_1 + k_2 x_2)} + k_2 T_1 e^{j(q_{1b}^e x_1 + k_2 x_2)} \right]\end{aligned}\tag{5.19}$$

Les amplitudes sont ensuite déterminées avec les conditions limites. Seules les composantes tangentielles des champs sont conservées à travers l'interface, ce qui procure alors quatre équations. Deux relations supplémentaires sont donc nécessaires. Elles sont fournies par l'équation $\mathbf{D} \perp \mathbf{q}$, qui traduit le fait que l'induction électrique est perpendiculaire à la direction de propagation. Cela impose alors que les amplitudes R_1 et R_2 , et T_1 et T_2 sont liées, et conduit au système matriciel suivant :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & q_{1a} & q_{1b}^o \\ 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ k_2 & q_{1a} & q_{1b}^e & -k_2 & 0 & 0 \\ \alpha_a & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & \alpha_b & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} R_1 \\ R_2 \\ T_2 \\ T_1 \\ R_3 \\ T_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -1 \\ q_{1a} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} C\tag{5.20}$$

avec :

$$\alpha_a = \frac{q_{1a}}{k_2} \quad \text{et} \quad \alpha_b = \frac{q_{1b}^e(\varepsilon^h + \tilde{\varepsilon}_3^s) + k_2 \tilde{\varepsilon}_6^s}{k_2(\varepsilon^h + \tilde{\varepsilon}_3^s) + q_{1b}^e \tilde{\varepsilon}_6^s}\tag{5.21}$$

La forme de cette matrice, qui peut être décomposée en deux sous matrices, l'une 2×2 et l'autre 4×4 , implique que $R_1 = R_2 = T_1 = T_2 = 0$. Ainsi, il n'y a pas de rotation de la polarisation :

l'onde incidente polarisée hors plan se réfléchit en une onde de même polarisation, et ce malgré la biréfringence induite dans le milieu (b). Cela est dû à la forme du tenseur diélectrique (4.22) qui, dans le milieu (b), conserve $\mathbf{x}_3$ comme axe principal optique.

Dans le cas où la polarisation incidente dans le milieu (a) est parallèle à un axe principal optique du milieu perturbé (b), les polarisations des modes réfléchis et transmis peuvent être supposées *a priori*, et simplifiées avant l'application des conditions de continuité à travers l'interface. Lorsque la polarisation incidente n'est plus suivant un axe optique principal du milieu perturbé, la polarisation du mode réfléchi n'est plus la même que celle du mode incident. Il est alors nécessaire d'exprimer explicitement les conditions limites.

Les deux premières lignes de la matrice du système (5.20) permettent de calculer R_3 et T_3 en fonction de C :

$$\frac{R_3}{C} = \frac{q_{1a} - q_{1b}^o}{q_{1a} + q_{1b}^o} = \Delta \tilde{r}_3^s \quad (5.22)$$

$$\frac{T_3}{C} = \frac{2q_{1a}}{q_{1a} + q_{1b}^o} \quad (5.23)$$

où l'on reconnaît les coefficients de réflexion $\Delta \tilde{r}_3^s$ et de transmission à l'interface entre les milieux (a) et (b), pour un champ incident polarisé hors plan. Au premier chapitre, la résolution de l'équation de dispersion optique a permis de déterminer dans l'équation (4.14) les projections des nombres d'onde sur la direction $\mathbf{x}_1$:

$$q_{1a}^2 = q_0^2 \varepsilon^h - k_2^2$$

$$q_{1b}^{o\,2} = q_0^2 \varepsilon^h \left(1 + \frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{\varepsilon^h} \right) - k_2^2$$

Les expressions ci-dessus sont alors introduites dans l'équation (5.22) :

$$\begin{aligned} \Delta \tilde{r}_3^s &= \frac{q_{1a} - q_{1b}^o}{q_{1a} + q_{1b}^o} = \frac{q_{1a}^2 - q_{1b}^{o\,2}}{(q_{1a} + q_{1b}^o)^2} = \frac{-q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{\left(q_{1a} + \sqrt{q_0^2 \varepsilon^h \left(1 + \frac{\tilde{\varepsilon}_3^s}{\varepsilon^h} \right) - k_2^2} \right)^2} \\ &= \frac{-q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{\left(q_{1a} + \sqrt{q_{1a}^2 + q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s} \right)^2} = -\frac{q_0^2}{q_{1a}^2} \tilde{\varepsilon}_3^s \frac{1}{\left(1 + \sqrt{1 + \frac{q_0^2}{q_{1a}^2} \tilde{\varepsilon}_3^s} \right)^2} \end{aligned} \quad (5.24)$$

Soit, en faisant un développement limité à l'ordre un en $\tilde{\varepsilon}_3^s$:

$$\Delta \tilde{r}_3^s = -\frac{q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{4q_{1a}^2} \quad (5.25)$$

L'équation (5.22) montre que lorsque $q_{1a}^2 = k_2^2 - q_0^2 n^2 = 0 \Leftrightarrow k_2 = q_0 n$, alors $\Delta \tilde{r}_3^s = -1$. Or, dans ce cas l'équation (5.25) conduit à $\Delta \tilde{r}_3^s = -\infty$, suite à l'approximation faite lors du développement limité au premier ordre. Par conséquent, l'équation (5.25) ci-dessus n'est valide que lorsque la condition $k_2 < q_0 n$ est respectée, c'est-à-dire pour des angles d'incidence sur l'interface suffisamment éloignés de $\pi/2$.

A partir de la réponse à un Heaviside ainsi obtenue, le chemin optique doit être calculé pour déterminer la variation de réflectivité à la surface libre. Deux configurations distinctes seront alors introduites, lorsque le plan de phase acoustique est parallèle à la surface libre, et lorsque l'onde plane optique est en incidence normale sur la surface libre.

5.3 Cas optique bidimensionnel et élastique unidimensionnel

Par opposition au cas unidimensionnel, le cas bidimensionnel définit l'interaction d'une onde optique plane en incidence oblique sur le plan de phase d'une onde acoustique plane. La position de la surface libre détermine alors deux configurations distinctes.

Le cas où le plan de phase acoustique est parallèle à la surface libre sera analysé dans cette section. L'onde plane optique est alors en incidence oblique sur cette dernière, comme l'indique la figure 5.4. Il s'agit d'un cas optique bidimensionnel, mais unidimensionnel d'un point de vue acoustique.

Le coefficient de réflexion a été déterminé dans la section précédente et est donné par l'équation (5.25). Afin d'obtenir la réponse indicielle, il est nécessaire d'exprimer le retard de phase ϕ_1 subit par l'onde optique. Pour la géométrie indiquée sur la figure 5.4, il est décrit par :

$$\phi_1 = 2q_a AB - q_0 AD = 2q_0 n \cos \theta_1 x'_1 = 2q_{1a} x'_1 \quad (5.26)$$

Ainsi, la variation du champ électrique due à une perturbation de type Heaviside est obtenue :

$$\Delta \tilde{E}_3^s = t_{01}^o \frac{q_0^2 \tilde{\epsilon}_3^s}{4q_{1a}} t_{10}^o e^{2jq_{1a} x'_1} \tilde{E}_3^h e^{-jq_0 \cos \theta_0 x_1} \quad (5.27)$$

où l'exponentielle représente la variation de phase due à un aller-retour dans le film. Les coefficients de transmission t_{01}^o et t_{10}^o correspondent à la traversée de l'interface vide/milieu dans un sens puis dans l'autre, avec un angle défini par la projection k_2 du vecteur d'onde sur la surface. La réponse impulsionnelle $\delta \tilde{r}_3^s$, correspondant à la réponse à une déformation de type Dirac localisée en x'_1 , est obtenue en dérivant l'équation précédente par rapport à x'_1 :

$$\delta \tilde{r}_3^s = jt_{01}^o \frac{q_0^2 \tilde{\epsilon}_3^s}{2q_{1a}} t_{10}^o e^{2jq_{1a} x'_1} \quad (5.28)$$

Ainsi, la variation du coefficient de réflexion peut être déterminée en intégrant la réponse impulsionnelle $\delta \tilde{r}_3^s$ calculée précédemment :

$$\tilde{r}_3^s = jt_{01}^o \frac{q_0^2}{2q_{1a}} t_{10}^o \int_0^d P_{12} \tilde{\eta}_1(x'_1) e^{2jq_{1a} x'_1} dx'_1 \quad (5.29)$$

Cette formule reste valide uniquement au premier ordre, lorsque la linéarité de la réponse impulsionnelle est assurée, et pour des angles d'incidences suffisamment éloignés de $\pi/2$. Ce résultat est conforme à celui énoncé par O. Matsuda [121].

Le cas inédit d'une onde optique en incidence normale sur la surface libre, mais oblique sur l'onde plane acoustique, va maintenant être considéré.

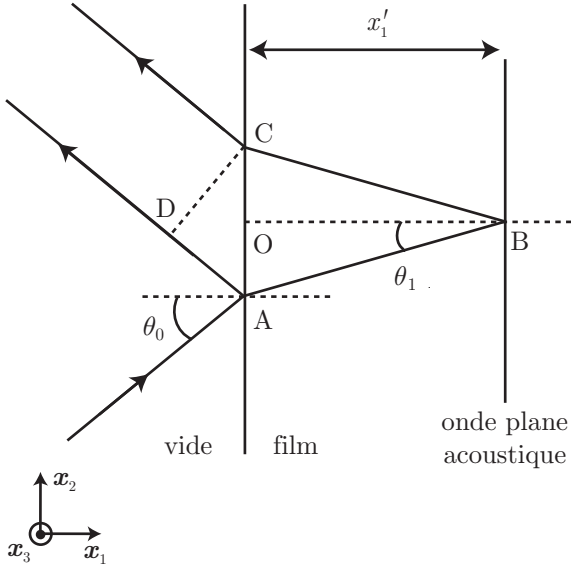


FIG. 5.4 – L'onde plane optique arrive en incidence oblique sur la surface libre. Elle se réfléchit ensuite avec un angle θ_1 sur l'onde plane acoustique. Le plan de phase de cette dernière est parallèle à la surface libre et distant de x'_1 .

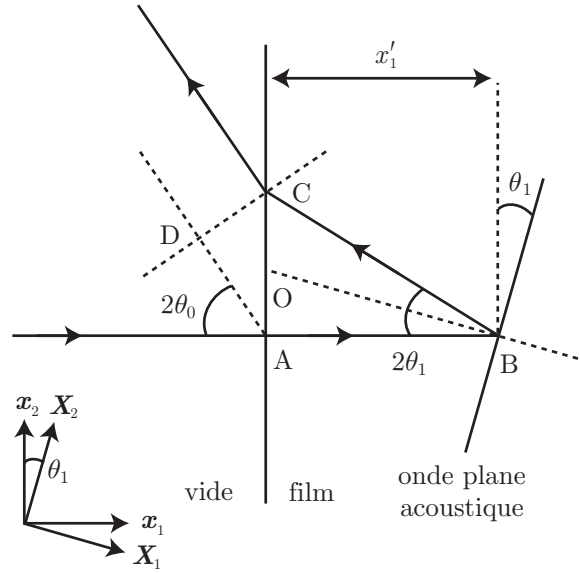


FIG. 5.5 – L'onde plane optique arrive en incidence normale sur la surface libre. Elle se réfléchit ensuite sur l'onde plane acoustique. Le plan de phase de cette dernière fait un angle θ_1 avec la surface libre et distant de x'_1 .

5.4 Cas optique et élastique bidimensionnel

Dans cette section, le plan de phase acoustique n'est plus parallèle à la surface libre, et le faisceau optique est en incidence normale sur celle-ci. Il s'agit donc d'un cas optique et élastique bidimensionnel, comme il peut être observé sur la figure 5.5.

Cette configuration se déduit de la précédente par une rotation d'un angle θ_1 du plan de phase de l'onde acoustique autour de l'axe (O, x_3) . Puisque ce dernier reste un axe principal, le coefficient de réflexion sur l'interface entre les milieux (a) et (b) reste le même. Dans le cas contraire, il faudrait le recalculer. De manière à exprimer la réponse indicielle, le retard de phase est maintenant calculé.

5.4.1 Calcul du déphasage optique induit par l'onde élastique

Pour cette situation, le changement de phase ϕ_2 est déterminé de la même manière que pour l'équation (5.26) :

$$\phi_2 = q_0 n(AB + BC) - q_0 AD \quad (5.30)$$

Cette fois-ci, les distances AB et BC ne sont plus égales, et doivent être exprimées séparément. La distance AD est déterminée en effectuant les projections suivantes :

$$AD = AC \sin 2\theta_0 \quad (5.31)$$

$$AC = BC \sin 2\theta_1 \quad (5.32)$$

Les deux équations ci-dessus permettent de relier AD à BC :

$$AD = BC \sin 2\theta_0 \sin 2\theta_1 \quad (5.33)$$

Or la loi de Snell-Descartes impose l'égalité de la projection des vecteurs d'onde sur l'interface, c'est-à-dire que $n \sin 2\theta_1 = \sin 2\theta_0$. Par conséquent :

$$AD = nBC \sin^2 2\theta_1 \quad (5.34)$$

Par suite, en remplaçant (5.34) dans (5.30) :

$$\phi_2 = q_0 n x'_1 + q_0 n (1 - \sin^2 2\theta_1) BC = q_0 n x'_1 + q_0 n BC \cos^2 2\theta_1 \quad (5.35)$$

En remarquant que $BC \cos 2\theta_1 = x'_1$, l'équation précédente se simplifie :

$$\phi_2 = q_0 n x'_1 + q_0 n \cos 2\theta_1 x'_1 \quad (5.36)$$

La projection $q_{1a} = q_0 n \cos 2\theta_1$ du vecteur d'onde diffracté sur $\mathbf{x}_1$ est alors identifiée, la phase ϕ_2 exprimée :

$$\phi_2 = (q_0 n + q_{1a}) x'_1 \quad (5.37)$$

Maintenant que le retard de phase a été calculé, la réponse indicielle va être exprimée, et le changement de réflectivité déterminé.

5.4.2 Détermination du changement de réflectivité

De la même manière que précédemment, la réponse impulsionnelle s'obtient en dérivant la réponse indicielle par rapport à x'_1 dans le repère lié à la propagation du champ homogène :

$$\begin{aligned} \delta \tilde{r}_3^s &= jt_3^h \frac{q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{4q_{1a}^2} t_3^s (q_0 n + q_{1a}) e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} \\ &= jt_3^h \frac{q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{2q_{1a}} t_3^s \frac{q_{1a} (q_0 n + q_{1a})}{2q_{1a}^2} e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} \\ &= jt_3^h \frac{q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{2q_{1a}} t_3^s \frac{\cos 2\theta_1 (1 + \cos 2\theta_1)}{2 \cos^2 \theta_1} e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} \\ &= jt_3^h \frac{q_0^2 \tilde{\varepsilon}_3^s}{2q_{1a}} t_3^s \cos 2\theta_1 e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} \end{aligned} \quad (5.38)$$

où t_3^h et t_3^s représentent respectivement les coefficients de transmission du vide vers le milieu en incidence normale, et du milieu vers le vide avec une composante k_2 , pour le mode ordinaire polarisé suivant $\mathbf{x}_3$. Le changement de réflectivité est alors calculé en intégrant dans la direction du champ diffracté pour prendre en compte la forme spatiale de l'impulsion acoustique :

$$\begin{aligned} \tilde{r}_3^s &= jt_3^h \frac{q_0^2}{2q_{1a}} t_3^s \cos 2\theta_1 \int_0^d \tilde{\varepsilon}_3^s(X'_1) e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} \frac{dx'_1}{\cos 2\theta_1} \\ &= jt_3^h \frac{q_0^2}{2q_{1a}} t_3^s \int_0^d \tilde{\varepsilon}_3^s(X'_1) e^{j(q_0 n + q_{1a}) x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (5.39)$$

Ainsi, la rupture de symétrie par rapport à la géométrie précédente, qui a amené à distinguer x_1 de X_1 , fait apparaître une dérivation de la réponse indicielle dans une direction différente de l'intégration de la réponse impulsionnelle.

5.4.3 Expression du changement de réflectivité dans le repère lié aux axes principaux

Il faut alors noter que la variation de permittivité $\tilde{\varepsilon}_3^s(X'_1) = p_{12}\tilde{N}_1(X'_1)$ est toujours exprimée dans le repère lié au plan de phase acoustique. Il faut donc changer de base la matrice $[\tilde{\varepsilon}]$. Le tenseur de déformation doit maintenant être exprimé sous forme matricielle dans le repère $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$:

$$[\tilde{\eta}] = \begin{bmatrix} \tilde{\eta}_1 & \tilde{\eta}_6 & 0 \\ \tilde{\eta}_6 & \tilde{\eta}_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (5.40)$$

Sa forme est définie par l'équation (4.21) hors des axes liés au plan de phase acoustique. La matrice rotation $[R]$ permettant de passer du repère $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$ à $(\mathbf{X}_1, \mathbf{X}_2, \mathbf{X}_3)$ est alors définie par :

$$[R] = \begin{bmatrix} \cos \theta_1 & -\sin \theta_1 & 0 \\ \sin \theta_1 & \cos \theta_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (5.41)$$

où θ_1 est l'angle fait par le vecteur d'onde acoustique avec le vecteur optique, comme indiqué sur la figure 5.5. La matrice de déformation est ensuite exprimée dans le repère $(\mathbf{X}_1, \mathbf{X}_2, \mathbf{X}_3)$ par la relation $[\tilde{N}] = [R]^{-1}[\tilde{\eta}][R]$. Ses composantes s'écrivent alors :

$$\tilde{N}_1 = \tilde{\eta}_1 \cos^2 \theta_1 + \tilde{\eta}_2 \sin^2 \theta_1 + 2\tilde{\eta}_6 \cos \theta_1 \sin \theta_1$$

$$\tilde{N}_2 = \tilde{\eta}_1 \sin^2 \theta_1 + \tilde{\eta}_2 \cos^2 \theta_1 - 2\tilde{\eta}_6 \cos \theta_1 \sin \theta_1$$

$$\tilde{N}_3 = \tilde{N}_4 = \tilde{N}_5 = 0$$

$$\tilde{N}_6 = (\tilde{\eta}_2 - \tilde{\eta}_1) \cos \theta_1 \sin \theta_1 + \tilde{\eta}_6(2 \cos^2 \theta_1 - 1)$$

Or la composante $\tilde{N}_2$ est nulle car elle est exprimée dans le repère lié à l'onde plane, donc $\tilde{N}_1 = \tilde{N}_1 + \tilde{N}_2 = \tilde{\eta}_1 + \tilde{\eta}_2$. Le changement de réflectivité s'exprime finalement :

$$\tilde{r}_3^s = jt_3^h \frac{q_0^2}{2q_{1a}} t_3^s p_{12} \int_0^d (\tilde{\eta}_1 + \tilde{\eta}_2) e^{j(q_0 n + q_{1a})x'_1} dx'_1 \quad (5.42)$$

Ce résultat diffère de ceux présents dans la littérature en cela qu'il rend compte d'une onde acoustique se propageant dans une direction quelconque. Il sera retrouvé dans le chapitre suivant par la méthode du matricant. Par la suite, l'indice a, b ne sera pas utilisé puisqu'il repose sur l'utilisation d'une interface virtuelle, uniquement nécessaire au calcul présenté ici.

Les mêmes calculs doivent ensuite être effectués pour une polarisation incidente contenue dans le plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$. Ceux-ci ne sont pas présentés dans le cadre de l'optique géométrique, mais seront développés au chapitre suivant.

5.5 Conclusion

A l'aide d'une méthode basée sur l'optique géométrique dans les milieux anisotropes, le changement de réflectivité subi par un mode polarisé suivant un axe principal optique du milieu

perturbé a été déterminé. Cela correspond à l'interaction élasto-optique avec une onde acoustique plane longitudinale dont la direction de propagation est quelconque. Il s'agit donc du cœur du calcul de l'interaction entre un faisceau optique gaussien et un champ acoustique tridimensionnel.

Les mêmes calculs peuvent être menés pour obtenir le changement de réflectivité associé à une onde acoustique plane transverse. Ceci permettrait d'obtenir une généralisation des résultats énoncés par O. Matsuda [121], dans le cas d'une propagation acoustique de direction quelconque. Cependant, ces calculs conduiraient à des développements plus lourds car il serait nécessaire de considérer un mode optique incident polarisé dans le plan. Ce cas n'a donc pas été présenté dans le cadre de l'optique géométrique, mais sera développé au chapitre suivant par une méthode basée sur le matricant.

A ce stade du calcul du changement de réflectivité, les résultats obtenus peuvent servir à décrire l'interaction oblique d'un faisceau laser d'extension latérale infinie avec une onde plane longitudinale ou transverse. Cela est notamment utile pour déterminer théoriquement la forme des oscillations Brillouin dues à une onde plane acoustique transverse [19, 126].

Malgré tout, la technique présentée ici est fastidieuse, et les évolutions vers des cas plus complexes sont difficiles à mettre en œuvre, notamment lorsque des matériaux initialement anisotropes, ou encore multicouches, sont considérés. En effet, cela induit des rotations de polarisation au moment des réflexions car la polarisation du mode incident n'est pas suivant un axe principal. En outre, la biréfringence naturelle du cristal se superpose à celle induite acoustiquement. En d'autres termes, il faut considérer, dès la traversée de la surface libre en incidence oblique, la transmission de deux modes optiques.

Par ailleurs, le cas d'une seule onde plane optique incidente est ici uniquement considéré. Pour représenter un faisceau optique gaussien (ou une autre forme plus complexe), il faut procéder à une décomposition spectrale de la répartition spatiale de l'énergie optique, et étudier l'interaction de chaque onde plane optique, en incidence oblique sur la surface libre, avec chaque onde plane acoustique. Cette opération sera effectuée au chapitre suivant par des moyens plus élégants.

Par conséquent, une méthode matricielle plus simple et systématique sera envisagée au chapitre suivant. Elle permet de retrouver, de façon immédiate, les résultats présentés ici. En outre, elle autorise l'interaction directe d'une onde plane acoustique, longitudinale ou transverse, avec un faisceau gaussien, sans avoir à décomposer celui-ci en ondes planes. Les développements précédents issus de l'optique géométrique autoriseront alors l'analyse du sens physique des équations qui seront obtenues.

Chapitre 6

Calcul du changement de réflectivité avec le matricant

La propagation de l'onde acoustique crée une anisotropie optique induite, assimilable à une hétérogénéité transitoire. L'évolution du champ électromagnétique est alors régie par un système différentiel à coefficients variables. Les solutions sous forme d'ondes planes sont alors proscrites. Ce problème, identique à celui de la propagation acoustique dans un milieu à gradient de propriétés élastiques, peut être résolu par diverses méthodes analytiques pour une variation unidimensionnelle [129].

Dans le domaine des ultrasons laser, l'interaction d'une onde acoustique plane, longitudinale ou transverse, se propageant normalement aux interfaces, avec une onde optique plane en incidence oblique a été traité récemment [121]. Il s'agit d'une configuration unidimensionnelle d'un point de vue acoustique, et qui ne prend pas en compte l'aspect gaussien du faisceau optique. Ce problème a été résolu dans la littérature de deux façons différentes.

Le terme inhomogène du système différentiel peut être considéré comme une source [121], et la fonction de Green correspondante est alors recherchée [130]. Une autre approche consiste à résoudre l'équation de propagation optique par la méthode de variation de la constante [21, 131]. Dans ces deux méthodes, la solution est approchée au premier ordre. Elles ne s'appliquent qu'au cas d'une seule onde plane acoustique. Cependant, leur extension à la prise en compte d'une perturbation bidimensionnelle, dans le cas d'un faisceau gaussien se propageant dans un matériau anisotrope, peut s'avérer difficile.

Une autre approche, initialement conçue pour la propagation acoustique en sismologie, consiste à décomposer le milieu inhomogène en une succession de milieux homogènes, et à déterminer la matrice de propagation pour chacun d'eux [132, 133]. Cette méthode présente un intérêt pour une évaluation numérique de la solution. Elle possède cependant un équivalent applicable à une variation continue [114] qui sera développé dans ce chapitre. La matrice de propagation, aussi appelée matricant, est alors développée en une série de Peano [134]. L'établissement de cette série repose en fait sur la théorie des approximations successives [135], et autorise un formalisme plus léger.

Toutefois, la méthode basée sur le matricant ne permet de résoudre que les systèmes différentiels ordinaires du premier ordre. Par conséquent, les champs électrique et magnétique seront

considérés séparément, à l'aide des équations de Maxwell. De plus, seule une variation unidimensionnelle des coefficients du système différentiel peut être modélisée. Afin de se placer dans cette configuration, les équations de Maxwell seront linéarisées à l'aide d'une double transformée de Fourier. Cette opération permettra en outre, comme dans la première partie de ce mémoire, de décomposer le champ acoustique bidimensionnel en une somme d'ondes planes monochromatiques. Cependant, elle fera apparaître un produit de convolution, empêchant ainsi une résolution analytique [136].

Cette convolution sera alors simplifiée dans le cadre de l'approximation paraxiale. Cette dernière consiste à supposer que la divergence du faisceau incident reste faible, et permet ainsi de décrire les faisceaux optiques gaussiens. Dès lors, les développements présentés ici permettront de considérer l'interaction d'un faisceau sonde gaussien avec une onde acoustique plane monochromatique dont la direction de propagation est quelconque.

6.1 Interaction oblique du laser avec une hétérogénéité acoustique monochromatique

Le tenseur diélectrique perturbé (4.19) est maintenant introduit dans les équations de Maxwell pour décrire la propagation optique dans le milieu hétérogène. A cause de cette variation des propriétés optiques, un système différentiel, dont les coefficients dépendent de l'espace et du temps, doit être examiné. Contrairement à l'équation de propagation optique (4.3), afin d'obtenir un système différentiel du premier ordre, les champs électrique et magnétique sont maintenant considérés séparément.

Puisqu'il s'agit d'un problème quasi-statique, les équations (4.1), décrivant la propagation du champ électrique au sein du matériau hétérogène, sont linéarisées en temps. Par conséquent, la transformée de Fourier temporelle permet de rechercher des solutions harmoniques à la fréquence angulaire ω pour les champs électrique et magnétique $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$. Cette opération ne sera pas notée explicitement, et le graphème tilde sera réservé à la double transformée de Fourier en temps et en espace :

$$\begin{aligned}\nabla \wedge \mathbf{H}(x_1, x_2) &= -jq_0^{(2)}\bar{\epsilon}(x_1, x_2)\mathbf{E}(x_1, x_2) \\ \nabla \wedge \mathbf{E}(x_1, x_2) &= jq_0\mu\mathbf{H}(x_1, x_2)\end{aligned}\tag{6.1}$$

où $^{(2)}\bar{\epsilon}$ est le tenseur diélectrique perturbé et q_0 le nombre d'onde optique dans le vide. La permittivité magnétique μ est une constante au regard des matériaux amagnétiques. Quand la transformée de Fourier spatiale est appliquée dans la direction $\mathbf{x}_2$, une convolution dans le domaine spectral apparaît à cause du produit $^{(2)}\bar{\epsilon}\mathbf{E}$. Cette dernière représente la somme des interactions de chaque composante du spectre optique avec toutes les composantes du spectre élastique. Par la suite, afin de résoudre analytiquement le système différentiel dans l'espace dual (k_2, ω) , les variables x_1 et x_2 doivent être séparées à l'intérieur du produit $^{(2)}\bar{\epsilon}\mathbf{E}$, avant d'appliquer la transformée de Fourier en x_2 .

En se plaçant dans le cas général où le champ électromagnétique incident dépend des variables

x_1 et x_2 , l'écriture suivante est obtenue :

$$\begin{aligned} [\varepsilon(x_1, x_2)] &= \varepsilon^h[I] + [\varepsilon^s(x_1, x_2)] \\ \mathbf{E}(x_1, x_2) &= \mathbf{E}^h(x_1, x_2) + \mathbf{E}^s(x_1, x_2) \\ \mathbf{H}(x_1, x_2) &= \mathbf{H}^h(x_1, x_2) + \mathbf{H}^s(x_1, x_2) \end{aligned} \quad (6.2)$$

La perturbation du tenseur diélectrique est représentée à travers la matrice $[\varepsilon^s(x_1, x_2)]$. Les variables $\{\mathbf{E}^h(x_1), \mathbf{H}^h(x_1)\}$ représentent le champ électromagnétique se propageant dans le matériau homogène, et $\{\mathbf{E}^s(x_1, x_2), \mathbf{H}^s(x_1, x_2)\}$ les champs diffractés. Dans le cadre de l'acoustique linéaire, l'amplitude de l'onde acoustique est petite ($\eta_i \ll 1$), et le formalisme du problème va alors être simplifié.

La source de la perturbation $[\varepsilon^s]$ et les champs optiques perturbés $\{\mathbf{E}^s, \mathbf{H}^s\}$ sont du même ordre de grandeur que le champ acoustique. Un développement limité au premier ordre est ainsi effectué pour linéariser les equations (6.1) :

$$\begin{aligned} \nabla \wedge \mathbf{E}^h(x_1, x_2) - jq_0\mu\mathbf{H}^h(x_1, x_2) &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{H}^h(x_1, x_2) + jq_0\varepsilon^h\mathbf{E}^h(x_1, x_2) &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{E}^s(x_1, x_2) - jq_0\mu\mathbf{H}^s(x_1, x_2) &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{H}^s(x_1, x_2) + jq_0\varepsilon^h\mathbf{E}^s(x_1, x_2) &= -jq_0[\varepsilon^s](x_1, x_2)\mathbf{E}^h(x_1, x_2) \end{aligned} \quad (6.3)$$

Linéariser le système (6.1) a permis d'obtenir un système différentiel à coefficients constants. Le membre de gauche des équations (6.3) décrit la distribution spatiale de la solution propagative, alors que celui de droite détermine son amplitude.

Au premier ordre, le membre de gauche ne dépend pas de $[\varepsilon^s]$. La norme des vecteurs d'onde optiques ne sera donc pas affectée par la variation des propriétés optiques. En revanche, puisque le terme source fait apparaître $[\varepsilon^s]$, l'amplitude et la direction de propagation du champ électromagnétique seront modifiées. Ainsi le champ électromagnétique sera diffracté spatialement, mais sa fréquence restera la même.

Puisque la norme des vecteurs d'onde optiques n'est pas influencée par le changement des propriétés optiques, chaque onde plane acoustique considérée dans le domaine de Fourier diffracte l'onde optique dans une direction avec une composante k_2 . Linéariser l'interaction acousto-optique implique de négliger les termes du second ordre $^{(2)}\overline{\varepsilon^s}\mathbf{E}^s$. Cette hypothèse signifie que l'onde optique diffractée n'interagit pas avec les autres ondes planes acoustiques (au premier ordre, elle n'est diffractée qu'une seule fois). Dès lors, chaque onde plane acoustique peut être étudiée séparément, et le système suivant est établi dans le domaine de Fourier (k_2, ω) à partir des équations (6.3) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{\mathbf{f}}^h(x_1, k_2)}{\partial x_1} &= [\tilde{A}^h(k_2)]\tilde{\mathbf{f}}^h(x_1, k_2) \\ \frac{\partial \tilde{\mathbf{f}}^s(x_1, k_2)}{\partial x_1} &= [\tilde{A}^s(k_2)]\tilde{\mathbf{f}}^s(x_1, k_2) + [I^k(k_2)] \left\{ [\tilde{a}(x_1, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}^h(x_1, k_2) \right\} \end{aligned} \quad (6.4)$$

avec :

$$\tilde{\mathbf{f}}^h(x_1, k_2) = \begin{Bmatrix} \tilde{E}_3^h \\ \tilde{H}_2^h \\ \tilde{E}_2^h \\ \tilde{H}_3^h \end{Bmatrix}, \quad \tilde{\mathbf{f}}^s(x_1, k_2) = \begin{Bmatrix} \tilde{E}_3^s \\ \tilde{H}_2^s \\ \tilde{E}_2^s \\ \tilde{H}_3^s \end{Bmatrix} \quad (6.5)$$

$$[\tilde{A}^h(k_2)] = [\tilde{A}^s(k_2)] = jq_0 \left[\begin{array}{cc|cc} 0 & \mu & 0 & 0 \\ \varepsilon^h - \frac{k_2^2}{q_0^2 \mu} & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & \frac{k_2^2}{q_0^2 \varepsilon^h} - \mu \\ 0 & 0 & -\varepsilon^h & 0 \end{array} \right] = \begin{bmatrix} [\tilde{A}_3^s] & 0 \\ 0 & [\tilde{A}_2^s] \end{bmatrix} \quad (6.6)$$

$$[I^k(k_2)] = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & k_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & k_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} [I_3^k] & 0 \\ 0 & [I_2^k] \end{bmatrix} \quad (6.7)$$

$$[\tilde{a}(x_1, k_2)] = jq_0 \left[\begin{array}{cccc} 0 & 0 & 0 & 0 \\ \tilde{\varepsilon}_3^s & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{\tilde{\varepsilon}_6^s}{q_0 \varepsilon^h} & 0 \\ 0 & 0 & -\varepsilon_2^s & 0 \end{array} \right] = jq_0 \left[\begin{array}{cc|cc} 0 & 0 & 0 & 0 \\ \tilde{a}_{21} & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & \tilde{a}_{33} & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{a}_{43} & 0 \end{array} \right] = \begin{bmatrix} [\tilde{a}_3] & 0 \\ 0 & [\tilde{a}_2] \end{bmatrix} \quad (6.8)$$

où $[\tilde{a}]$ contient les changements de propriétés optiques. L'opérateur $\tilde{*}$ désigne le produit de convolution dans la direction k_2 . La matrice $[I^k]$ rassemble les termes en k_2 qui ne sont pas convolués avec $\tilde{\mathbf{f}}^h$. A ce niveau, $[\tilde{A}^h(k_2)] = [\tilde{A}^s(k_2)]$, mais ces deux matrices sont nommées différemment de façon à pouvoir traiter distinctement la propagation des champs homogène et diffracté par la suite. Le terme $^{(2)}\overline{\varepsilon^s}$ est maintenant convolué avec la transformée du champ électrique homogène $\tilde{\mathbf{f}}^h(x_1, k_2)$. Un formalisme similaire à celui développé par A. Miklós [137] est ainsi retrouvé pour la matrice $[\tilde{A}^s]$.

Les matrices 2x2 en haut à gauche, $[\tilde{A}_3^s]$ et $[\tilde{a}_3]$, représentent la propagation du mode optique polarisé suivant l'axe $\mathbf{x}_3$, tandis que les matrices 2x2 en bas à droite, $[\tilde{A}_2^s]$ et $[\tilde{a}_2]$, décrivent le mode polarisé dans le plan $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$. Puisque les autres sous-matrices sont nulles, il n'y a pas de couplage entre ces deux modes, et aucune rotation de la polarisation des modes diffractés par rapport à la polarisation incidente n'est à attendre, contrairement aux matériaux anisotropes [20]. Le système matriciel en haut à gauche sera noté avec l'indice $p = 3$, et celui en bas à droite avec $p = 2$. Ainsi, la résolution du problème est scindée pour étudier séparément l'influence de chaque polarisation p . Le système (6.4) est ensuite réécrit pour manipuler des matrices 2x2 plus petites :

$$\frac{\partial \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_1, k_2)}{\partial x_1} = [\tilde{A}_p^h(k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_1, k_2) \quad (6.9)$$

$$\frac{\partial \tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_1, k_2)}{\partial x_1} = [\tilde{A}_p^s(k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_1, k_2) + [I_p^k(k_2)] \left\{ [\tilde{a}_p(x_1, k_2)] \tilde{*} \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_1, k_2) \right\} \quad (6.10)$$

avec

$$\tilde{\mathbf{f}}_p^z = \begin{Bmatrix} \tilde{E}_p^z \\ \tilde{H}_{5-p}^z \end{Bmatrix} \quad (6.11)$$

où l'indice $z = h, s$ désigne respectivement les solutions homogène et diffractée.

6.2 Résolution à l'aide du matricant

La matrice appelée matricant définit la solution à une position x_1 comme une fonction des conditions limites exprimées en x_0 . Sa détermination permet de résoudre analytiquement des systèmes différentiels ordinaires du premier ordre, dont les coefficients peuvent varier comme une fonction de la variable x_1 [114]. Cette technique est très utile pour l'étude de la propagation dans les milieux dont les propriétés¹ varient dans une direction. Par conséquent, la diffraction sur une inhomogénéité, représentée par une fonction continue ou discrète, peut être analysée [138]. Dans le cas traité ici, la linéarisation permettra de supprimer la dépendance en espace des coefficients du système différentiel, et l'hétérogénéité sera déplacée dans le second membre. En outre, des structures multicouches peuvent également être examinées en définissant la succession de couches comme une fonction discrète des propriétés concernées, sans avoir à préciser explicitement les conditions limites à chaque interface [139].

Le système différentiel, formé par les équations (6.9) et (6.10), est maintenant résolu en utilisant le matricant pour déterminer les champs électromagnétiques homogène et diffracté $\mathbf{f}^z$, avec $z = h, s$ respectivement. Puisque le problème est séparé pour étudier chaque polarisation $p = 2, 3$, les vecteurs $\mathbf{f}_p^z$ seront considérés séparément de la même manière. En supposant que les systèmes (6.9) et (6.10) possèdent chacun N_s solutions indépendantes $^i \mathbf{f}_p^z(x_1, k_2)$, $N_s = 2$ étant la dimension des systèmes, il est possible de construire les matrices intégrales des systèmes $[X_p^z(x_1, k_2)] = [^1 \mathbf{f}_p^z(x_1, k_2), \dots, ^n \mathbf{f}_p^z(x_1, k_2)]$. En imposant une condition limite localisée en $x_1 = x_0$, $[X_p^z(x_1, k_2)]$ deviennent les matricants $[\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_1, x_0, k_2)]$, écrits pour chaque système matriciel p de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial [\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_1, x_0, k_2)]}{\partial x_1} &= [\tilde{A}_p^z(k_2)][\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_1, x_0, k_2)] \\ [\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_0, x_0, k_2)] &= [I] \end{aligned} \quad (6.12)$$

Les matricants sont constitués des solutions du système exprimées par rapport à une origine située en x_0 ; c'est en cela qu'ils diffèrent des matrices intégrales $[X_p^z]$.

Avec ce formalisme, comme $[A_p^z]$ ne dépend pas de x_1 , les matricants $[\tilde{\mathcal{M}}_p^z]$ sont exprimés comme des exponentielles de $[A_p^z]$. Celles-ci sont calculées en diagonalisant $[A_p^z]$ pour obtenir des exponentielles des valeurs propres de $[A_p^z]$, qui sont en fait les carrés des projections suivant $\mathbf{x}_1$ des nombres d'onde optiques. Cette étape consiste en la résolution de l'équation de dispersion optique et permet d'obtenir, en fixant l'origine de l'axe $\mathbf{x}_1$ en $x_0 = 0$:

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^z] = [P_p^z] \begin{bmatrix} e^{\lambda_{p1}^z x_1} & 0 \\ 0 & e^{\lambda_{p2}^z x_1} \end{bmatrix} [P_p^z]^{-1} \quad (6.13)$$

¹Permittivité diélectrique pour l'optique, et densité ou élasticité pour l'acoustique.

où $\lambda_{p_1}^z$ et $\lambda_{p_2}^z$ sont les valeurs propres de $[\tilde{A}_p^z]$, et $[P_p^z]$ est la matrice de changement de base, composée des vecteurs propres. Puis les matrices $[\mathcal{M}_p^z]$ sont exprimées :

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_1, x_0, k_2)] = \begin{bmatrix} \frac{e^{jq_1^z x_1} + e^{-jq_1^z x_1}}{2} & \frac{e^{jq_1^z x_1} - e^{-jq_1^z x_1}}{2\beta_p^z} \\ \beta_p^z \frac{e^{jq_1^z x_1} - e^{-jq_1^z x_1}}{2} & \frac{e^{jq_1^z x_1} + e^{-jq_1^z x_1}}{2} \end{bmatrix} \quad (6.14)$$

avec $q_1^z = (q_0^2 n^2 - k_2^2)^{1/2}$, $\beta_3^z = q_1^z / q_0 \mu$, $\beta_2^z = q_0 \varepsilon / q_1^z$, et n l'indice de réfraction optique du matériau. Puisque la linéarisation au premier ordre de l'équation (4.1) impose que la norme du vecteur d'onde de l'onde optique diffractée ne soit pas modifiée, la projection q_1^z du vecteur d'onde optique dans la direction x_1 correspond au vecteur d'onde ordinaire.

Bien que cela ne soit pas le cas ici, il est à noter que, si $[A_p^z]$ dépend de x_1 , il est nécessaire de développer les matricants à l'aide d'une série de Peano [134]. Sa construction correspond à la méthode des approximations successives [135], et est peut être considérée comme le développement en série de l'exponentielle de l'intégrale de la matrice $[A_p^z]$:

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^z(x_1, x_0, k_2)] = [I] + \int_{x_0}^{x_1} [A_p^z(x'_1)] dx'_1 + \int_{x_0}^{x_1} [A_p^z(x'_1)] dx'_1 \int_{x_0}^{x'_1} [A_p^z(x''_1)] dx''_1 + \dots \quad (6.15)$$

Elle peut être évaluée numériquement ou, lorsque c'est possible, tronquée. Dans le cas acoustique unidimensionnel, $[\varepsilon^s]$ ne dépend pas de x_2 et il n'est pas nécessaire, avant d'appliquer la transformée de Fourier en k_2 , de linéariser les équations de Maxwell (6.1). Dès lors, ces dernières peuvent être résolues à l'aide du matricant en considérant $[\varepsilon^s(x_1)]$ comme un coefficient variable. En ne conservant que les termes d'ordre un en ε_{ij}^s , la série de Peano (6.15) peut être tronquée pour ne garder que la première intégrale, qui correspond alors au changement de réflectivité. Ainsi apparaît le lien avec les développements de T. Pézeril [22] et O. Matsuda [121], dont les principes sont rappelés dans l'annexe D.

L'expression (6.14) montre que le matricant $[\mathcal{M}_p^z]$ relie le champ z de polarisation p en x_1 à la condition limite en x_0 , et qu'il peut être considéré comme une matrice de propagation. La seconde équation de (6.12) normalise les matricants afin de préserver l'amplitude des solutions. La solution de l'équation homogène (6.9) est alors écrite :

$$\tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_1, k_2) = [\tilde{\mathcal{M}}_p^h(x_1, x_0, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_0, k_2) \quad (6.16)$$

L'équation (6.10) diffère de l'équation (6.9) puisqu'elle contient un terme source $[I_p^k(k_2)][\tilde{a}_p(x_1, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_1, k_2)$. Une solution décrivant le champ électromagnétique diffracté est alors recherchée sous la forme suivante :

$$\tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_1, k_2) = [\mathcal{M}_p^s(x_1, x_0, k_2)] \tilde{\mathbf{y}}(x_1, k_2) \quad (6.17)$$

où la variable $\tilde{\mathbf{y}}$ est introduite pour faciliter les calculs. En substituant la forme ci-dessus dans l'équation (6.10), il vient :

$$\frac{\partial [\mathcal{M}_p^s]}{\partial x_1} \tilde{\mathbf{y}} + [\mathcal{M}_p^s] \frac{\partial \tilde{\mathbf{y}}}{\partial x_1} = [\tilde{A}_p^s][\tilde{\mathcal{M}}_p^s] \tilde{\mathbf{y}} + [I_p^k] \left\{ [\tilde{a}_p] \tilde{\mathbf{f}}_p^h \right\} \quad (6.18)$$

Soit, en utilisant les équations (6.12)

$$[\tilde{A}_p^s][\tilde{\mathcal{M}}_p^s] \tilde{\mathbf{y}} + [\mathcal{M}_p^s] \frac{\partial \tilde{\mathbf{y}}}{\partial x_1} = [\tilde{A}_p^s][\tilde{\mathcal{M}}_p^s] \tilde{\mathbf{y}} + [I_p^k] \left\{ [\tilde{a}_p] \tilde{\mathbf{f}}_p^h \right\} \quad (6.19)$$

et le premier terme des membres de gauche et de droite s'annulent. Alors, il est obtenu en intégrant l'équation ci-dessus entre x_0 et x_1 :

$$\tilde{\mathbf{y}}(x_1, k_2) = \int_{x_0}^{x_1} [\mathcal{M}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k] \left\{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)]^* \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x'_1, k_2) \right\} dx'_1 + \tilde{\mathbf{y}}(x_0, k_2) \quad (6.20)$$

Soit, en utilisant la solution homogène (6.16) :

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{y}}(x_1, k_2) = \int_{x_0}^{x_1} [\mathcal{M}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k(k_2)] \left\{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)]^* \left\{ [\mathcal{M}_p^h(x'_1, x_0, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_0, k_2) \right\} \right\} dx'_1 \\ + \tilde{\mathbf{y}}(x_0, k_2) \end{aligned} \quad (6.21)$$

Ainsi, en introduisant cette solution $\tilde{\mathbf{y}}$ dans l'équation (6.17), en $x_1 = x_0$ la variable intermédiaire $\tilde{\mathbf{y}}(x_0, k_2) = \tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_0, k_2)$ est identifiée, et il est obtenu :

$$\tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_1, k_2) = [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x_1, x_0, k_2)] [\tilde{m}(x_1, k_2)] + [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x_1, x_0, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^s(x_0, k_2) \quad (6.22)$$

avec

$$[\tilde{m}(x_1, k_2)] = \int_{x_0}^{x_1} [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k] \left\{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)]^* \left\{ [\mathcal{M}_p^h(x'_1, x_0, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_0, k_2) \right\} \right\} dx'_1 \quad (6.23)$$

Les deux termes du membre de droite de l'expression (6.22) représentent respectivement la propagation du terme source de l'équation (6.10) et de la condition limite. Celle-ci sera explicitée plus tard pour calculer l'expression (6.22).

De façon à exprimer analytiquement l'expression (6.23), la forme de $\tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_0, k_2)$ doit être précisée. Dans le cadre de l'approximation paraxiale, une distribution gaussienne de l'intensité du faisceau laser incident va maintenant être supposée.

6.3 Prise en compte de l'aspect gaussien du faisceau sonde

Le laser utilisé génère un mode spatial transverse TEM₀₀, qui présente plusieurs avantages [140]. Le premier est que le laser peut être focalisé jusqu'à obtenir la plus petite tache focale autorisée par la limite de diffraction. De plus, la répartition de la densité de flux sur la section du faisceau est une fonction gaussienne, et la divergence du faisceau en sortie de l'objectif de microscope est inférieure à 20°. Dès lors, le faisceau sonde peut aisément être décrit par l'optique gaussienne en cherchant une solution approchée à l'équation d'onde (4.3) sous la forme [141] :

$$\mathbf{E} = E_0 \psi(x_1, x_2, x_3) e^{-jq_0 n x_1} \mathbf{x} \quad (6.24)$$

Cette solution diffère d'une onde plane par une répartition inhomogène de l'amplitude ψ dans l'espace. En supposant que ψ varie lentement avec x_1 , la dérivée seconde $\partial^2 \psi / \partial x_1^2$ est négligée. Fort de cette hypothèse, en introduisant cette forme dans l'équation (4.3), l'amplitude s'écrit :

$$\psi = \exp \left[-j \frac{q}{2R(x_1)} (x_2^2 + x_3^2) - j\phi \right] \exp \left(-\frac{x_2^2 + x_3^2}{w(x_1)^2} \right) \quad (6.25)$$

La première exponentielle décrit la propagation d'un front d'onde sphérique dont la courbure $R(x_1)$ dépend de x_1 . La deuxième exponentielle définit la décroissance gaussienne de l'amplitude

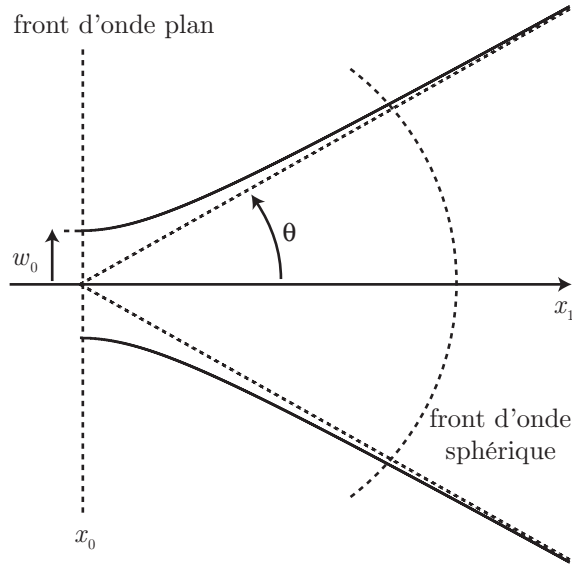


FIG. 6.1 – Evolution du contour latéral w du faisceau laser gaussien en fonction de la distance de propagation. Les asymptotes de coefficient directeur $\pm \tan \theta$ sont indiquées en pointillés, de même que les fronts d'ondes au col du faisceau (front plan) et à une position quelconque (front sphérique).

du faisceau. Le paramètre $w(x_1)$ représente la distance radiale x_1 à laquelle l'amplitude du champ électrique vaut E_0/e^2 (soit 13,5%), c'est-à-dire l'extension latérale de la tache focale.

Ainsi, la courbure du faisceau et son diamètre varient en fonction de la distance de propagation x_1 . Le col du faisceau² est situé en $x_1 = x_1^0$, où $R(x_1^0) = +\infty$ et $w = w_0$. A cette position, le front d'onde est plan et la taille de la tache focale atteint sa valeur minimale. Les expressions de R et w sont alors :

$$w^2(x_1) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda x_1}{\pi w_0^2} \right)^2 \right] \quad (6.26)$$

$$R(x_1) = x_1 \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda x_1} \right)^2 \right] \quad (6.27)$$

La courbe w décrit une hyperbole d'asymptotes de coefficients directeurs $\pm \tan \theta$, avec $\theta = \lambda/\pi w_0$, comme indiqué sur la figure 6.1. Cet angle définit la divergence du faisceau. La limite de diffraction impose que $w_0 > 1,83\lambda/2$ [119], donc $\theta < 20^\circ$ et l'approximation paraxiale reste valide. Cela justifie également le fait de considérer que $k_2 < q_0 n$ pour obtenir l'équation (5.25) au chapitre précédent.

Afin de négliger la variation du diamètre w du faisceau ainsi que sa courbure R au cours de la propagation, les équations (6.26) et (6.27) imposent que la pénétration optique γ^{-1} soit telle que $\gamma^{-1} \ll \pi w_0^2/\lambda$. Pour les données expérimentales utilisées par la suite ($w_0 = 1.7 \mu\text{m}$, $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$), cette hypothèse implique que $\gamma^{-1} \ll 4 \mu\text{m}$. Dans le cas de l'aluminium, considéré dans le dernier chapitre, $\gamma^{-1} = 8 \text{ nm}$. Ainsi, dans le cas d'une ligne focalisée sur la surface et polarisée suivant $\mathbf{x}_3$, le champ électrique s'écrit :

$$\mathbf{E} = E_0 e^{-x_2^2/w_0^2} e^{-jq_0 n x_1} \mathbf{x}_3 \quad (6.28)$$

²Le col du faisceau est appelé *beam waist* en anglais.

La divergence du faisceau incident est donc supposée suffisamment faible pour considérer que le champ électrique incident $\mathbf{E}^{inc} e^{jq_0 x_1}$ se propage dans le vide dans la direction $\mathbf{x}_1$, avec un vecteur d'onde q_0 . Cela implique que, désormais, $q_1^h = q_0 n$, et :

$$[A^h] = jq_0 \begin{bmatrix} 0 & \mu & 0 & 0 \\ \varepsilon^h & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\mu \\ 0 & 0 & -\varepsilon^h & 0 \end{bmatrix} \quad (6.29)$$

Ainsi, la propagation du champ homogène $\mathbf{f}^h$ dans la direction $\mathbf{x}_2$ est négligée. Alors, dans l'équation (6.23), $[\mathcal{M}^h(x'_1, x_0, k_2)] = [\mathcal{M}^h(x'_1, x_0)]$ peut être sorti de la convolution :

$$[\tilde{m}(x_1, k_2)] = \int_{x_0}^{x_1} [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k(k_2)] \left\{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)] \tilde{\mathbf{f}}_p^h(x_0, k_2) \right\} [\mathcal{M}_p^h(x'_1, x_0)] dx'_1 \quad (6.30)$$

De manière similaire à la première partie³, une fonction gaussienne décrivant l'amplitude du champ est introduite :

$$g_r(x_2) = \frac{1}{\chi_r} \sqrt{\frac{2 \ln(2)}{\pi}} e^{-2 \ln(2) x_2^2 / \chi_r^2} \quad (6.31)$$

où χ_r est la FWHM du profil en intensité du faisceau sonde. La FWHM du profil en amplitude se déduit alors par la relation $w_0 / \chi_r = \sqrt{2 / \ln 2}$. L'expression de la matrice $[\tilde{m}(x_1, k_2)]$ se simplifie alors :

$$[\tilde{m}(x_1, k_2)] = \int_{x_0}^{x_1} [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k(k_2)] \left\{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)] \tilde{g}_r(k_2) \right\} [\mathcal{M}_p^h(x'_1, x_0)] dx'_1 \quad (6.32)$$

et le calcul de ses coefficients constitutifs est explicité dans l'annexe E. Ainsi, l'expression (6.22) pourra être déterminée dans la section suivante en appliquant des conditions limites.

6.4 Conditions limites optiques

Une partie de l'énergie incidente est réfléchiée à la surface dans la direction $-\mathbf{x}_1$, avec un coefficient de réflexion r_p^h pour le mode polarisé suivant $\mathbf{x}_p$. L'énergie restante est transmise et pénètre dans le matériau. Elle est alors diffractée par la déformation acoustique avec un coefficient $[r^s]$ dépendant de l'espace. En supposant le faisceau focalisé sur la surface de l'échantillon, l'approximation paraxiale décrit le champ optique comme un front plan en $x_1 = x_0$ dont la distribution spatiale latérale est une gaussienne $g_r(x_2)$. Ainsi, les champs électromagnétiques dans le vide ${}^v \mathbf{E}^z$ et ${}^v \mathbf{H}^z$ s'écrivent sous la forme :

$$\begin{aligned} {}^v \tilde{E}_p^h(x_1, k_2) &= \left(e^{jq_0 x_1} + r_p^h e^{-jq_0 x_1} \right) \tilde{g}_r(k_2) E_p^{inc} \\ {}^v \tilde{H}_{5-p}^h(x_1, k_2) &= {}^v \beta_p^h \left(e^{jq_0 x_1} - r_p^h e^{-jq_0 x_1} \right) \tilde{g}_r(k_2) E_p^{inc} \\ {}^v \tilde{E}_p^s(x_1, k_2) &= \tilde{r}_p^s(k_2) e^{-jq_0 x_1} E_p^{inc} \\ {}^v \tilde{H}_{5-p}^s(x_1, k_2) &= -{}^v \beta_p^s \tilde{r}_p^s(k_2) e^{-jq_0 x_1} E_p^{inc} \end{aligned} \quad (6.33)$$

³Dans la première partie, il s'agissait d'une gaussienne en intensité notée G_r .

où les quantités désignées avec l'exposant gauche v sont exprimées dans le vide ($n = 1$) : ${}^v q_1^s = (q_0^2 - k_2^2)^{1/2}$, ${}^v \beta_p^h = (-1)^{p-1}$ et ${}^v \beta_p^s = (-1)^{p-1} ({}^v q_1^s / q_0)^{2p-5}$. Les termes E_p^{inc} sont les composantes p du champ incident, et r_p^z représente le coefficient de réflexion de la composante p du champ électrique $z = h, s$. La continuité des champs électromagnétiques en $x_1 = x_0 = 0$ donne 8 équations :

$$\begin{aligned}\tilde{E}_p^h(x_0, k_2) &= (1 + r_p^h) \tilde{g}_r E_p^{inc} \\ \tilde{H}_{5-p}^h(x_0, k_2) &= {}^v \beta_p^h (1 - r_p^h) \tilde{g}_r E_p^{inc} \\ \tilde{E}_p^s(x_0, k_2) &= \tilde{r}_p^s E_p^{inc} \\ \tilde{H}_{5-p}^s(x_0, k_2) &= -{}^v \beta_p^s \tilde{r}_p^s E_p^{inc}\end{aligned}\tag{6.34}$$

où E_p^z et H_{5-p}^z sont respectivement les composantes p des champs électrique et magnétique z à l'interface vide-milieu en x_0 . Puisqu'il y a dix inconnues $E_p^h(x_0)$, $H_{5-p}^h(x_0)$, $\tilde{E}_p^s(x_0, k_2)$, $\tilde{H}_{5-p}^s(x_0, k_2)$ et r_p^s , deux équations de plus sont nécessaires à la résolution. Elles sont fournies par l'ajout d'une interface virtuelle. L'hypothèse est faite que, après une certaine distance de propagation x_1^h , le matériau est homogène à nouveau et que seules des ondes progressives se propagent [127]. La condition limite (6.34) est propagée jusqu'à x_1^h conformément à l'équation (6.22), et l'amplitude des termes en $\exp(-jq_1^s x_1^h)$ est annulée :

$$\begin{aligned}&\left(\tilde{m}_{7-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) \tilde{E}_p^h(x_0) \\ &+ \left(\tilde{m}_{7-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) \tilde{H}_{5-p}^h(x_0) = -\tilde{E}_p^s(x_0, k_2) + \frac{1}{\beta_p^s} \tilde{H}_{5-p}^s(x_0, k_2)\end{aligned}\tag{6.35}$$

Si la pénétration optique, qui limite la zone sondée, est plus grande que l'épaisseur d , le faisceau laser interagit avec le substrat et est partiellement réfléchi par l'interface correspondante. Il serait alors nécessaire de prendre en compte les termes en $\exp(-jq_1^s x_1^h)$. Par conséquent, dans le cadre de ce modèle, x_1^h est supposé inférieur à d . L'ajout de ces deux équations (6.35) permet de résoudre le système et, en injectant les équations (6.34) dans les équations (6.35), les coefficients de réflexion sont obtenus dans le domaine de Fourier :

$$\tilde{r}_p^s = \frac{t_p^h t_p^s}{2} \tilde{g}_r \left[\left(\frac{\tilde{m}_{8-2p, 8-2p}}{\beta_p^s} - \tilde{m}_{7-2p, 8-2p} \right) {}^v \beta_p^h + \frac{\tilde{m}_{8-2p, 7-2p}}{\beta_p^s} - \tilde{m}_{7-2p, 7-2p} \right]\tag{6.36}$$

où les coefficients de transmission t_p^h et t_p^s , du vide vers le matériau en incidence normale, et du matériau vers le vide à l'angle de diffraction, sont respectivement identifiés :

$$t_p^h = \frac{2 {}^v \beta_p^h}{{}^v \beta_p^h + \beta_p^h} \quad \text{et} \quad t_p^s = \frac{2 \beta_p^s}{\beta_p^s + {}^v \beta_p^s}\tag{6.37}$$

Contrairement à t_p^s qui dépend de k_2 à travers β_p^s , t_p^h ne dépend pas de la direction de propagation acoustique car, dans le cadre de l'approximation paraxiale, $q_1^h = q_0 n$.

La linéarisation de l'interaction élasto-optique, couplée à l'utilisation de l'optique gaussienne, a permis de séparer les variables x_1 et k_2 à l'intérieur du produit de convolution dans l'équation (6.23). Ainsi, la fonction de convolution g_r ne dépendant pas de x_1 , remplacer les coefficients m_{ij} par leur expressions dans l'équation (6.36) conduit à :

$$\begin{aligned} \tilde{r}_3^s(k_2) &= jq_0 \frac{t_3^h t_3^s}{2\beta_3^s} \tilde{g}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \{ \tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \\ \tilde{r}_2^s(k_2) &= -jq_0 \frac{t_2^h t_2^s}{2\beta_2^s} \tilde{g}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \left(\{ \tilde{\varepsilon}_2^s(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} - \frac{k_2}{q_1^s} \{ \tilde{\varepsilon}_6^s(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} \right) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (6.38)$$

Les détails des calculs conduisant à ces expressions sont explicités en annexe E.

Une multiplication par le spectre de la distribution gaussienne $\tilde{g}_r$ apparaît pour prendre en compte la forme gaussienne du faisceau incident sur la surface libre. Quant à elle, la convolution avec $\tilde{g}_r$ traduit la forme gaussienne de l'impulsion sonde au moment de l'interaction acousto-optique. Elle décrit la somme des interactions de chaque composante du spectre du faisceau sonde incident avec la composante k_2 du spectre acoustique. L'importance de cette convolution sera discutée dans le chapitre suivant.

6.5 Conclusion

Une méthode élégante et efficace pour la détermination du changement de réflectivité, dû à une hétérogénéité acoustique monochromatique d'orientation quelconque, a été présentée. Basée sur un formalisme matriciel classiquement utilisé en optique, elle utilise le matricant pour résoudre le système différentiel décrivant la propagation du champ électromagnétique [142]. Le sens physique des développements présentés ici a été mis en exergue par les calculs effectués au chapitre précédent.

Ainsi la réponse du matériau est obtenue facilement pour n'importe quelle polarisation optique incidente, et pour n'importe quel mode acoustique, contrairement à la méthode basée sur l'optique géométrique présentée au chapitre précédent. Les résultats obtenus par O. Matsuda [121] et T. Pézeril [21] sont donc généralisés, puisque dans les développements exposés ici, la direction de propagation de l'onde plane acoustique est quelconque.

En outre, l'extension aux matériaux anisotropes, ainsi qu'aux multicouches, est facilement réalisable. Enfin, la forme du faisceau incident peut également être prise en compte de façon analytique, soit dans le cadre de l'optique gaussienne, soit dans des cas plus complexes. Ceci constitue un apport notable, puisque le modèle résultant permet de mettre en évidence l'influence de l'extension latérale de l'impulsion sonde sur le processus de détection.

C'est donc le cœur du calcul dans le domaine de Fourier qui a été présenté. Les résultats pour l'interaction d'un faisceau laser gaussien avec une onde acoustique plane se propageant dans une direction oblique vont maintenant être sommés pour reconstruire le champ optique diffracté. Celui-ci se propage dans toutes les directions de l'espace, alors que le faisceau sonde est en incidence normale. Dès lors, les processus autorisant la détection du champ optique diffracté

doivent être explicités, puisque l'interférence avec le faisceau de référence ne peut se faire que sous certaines conditions.

Chapitre 7

Détection d'ondes optiques diffractées par un champ acoustique 3D

Dans le chapitre précédent, la diffraction d'un faisceau optique gaussien par une onde acoustique plane a été déterminée. Après l'interaction élasto-optique, la répartition spatiale de l'amplitude du champ diffracté n'est *a priori* plus gaussienne. En revanche, le champ optique réfléchi à la surface libre a lui une répartition d'amplitude toujours gaussienne. Or la détection réflectométrique est basée sur l'interférence de ce dernier avec le champ diffracté. Il est donc nécessaire d'explicitier les propriétés des contenus spectraux des deux champs optiques en présence, dont les interférences permettent la détection du champ rétrodiffusé.

Il est en effet indispensable, pour qu'elles soit détectées, que les composantes spectrales du champ diffracté soient présentes dans le spectre du champ réfléchi à la surface libre. En d'autres termes, il faut que chaque rayon du champ diffracté se propage dans une direction parallèle à un rayon contenu dans le champ réfléchi. Il sera ici démontré que c'est l'aspect gaussien du faisceau laser sonde incident qui assure cette condition.

En outre, le faisceau sonde a une extension latérale limitée. Dès lors, la variation spatiale d'intensité du champ électrique mesuré par la photodiode n'est plus négligeable. Contrairement au cas acoustique unidimensionnel, la quantité mesurée expérimentalement ne peut pas être assimilée à l'intensité du champ, mais c'est sa puissance qui doit être évaluée.

Afin d'illustrer l'importance des répartitions spectrale et spatiale du champ électrique diffracté, qui sont évidemment liées, et afin de représenter le signal expérimental, la réponse à un champ électrique incident de polarisation quelconque est d'abord exprimée. Puis, l'intensité associée au champ rétrograde, somme des champs réfléchi et diffracté, est déterminée. Enfin, la puissance mesurée par la photodiode est calculée analytiquement.

Puis des simplifications de l'interaction acousto-optique sont identifiées analytiquement. Elles permettent d'expliquer les mécanismes régissant, au travers de parallèles avec la spectroscopie Raman notamment. Finalement, la réponse à une source laser quasi-ponctuelle est déduite à l'aide d'une transformée de Hankel. Alors les résultats théoriques sont comparés à des mesures expérimentales.

Les signaux réflectométriques obtenus dans un film d'aluminium sont décrits, et l'influence de la diffraction acoustique est mise en exergue au travers de la détection d'ondes transverses. Finalement, l'effet de la diffraction de la lumière sur les oscillations Brillouin dans les films transparents est discutée.

7.1 Puissance associée à une détection quasi-linéique polarisée linéairement

A partir des calculs précédents, relatifs à une polarisation incidente suivant $\mathbf{x}_2$ ou $\mathbf{x}_3$, un champ électrique incident, dont la polarisation est dans le plan $(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$, est considéré :

$$\mathbf{E}^{inc} = E^{inc} \cos \varphi \mathbf{x}_2 + E^{inc} \sin \varphi \mathbf{x}_3 \quad (7.1)$$

La variable φ paramètre l'angle entre la direction de polarisation et l'axe $\mathbf{x}_2$, comme représenté sur la figure 7.1. De la même manière que pour les conditions limites, la partie du champ réfléchi par la surface libre est définie par ${}^v\mathbf{E}^r = r^h \mathbf{E}^{inc}$. Une combinaison des composantes p des coefficients définis ci-dessus est effectuée pour déterminer la variation du champ optique, diffracté dans le vide par la propagation d'un champ acoustique au sein d'un matériau isotrope transverse :

$${}^v\mathbf{E}^s(x_1, x_2, t) = r_2^s E^{inc} \cos \varphi \mathbf{x}_2 + r_3^s E^{inc} \sin \varphi \mathbf{x}_3 \quad (7.2)$$

Il est nécessaire de manipuler, dans un premier temps, des expressions dans le domaine spatio-temporel. Les transformées de Fourier seront appliquées plus loin.

Le champ rétrograde est la superposition du champ électrique diffracté ${}^v\mathbf{E}^s(x_1, x_2, t)$ et du champ réfléchi à la surface ${}^v\mathbf{E}^r(x_1, x_2, t)$. L'intensité du champ rétrograde est alors calculée :

$$I = |{}^v\mathbf{E}^r + {}^v\mathbf{E}^s|^2 = \mathcal{R}e \{ {}^v\mathbf{E}^{r*} {}^v\mathbf{E}^r + {}^v\mathbf{E}^{s*} {}^v\mathbf{E}^s + 2 {}^v\mathbf{E}^{r*} {}^v\mathbf{E}^s \} \quad (7.3)$$

où l'exposant droit $*$ représente le conjugué. En négligeant les termes du second ordre, l'équation ci-dessus est simplifiée :

$$I(x_2, t) = |{}^v\mathbf{E}^r|^2 + 2\mathcal{R}e \{ {}^v\mathbf{E}^{r*} {}^v\mathbf{E}^s \} = I_0(x_2, t) + \Delta I(x_2, t) \quad (7.4)$$

avec I_0 l'intensité mesurée en l'absence de perturbation, uniquement due au champ réfléchi. La variation d'intensité $\Delta I(x_2, t)$ est ainsi représentative de l'interférence du champ diffracté avec le champ réfléchi. C'est ce phénomène qui permet de détecter l'interaction élasto-optique, dont l'amplitude est trop faible pour être directement mesurable. Le champ réfléchi agit comme une porteuse modulée spatialement et temporellement par le champ diffracté.

La variation de puissance ΔP mesurée par la photodiode est calculée en intégrant le motif d'interférence de l'intensité ΔI sur la surface éclairée du capteur. Cette dernière est supposée

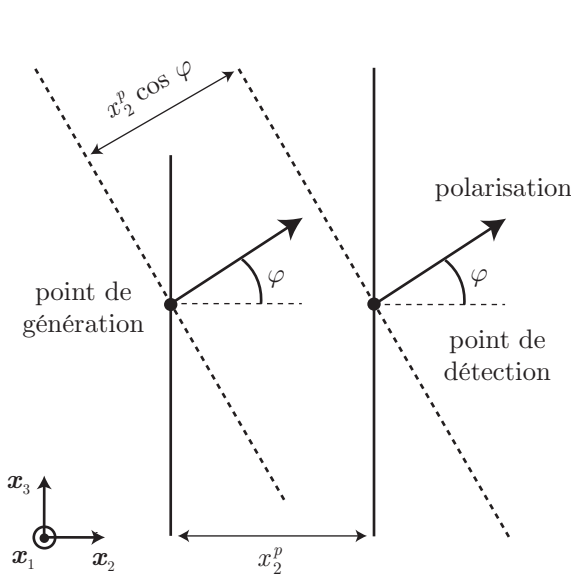


FIG. 7.1 – Les points de génération et de détection sont représentés, séparés de la distance x_2^p . Ils sont calculés à partir de la somme des lignes virtuelles (pointillées) distantes de $x_2^p \cos \varphi$ et dont la polarisation est repérée par l'angle φ .

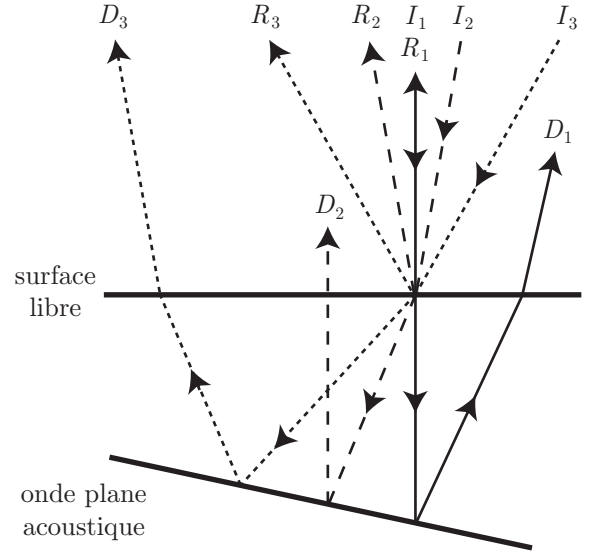


FIG. 7.2 – L'interaction de plusieurs ondes planes optiques incidentes avec une seule onde plane acoustique est représentée. Chaque rayon incident I_i donne naissance à un rayon R_i , réfléchi par la surface libre, et à un rayon D_i diffracté par l'onde plane acoustique. Alors D_2 peut interférer avec R_1 , et D_3 avec R_2 , puisqu'ils sont parallèles.

plus grande que la section du faisceau laser, et les bornes de l'intégrale sont infinies :

$$\begin{aligned} \Delta P(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \Delta I(x_2, t) dx_2 = 2\mathcal{R}e \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} {}^v \mathbf{E}^{r*}(x_1, x_2, t) {}^v \mathbf{E}^s(x_1, x_2, t) dx_2 \right\} \\ &= 2\mathcal{R}e \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} r^{h*} \mathbf{E}^{inc*}(x_1, x_2, t) g_r(x_2) r^h \frac{{}^v \mathbf{E}^s(x_1, x_2, t)}{r^h} dx_2 \right\} \\ &= 2|r^h E^{inc}|^2 \mathcal{R}e \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{r_2^s(x_2, t)}{r^h} \cos^2 \varphi + \frac{r_3^s(x_2, t)}{r^h} \sin^2 \varphi \right) g_r(x_2) dx_2 \right\} \quad (7.5) \end{aligned}$$

Or la puissance P_0 , mesurée en l'absence de perturbation, s'exprime de la façon suivante :

$$P_0 = \int_{-\infty}^{+\infty} I_0(x_2, t) dx_2 = |r^h E^{inc}|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} g_r^2(x_2, t) dx_2 = |r^h E^{inc}|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} G_r(x_2, t) dx_2 = |r^h E^{inc}|^2 \quad (7.6)$$

car la fonction gaussienne G_r a été normalisée de façon à conserver l'énergie de l'impulsion optique, de la même manière que dans l'équation (1.15) de la première partie. De plus, la puissance P_p , associée au champ électrique polarisé dans la direction p , est introduite :

$$P_p(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{r_p^s(x_2, t)}{r^h} g_r(x_2) dx_2 \quad (7.7)$$

où g_r définit la gaussienne en amplitude du faisceau sonde. En injectant les équations (7.6) et (7.7) dans l'équation (7.5), la puissance normalisée mesurée par la photodiode s'écrit :

$$\frac{\Delta P(t)}{P_0} = 2\mathcal{R}e \{ P_2(t) \cos^2 \varphi + P_3(t) \sin^2 \varphi \} \quad (7.8)$$

La fonction $p_p(x_2, t)$ est ensuite définie afin de calculer P_p simplement comme $P_p(t) = p_p(0, t)/r^h$:

$$p_p(x_2, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} r_p^s(x_2, t) g_r(x_2^c - x_2) dx_2^c = r_p^s(x_2, t) * g_r(x_2) \quad (7.9)$$

où l'opérateur $*$ désigne le produit de convolution dans la direction x_2 . Lorsque la transformée de Fourier en k_2 est appliquée, cette convolution devient une simple multiplication :

$$\tilde{p}_p(k_2, t) = \tilde{r}_p^s(k_2, t) \tilde{g}_r(k_2) \quad (7.10)$$

et $P_p(t)$ est déterminée comme la valeur en zéro de la transformée inverse de Fourier de $\tilde{p}_p(k_2, t)/r^h$. Il apparaît alors que, pour qu'un élément du spectre diffracté de composante k_2 soit détecté, il faut que cette même composante k_2 soit présente dans le spectre réfléchi, et donc incident. Par conséquent, c'est l'aspect gaussien du faisceau sonde qui permet la détection du champ optique diffracté.

Puisque la taille latérale du faisceau sonde est limitée, ce dernier peut être décomposé en une somme infinie d'ondes planes [143] avec des angles d'incidence non normaux. L'optique gaussienne, équivalente mais basée sur une approche différente, masque cette possibilité. D'un point de vue illustratif, il est plus simple de considérer une décomposition de Fourier, comme sur la figure 7.2. L'interaction de plusieurs ondes planes optiques incidentes avec une seule onde plane acoustique est représentée. Chaque rayon incident I_i donne naissance à un rayon R_i , réfléchi par la surface libre, et à un rayon D_i diffracté par l'onde plane acoustique. Alors D_2 peut interférer avec R_1 , et D_3 avec R_2 , puisqu'ils sont parallèles. Cette configuration n'est qu'un exemple simple, et il faut imaginer les mêmes phénomènes avec une somme continue d'ondes planes acoustiques. Cela permet cependant de comprendre le sens de la convolution (7.9), ainsi que le mécanisme de détection des ondes diffractées.

Jusqu'à présent, puisque l'extension latérale du faisceau sonde était supposée infinie, la grandeur mesurée en réflectométrie était assimilée, à tort, à l'intensité. En considérant des faisceaux focalisés, il est indispensable de déterminer la puissance correspondant au champ diffracté par la propagation du champ acoustique au sein du matériau.

La puissance associée à une source linéique a été déterminée. La signification de la convolution apparaissant dans l'équation (6.38) va maintenant être examinée. Il sera démontré que, sous certaines hypothèses, son écriture peut être simplifiée.

7.2 Forme de l'impulsion optique au moment de l'interaction avec l'onde acoustique

Pour prendre en compte la largeur du faisceau pompe, le spectre de la déformation a été multiplié par le spectre de la gaussienne en intensité $G_b(x_2)$ dans l'équation (1.17) de la partie précédente. En développant le produit de convolution des équations (6.38), les équations (7.10)

deviennent alors :

$$\begin{aligned}\tilde{p}_3(k_2) &= jq_0 \frac{t_3^h t_3^s}{2\beta_3^s} \tilde{G}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1, k_2^c) \tilde{G}_b(k_2^c) \tilde{g}_r(k_2 - k_2^c) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dk_2^c dx'_1 \\ \tilde{p}_2(k_2) &= jq_0 \frac{t_2^h t_2^s}{2\beta_2^s} \tilde{G}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{k_2}{q_1^s} \tilde{\varepsilon}_6^s(x'_1, k_2^c) - \tilde{\varepsilon}_2^s(x'_1, k_2^c) \right) \\ &\quad \times \tilde{G}_b(k_2^c) \tilde{g}_r(k_2 - k_2^c) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dk_2^c dx'_1\end{aligned}\quad (7.11)$$

puisque $\tilde{g}_r^2 = \tilde{G}_r$. Ces expressions font apparaître deux difficultés, la première étant que l'intégrale de convolution ne peut pas être calculée analytiquement. Il est donc nécessaire d'opérer une intégration numérique pour le calcul du spectre en k_2 , ce qui augmente considérablement le temps de calcul. De plus, les tailles des taches focales des faisceaux pompe et sonde doivent être connues séparément, ce qui constitue un obstacle expérimental. Afin de pallier à ces problèmes, les expressions (7.11) vont donc maintenant être simplifiées.

De façon à mieux comprendre l'origine de la convolution exprimée par les équations (7.11), le faisceau sonde incident gaussien est réécrit comme une somme d'ondes planes de vecteurs d'onde $\mathbf{q}^i = q_1^i \mathbf{x}_1 + k_2^i \mathbf{x}_2$, avec $q_1^i = (q_0^2 n^2 - k_2^{i2})^{1/2}$. Le champ électrique est diffracté dans la direction $\mathbf{q}^s = q_1^s \mathbf{x}_1 + k_2 \mathbf{x}_2$ par une onde plane élastique de vecteur d'onde $\mathbf{k} = k_1 \mathbf{x}_1 + k_2^c \mathbf{x}_2$. La conservation des moments [13] pendant l'interaction élasto-optique impose alors que $k_2^i = k_2^c - k_2$. Il apparaît donc que la somme en k_2^c des contributions d'amplitude $\tilde{g}_r(k_2 - k_2^c)$, c'est-à-dire la convolution, est égale à la somme en k_2^i des contributions incidentes d'amplitudes $\tilde{g}_r(k_2^i)$.

Ainsi, la convolution traduit la contribution à la diffraction dans la direction définie par k_2 de toutes les ondes optiques incidentes. La négliger revient donc, uniquement au moment de l'interaction acousto-optique, à ne prendre en compte que les faisceaux sondes en incidence normale. Ceci reste vrai pour des k_2^i petits tels que :

$$\frac{k_2^i \chi_r}{4\sqrt{\ln 2}} \ll 1 \quad (7.12)$$

c'est-à-dire pour des faisceaux sonde de faible divergence. Dans ce cas, les équations (7.11) se simplifient :

$$\begin{aligned}\tilde{p}_3(k_2) &= jq_0 \frac{t_3^h t_3^s}{2\beta_3^s} \tilde{G}_r(k_2) \tilde{G}_b(k_2) \int_0^{x_1^h} \tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1, k_2) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \\ \tilde{p}_2(k_2) &= jq_0 \frac{t_2^h t_2^s}{2\beta_2^s} \tilde{G}_r(k_2) \tilde{G}_b(k_2) \int_0^{x_1^h} \left(\frac{k_2}{q_1^s} \tilde{\varepsilon}_6^s(x'_1, k_2) - \tilde{\varepsilon}_2^s(x'_1, k_2) \right) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1\end{aligned}\quad (7.13)$$

Le produit des deux gaussiennes en intensité $\tilde{G}_r(k_2) \tilde{G}_b(k_2)$ est équivalent à la multiplication par une unique gaussienne de FWHM $\chi^{-1} = (\chi_r^2 + \chi_b^2)^{-1/2}$, paramètre accessible expérimentalement. Apparaît alors l'importance, à la fois, de la taille de la tache focale pompe pour la génération, et de la taille de la tache focale sonde pour la détection. Plus le faisceau sonde est focalisé, plus le spectre spatial de détection est large, et donc plus la sensibilité à la diffraction acoustique est importante.

Il est probable que l'influence des grands k_2^i soit mésestimée en négligeant la convolution dans les équations (7.11), et que la détection de la diffraction acoustique soit mal évaluée. Il est difficile d'en apprécier analytiquement l'ampleur, et une étude numérique sera menée plus tard pour en mesurer les conséquences, et juger du domaine de validité de ces simplifications.

7.3 Diffraction de la lumière engendrée par la diffraction acoustique

Avant de reconstruire le signal complet en appliquant la transformée de Fourier inverse, la contribution de chaque onde plane acoustique est analysée. Jusqu'à présent, la description des phénomènes d'interaction élasto-optique en acoustique picoseconde se limitait à des configurations unidimensionnelles d'un point de vue acoustique. Par conséquent, la diffraction de la lumière par la perturbation acoustique pouvait être assimilée au cas très particulier de la réflexion optique.

Suite à la propagation de l'onde acoustique plane, l'induction électrique du faisceau incident $\mathbf{E}^{inc}$ est modifiée dans la direction $^{(2)}\overline{\varepsilon^s} \mathbf{E}^{inc}$. En appliquant la transformée de Fourier en espace, seule la participation à la diffraction optique dans la direction définie par $\mathbf{q}^s = q_1^s \mathbf{x}_1 + k_2 \mathbf{x}_2$ est appréciée, comme représenté sur la figure 7.3. Or l'approximation au premier ordre conduit à supposer que la polarisation $\mathbf{P}^s$ du champ électrique reste perpendiculaire à $\mathbf{q}^s$, ainsi qu'il est indiqué sur la figure 7.4. Dès lors, seule la contribution de $^{(2)}\overline{\varepsilon^s} \mathbf{E}^{inc}$ dans la direction $\mathbf{P}^s$ est considérée. Par conséquent, l'amplitude du champ diffracté est proportionnelle au produit scalaire $\mathbf{P}^s \cdot ^{(2)}\overline{\varepsilon^s} \mathbf{E}^{inc}$. Ainsi, comme il apparaît dans l'expression (7.13), le faisceau incident polarisé dans la direction $\mathbf{x}_3$ donne naissance à un faisceau diffracté polarisé suivant $\mathbf{P}_3^s = \mathbf{x}_3$, et dont l'amplitude est proportionnelle à $\mathbf{P}_3^s \cdot ^{(2)}\overline{\varepsilon^s} \mathbf{E}^{inc} = \varepsilon_3^s$. De même, le faisceau incident polarisé dans la direction $\mathbf{x}_2$ donne naissance à un faisceau diffracté polarisé suivant $\mathbf{P}_2^s = -q_1^s \mathbf{x}_1 + k_2 \mathbf{x}_2$, et dont l'amplitude est proportionnelle à $\mathbf{P}_2^s \cdot ^{(2)}\overline{\varepsilon^s} \mathbf{E}^{inc} = q_1^s \varepsilon_2^s - k_2 \varepsilon_6^s$. Ce second cas est décrit sur la figure 7.4.

Alors, si la direction de la polarisation $\mathbf{P}^s$ du champ diffracté est perpendiculaire à la direction de la variation de l'induction électrique, il n'y a pas d'effet sur le coefficient de réflexion. L'amplitude du faisceau diffracté est uniquement sensible à la variation de l'induction électrique dans la direction de sa polarisation. Pour cette raison, afin de percevoir l'influence des ondes acoustiques transverses à travers ε_6^s , une interaction élasto-optique oblique avec $k_2 \neq 0$ est nécessaire. Dans le cas d'une seule onde plane acoustique de vecteur d'onde normal à l'interface, cette condition est assurée par une incidence oblique du faisceau sonde [20, 22]. Dans le cas présent, c'est la diffraction acoustique qui offre cette possibilité.

Dans les configurations acoustiques unidimensionnelles, le couplage élasto-optique peut être assimilé à une réflexion du faisceau sonde. La prise en compte de la diffraction acoustique permet de mettre en évidence qu'il s'agit de diffraction optique. En spectroscopie Raman [144], même s'il s'agit également de configurations 1D, l'interaction élasto-optique est expliquée par la diffraction. Ce domaine est pourtant semblable à l'acoustique picoseconde, puisque celle-ci peut être considérée comme de la spectroscopie Raman stimulée résolue en temps. Il est alors intéressant d'établir un parallèle entre les deux, en considérant des champs acoustiques bidimensionnels.

Afin de comprendre le sens des expressions (6.38), la perturbation diélectrique peut être décomposée en une somme continue de contributions élémentaires. L'onde plane acoustique, en se propageant, crée un réseau de propriétés optiques, dont le pas est égal à la longueur d'onde acoustique. Il peut être représenté par une superposition de plans de phase, chacun d'entre eux agissant comme une interface optique localisée en x'_1 . Ces derniers diffractent le faisceau sonde

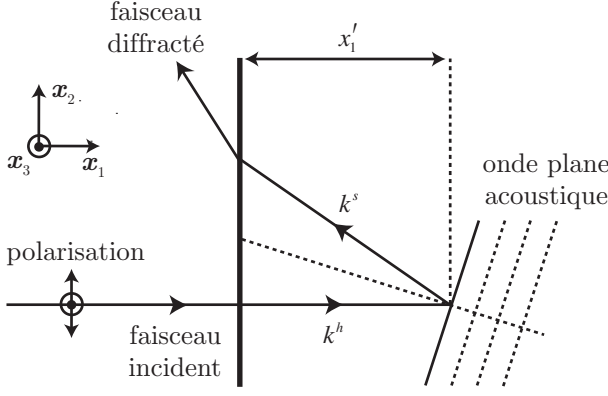


FIG. 7.3 – Le faisceau sonde en incidence normale interagit avec une seule onde plane acoustique se propageant dans une direction oblique.

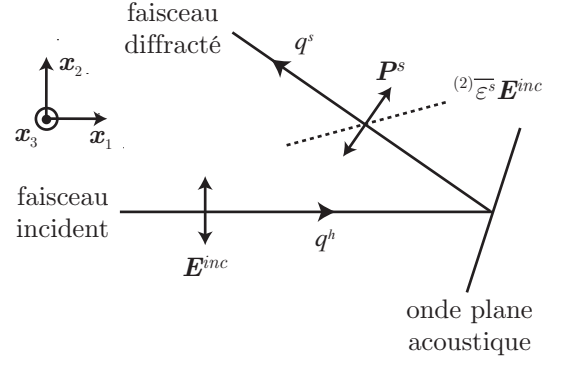


FIG. 7.4 – Un faisceau incident polarisé suivant x_2 est considéré. La polarisation diffractée P^s est perpendiculaire à q^s . La modification du déplacement électrique $^{(2)}\overline{\epsilon^s} E^{inc}$ est indiquée en pointillés.

incident de vecteur d'onde $q^h = (q_1^h, 0)$ dans la direction définie par $q^s = (q_1^s, k_2)$, pour un k_2 imposé par la transformée de Fourier spatiale. Les termes exponentiels de l'équation (6.38) correspondent au retard de phase induit par ce chemin optique à l'intérieur du matériau, ainsi qu'il a été calculé dans le chapitre 5.

En prenant en considération la propagation acoustique progressive et rétrograde dans les directions $\pm k = \pm k \cdot x_1 + k_2 x_2$, les composantes de $[\tilde{\epsilon}^s]$ dans l'équation (4.19) sont proportionnelles, dans l'espace de Fourier, au terme $\exp(\pm j k_1 x_1)$. En introduisant ce dernier dans l'équation (7.13), l'argument de l'exponentielle est par conséquent changé en $q_1^h + q_1^s \pm k_1$. Ainsi, afin de satisfaire la conservation des moments $q^h + q^s + \pm k = 0$ [13] pour un k_2 fixé, la propagation de l'onde acoustique favorise alors deux vecteurs d'onde optiques diffractés $\pm q^s$ tels que $+q^s = q^s - +k$ et $-q^s = q^s - -k$, ainsi qu'il est représenté sur la figure 7.5.

Les coefficients de transmission t_p^h et t_p^s décrivent respectivement la traversée de l'interface du vide vers le milieu en incidence normale, et du milieu vers le vide en incidence oblique. Par conséquent, t_p^s dépend de k_2 afin de satisfaire les lois de la réfraction. Les autres termes de l'équation (6.38), définissant l'amplitude des exponentielles, sont liés au produit scalaire $P^s \cdot ^{(2)}\overline{\epsilon^s} E^{inc}$, comme expliqué précédemment. Ainsi, ils sont respectivement proportionnels à ϵ_3^s et $q_1^s \epsilon_2^s - k_2 \epsilon_6^s$.

7.4 Puissance associée à une détection quasi-ponctuelle polarisée linéairement

Le spectre de la réponse à une ligne source focalisée sur la surface de l'échantillon est à présent calculé. Il faut maintenant, pour obtenir les signaux spatio-temporels, effectuer une double transformée de Fourier inverse. Cependant, le fait que la source expérimentale soit quasi-ponctuelle influe drastiquement sur la forme des échos acoustiques [28]. Il faut donc prendre en compte cette géométrie.

La réponse à une source ponctuelle localisée en x_2^p peut être déduite du spectre spatial de la

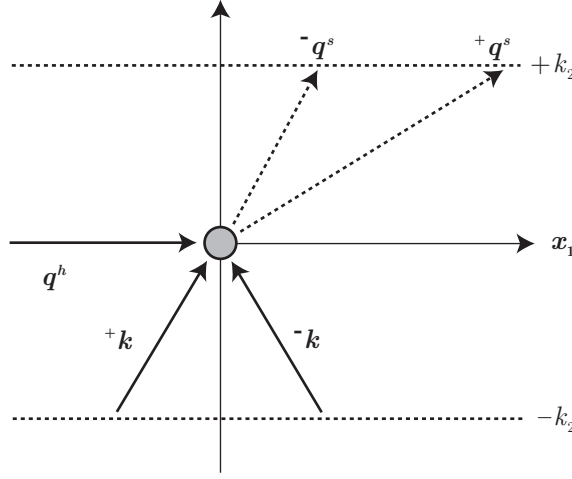


FIG. 7.5 – La diffraction du vecteur d'onde optique incident $\mathbf{q}^h$ par les vecteurs d'onde acoustiques $\pm \mathbf{k}$ favorise deux vecteurs d'onde diffractés $+\mathbf{q}^s$ et $-\mathbf{q}^s$.

réponse à une source linéique en appliquant une transformée de Hankel. Cette opération a été détaillée dans le paragraphe 1.2 de la première partie. Elle est équivalente à la somme continue de la dérivée spatiale des réponses à différentes lignes dont les orientations sur la surface sont définies par le paramètre φ , et distantes de $x_2^p \cos \varphi$, comme l'indique la figure 7.1.

Puisque le matériau est isotrope transverse, changer l'orientation de la ligne source est équivalent à changer la direction de polarisation. Ainsi qu'il est représenté sur la figure 7.1, φ définit l'orientation de la ligne source pour une polarisation fixée. De façon similaire à l'équation (1.10) de la première partie, une génération quasi-ponctuelle est ensuite obtenue en appliquant les transformées inverses de Hankel [60] et de Fourier au spectre de la réponse à une ligne source $\tilde{r}^s(k_2, \omega)$:

$$p(x_2^p, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{2\pi} [\tilde{p}_2(k_2, \omega) \cos^2 \varphi + \tilde{p}_3(k_2, \omega) \sin^2 \varphi] e^{-jk_2 x_2^p \cos \varphi} k_2 d\varphi dk_2 d\omega \quad (7.14)$$

la transformation porte ici sur la puissance car celle-ci dépend linéairement de la déformation. Ceci est équivalent à faire la somme de sources quasi-linéiques, de même forme gaussienne définie par le paramètre χ . Le jacobien de la transformation k_2 traduit la dérivée spatiale, et l'exponentielle décrit le déphasage entre les lignes de génération et de détection. La transformée de Hankel est alors effectuée en multipliant le spectre par des fonctions de Bessel de la première espèce J_0 et J_1 [58] :

$$\frac{\Delta P(x_2^p, t)}{P_0} = \frac{2\pi}{r^h} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\tilde{p}_2^s \left(k_2 J_0(-k_2 x_2^p) + \frac{J_1(-k_2 x_2^p)}{x_2^p} \right) - \tilde{p}_3^s \frac{J_1(-k_2 x_2^p)}{x_2^p} \right] dk_2 d\omega \quad (7.15)$$

avec

$$J_0(x_2^p) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{jx_2^p \cos \varphi} d\varphi \quad (7.16)$$

$$J_1(x_2^p) = \frac{x_2^p}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{jx_2^p \cos \varphi} \sin^2 \varphi d\varphi \quad (7.17)$$

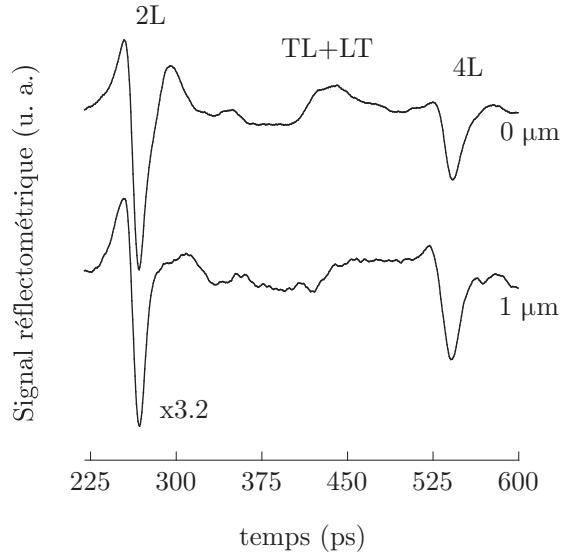


FIG. 7.6 – Signal réflectométrique mesuré dans un film d'aluminium isotrope déposé sur un substrat de Mylar pour des distances pompe-sonde x_2^p de 0 et 1 μm . Les échos longitudinaux 2L et 4L, de même que les échos issus de conversion de modes TL and LT, sont observés.

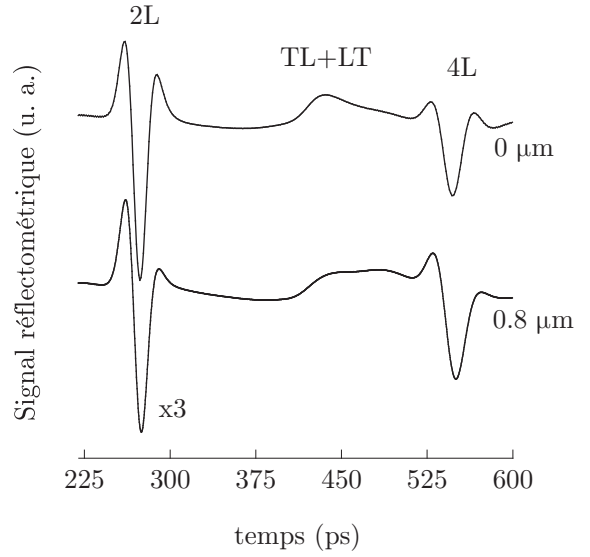


FIG. 7.7 – Signal réflectométrique calculé dans un film d'aluminium isotrope déposé sur un substrat de Mylar pour des distances pompe-sonde x_2^p de 0 et 0.8 μm . Les échos longitudinaux 2L et 4L, de même que les échos issus de conversion de modes TL and LT, sont observés.

Lorsque $x_2^p = 0$, c'est-à-dire à l'épicentre, ce formalisme se simplifie de façon à éviter une divergence du calcul :

$$\frac{\Delta P(0, t)}{P_0} = \frac{\pi}{r^h} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} (\tilde{p}_2^s + \tilde{p}_3^s) k_2 dk_2 d\omega \quad (7.18)$$

Le changement de réflectivité correspondant à la détection des effets acoustiques générés par une source quasi-ponctuelle a été déterminé analytiquement dans le domaine de Fourier. Afin d'obtenir le signal spatio-temporel sous forme intégrale, les transformées inverses de Fourier et de Hankel ont été appliquées. Des expériences vont à présent être menées afin d'effectuer une comparaison avec les résultats issus de cette approche théorique.

7.5 Réponse réflectométrique d'un film d'aluminium isotrope sub-micrométrique

7.5.1 Résultats expérimentaux

Les expériences sont menées à l'aide d'une technique pompe-sonde dans un film d'aluminium isotrope d'épaisseur $d=900$ nm, déposé sur un substrat de Mylar de 3.5 μm . Des mesures réflectométriques sont effectuées à partir du montage présenté dans la figure 3.3 de la première partie. Ainsi, les propriétés absorbantes du matériau permettent au faisceau sonde d'interagir avec le champ acoustique diffracté dans la zone de pénétration optique. Puisque celle-ci est relativement peu étendue (seulement quelques nanomètres), l'hypothèse qui a conduit à négliger la variation de la forme du faisceau gaussien au cours de sa propagation dans l'équation (6.28) est justifiée. Les résultats expérimentaux sont tracés sur la figure 7.6 pour plusieurs positions relatives de la

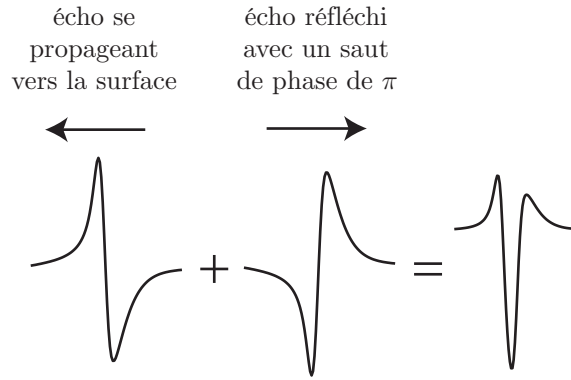


FIG. 7.8 – Formation de l'écho longitudinal tri-polaire par réflexion sur la surface d'une impulsion acoustique bipolaire, à une position proche de la surface libre.

sonde. Le fond thermique, correspondant à la relaxation lente du polycristal, est retranché en soustrayant un polynôme. Seul le signal acoustique est représenté. Les échos longitudinaux ayant parcouru un et deux allers-retours, appelés respectivement $2L$ et $4L$, sont identifiés à partir de leurs temps d'arrivée respectifs. La période de leur apparition correspond au rapport $2d/v_L \approx 281$ ps, avec $v_L \approx 6.4$ nm/ps la célérité de l'onde longitudinale dans l'aluminium polycristallin [145].

Jusqu'à maintenant inexistant sur les signaux expérimentaux présentés obtenus pour l'or dans la première partie, un écho transverse est également observé entre les deux longitudinaux. Comme la taille de la source est petite, les ondes longitudinales et transverses sont diffractées dans toutes les directions. Alors, afin de satisfaire les conditions limites, c'est-à-dire les lois de Snell-Descartes, une partie de l'énergie est réfléchi avec une conversion de mode aux interfaces pour former les ondes LT et TL. Elles se propagent sur des distances égales en des temps égaux, puisque les projections de leurs lenteurs sur la surface sont identiques, comme l'indique la figure 3.5 de la première partie. Ainsi, elles arrivent en même temps et contribuent à l'information issue de la propagation de l'onde transverse dans le signal expérimental. De la même manière, une partie de l'onde transverse ne change pas de polarisation à la réflexion sur l'interface. Malheureusement, comme la célérité de l'onde transverse $v_T \approx 3.1$ nm/ps est pratiquement égale à la moitié de celle de l'onde longitudinale, cet écho $2T$ se superpose avec l'écho $4L$ sur des distances de propagation aussi courtes.

Puis la distance pompe-sonde est augmentée, et l'évolution du signal mesuré est discutée. Afin de comprendre et d'interpréter ces signaux expérimentaux, le changement de réflectivité issu des développements théoriques présentés dans cette partie, prenant en compte les aspects tridimensionnels de la détection, va être évalué numériquement.

7.5.2 Comparaison entre signaux expérimentaux et calculs semi-analytiques

Puisque l'impédance acoustique du Mylar est très faible comparée à celle de l'aluminium, seul l'aluminium est pris en compte. Ses valeurs sont données dans l'annexe B. La déformation est calculée à partir de la méthode décrite dans la première partie. Etant donné que la constante de couplage électron-phonon est relativement grande dans ce métal ($g_I = 49 \times 10^{16}$ W m⁻³ K⁻¹ [85]), les phénomènes microscopiques sont négligés, et la diffusion thermique est prise en compte à l'aide

d'un modèle parabolique. Enfin, le processus de détection est décrit à l'aide du matricant.

Les constantes photo-élastiques p_{11} et p_{12} sont ajustées de façon à faire correspondre les calculs théoriques aux résultats expérimentaux. Puisque l'amplitude des signaux est ici arbitraire, seul leur rapport a du sens [83]. Comme l'hypothèse est faite que le matériau est isotrope, le coefficient élasto-optique p_{66} est tel que $p_{66} = (p_{11} - p_{12})/2$. Les calculs sont effectués pour différentes distances pompe-sonde, comme le montre la figure 7.7. Les formes des échos longitudinaux et transverses sont parfaitement représentées, de même que leurs temps d'arrivée.

La forme des échos longitudinaux est maintenant discutée. Le champ de déplacement forme des impulsions unipolaires. Or, ainsi que le décrit l'interaction élasto-optique, le signal réflectométrique est sensible à la déformation. Celle-ci est la dérivée spatiale du déplacement, et forme donc des impulsions bipolaires. Puisque la sonde pénètre dans l'épaisseur du film, elle détecte une impulsion de déformation bipolaire qui se propage vers la surface, s'y réfléchit avec un saut de phase de π , et continue sa propagation en sens inverse. La somme de ces deux contributions donne naissance, près de la surface, à une forme tri-polaire, dont la dissymétrie est dictée par la diffusion thermique, comme le montre la figure 7.8. Cependant, lorsque la distance pompe-sonde est augmentée jusqu'à $0.8 \mu\text{m}$, les échos longitudinaux tendent à devenir bipolaires ; ce phénomène est représenté théoriquement. L'influence de la diffraction acoustique va maintenant être considérée de façon à tenter d'expliquer cette évolution.

En considérant le champ acoustique comme une somme d'ondes planes monochromatiques, il est possible d'estimer la limite x_1^d du champ proche par $x_1^d = \chi_b^2 f_L / v_L$ pour chaque fréquence f_L composant l'impulsion acoustique longitudinale. Lorsque la distance de propagation est plus grande que x_1^d , la détection de la dérivée spatiale du champ acoustique est attendue [54]. Une analyse de la transformée de Fourier du premier écho longitudinal obtenu dans l'aluminium montre que son énergie est centrée autour de $f_L = 20 \text{ GHz}$. Cette fréquence centrale correspond à une limite de champ proche $x_1^d = 4.5 \mu\text{m}$ pour $\chi_b = 0.5 \mu\text{m}$. Par conséquent, les échos longitudinaux 2L et 4L ont un contenu trop haute fréquence pour être sensibles à des effets de champ lointain sur des distances de propagation aussi courtes ($4d = 3.6 \mu\text{m}$).

Le changement de forme des échos longitudinaux doit donc être expliqué par d'autres mécanismes. L'écho longitudinal détecté à $0.8 \mu\text{m}$ se propage sur des distances plus grandes que celui détecté à $0 \mu\text{m}$. Il est par conséquent plus sensible à l'atténuation acoustique, et d'autant plus que son contenu est haute fréquence. Ainsi, le changement de forme des échos est dû à une compétition entre des effets de diffraction et d'atténuation élastique [28]. Ces phénomènes sont représentés par le modèle théorique.

L'influence de l'extension latérale de la source sur la forme des échos acoustiques, de même que sur la nécessité de considérer la convolution (7.11), va à présent être étudiée.

7.6 Influence de l'extension latérale de la source laser

Les calculs précédents sont effectués avec l'équation (7.11), puis avec l'équation (7.13), c'est-à-dire avec puis sans la convolution décrivant l'aspect gaussien de la sonde au moment de l'interaction élasto-optique. Les résultats sont ensuite tracés respectivement en traits pleins et en pointillés sur la figure 7.9. L'extension latérale de la tache focale de pompe vaut $\chi_b = 450 \text{ nm}$,

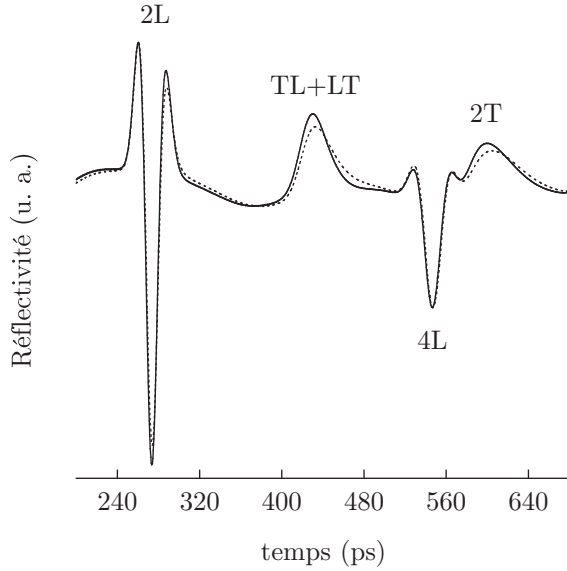


FIG. 7.9 – Comparaison entre les signaux numériques obtenus à l'épicentre avec (trait plein) et sans convolution (pointillés) pour une tache focale de pompe de $\chi_b = 450$ nm.

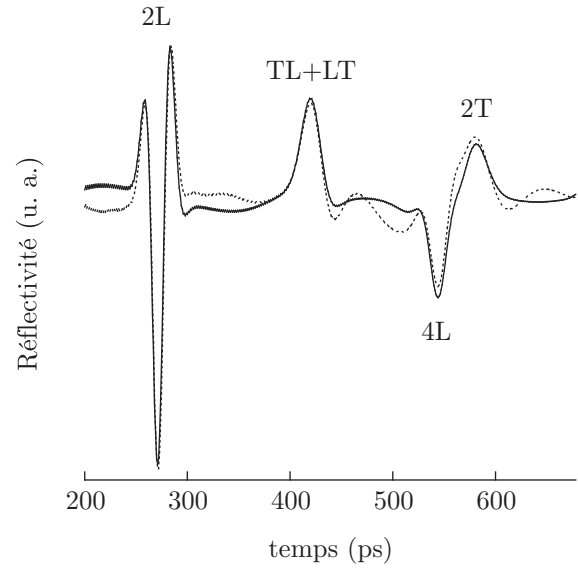


FIG. 7.10 – Comparaison entre les signaux numériques obtenus à l'épicentre avec (trait plein) et sans convolution (pointillés) pour une tache focale de pompe de $\chi_b = 200$ nm.

ce qui correspond à une taille légèrement inférieure à celle utilisée pour représenter les signaux expérimentaux. Contrairement aux signaux présentés dans la figure 7.7, la contribution de l'onde 2T commence à être visible. Peu de différences apparaissent avec la prise en compte de la convolution, et, pour des taches focales de pompe supérieures à 450 nm, elle peut donc être négligée. Dès lors, les calculs numériques sont beaucoup plus rapides, et il n'est pas nécessaire de connaître χ_b et χ_r séparément.

En revanche, pour $\chi_b = 200$ nm, qui est la meilleure focalisation qu'il soit possible d'obtenir théoriquement pour un faisceau de pompe bleu, ce n'est plus le cas. L'amplitude de l'écho 2T est à présent comparable à celle de l'écho 4L, ainsi qu'il peut être observé sur la figure 7.10. Il convient alors, pour $\chi_b = 200$ nm, de séparer le comportement des échos basse fréquence issus de la propagation des ondes transverses TL+LT et 2T des échos longitudinaux 2L plus haute fréquence.

Cette fois-ci, puisque la taille de la source est réduite, les hautes fréquences composant les échos longitudinaux sont détectées en champ lointain, et la dérivée d'un écho bi-polaire est observée [25, 26]. Ces hautes fréquences sont peu soumises à la dispersion spatiale, et diffractent donc le faisceau sonde avec de petits angles. Par conséquent, la relation (7.12) est vérifiée, et la non prise en compte de la convolution n'a que peu d'influence.

En revanche, les fréquences les plus basses, composant les échos issus des ondes transverses, sont beaucoup plus sensibles à la dispersion spatiale. Elles diffractent le faisceau sonde dans des directions très éloignées de la normale, avec de grands k_2 . Elles nécessitent donc la prise en compte des ondes planes incidentes, constituant le faisceau gaussien, qui se propagent avec de grands k_2^i . Alors, le fait de négliger la convolution conduit à mésestimation de la détection de la diffraction basse fréquence. Ainsi, la représentation de l'écho issu de la propagation des ondes transverses TL+LT et 2T devient excessivement bipolaire.

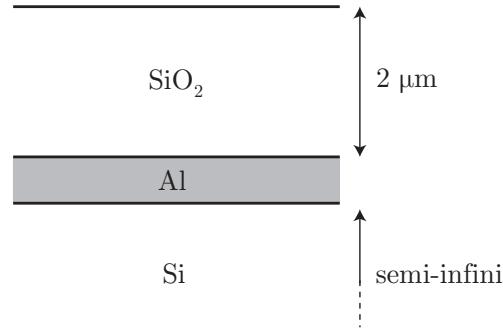


FIG. 7.11 – Géométrie du film transparent de silice (dioxyde de silicium SiO_2) de $2\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur une couche mince d'aluminium (Al), elle-même déposée sur un substrat semi-infini de silicium (Si).

7.7 Perspectives : oscillations Brillouin générées par un champ acoustique diffracté dans un milieu transparent

Dans la section précédente, il a été démontré que les ondes acoustiques transverses diffractées, issues du rayonnement d'une source d'extension latérale limitée, pouvaient être détectées par des mesures réflectométriques dans les matériaux fortement absorbants. En outre, une théorie décrivant les mécanismes d'interaction élasto-optique tridimensionnels a été développée, autorisant alors la représentation des phénomènes mesurés expérimentalement.

Si une telle source acoustique est placée dans un milieu transparent, le signal détecté contient des oscillations Brillouin dont les fréquences dépendent de la polarisation des modes acoustiques en présence, ainsi que des angles d'interaction élasto-optique. Autrement dit, outre les fréquences correspondant aux ondes longitudinales [69] et transverses [19], un élargissement du contenu spectral, dû à la répartition spatiale du champ optique diffracté, peut être attendu dans cette configuration.

Afin d'illustrer cette discussion, un échantillon, dont la géométrie est représentée sur la figure 7.11, est considéré. Il s'agit d'un film de silice (dioxyde de silicium SiO_2) de $2\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, déposé sur une couche mince d'aluminium (Al), elle-même déposée sur un substrat semi-infini de silicium (Si). La partie imaginaire de l'indice optique de la silice étant très proche de zéro, le film est considéré transparent au regard des longueurs d'onde optiques utilisées. De plus, dans la couche d'aluminium, la profondeur de pénétration optique est inférieure à l'épaisseur. En outre, les impédances acoustiques du silicium et de l'aluminium sont très proches. Par conséquent, cet échantillon peut être assimilé à un film de silice transparent déposé sur un substrat semi-infini d'aluminium.

Le faisceau pompe est focalisé à l'interface SiO_2/Al , et sa radiation est absorbée par l'aluminium. Ainsi, une source acoustique localisée est créée sur cette interface. Elle génère un champ acoustique diffracté, à la fois dans l'aluminium et dans la silice, par respect des conditions limites mécaniques entre les deux milieux. Le faisceau sonde a, quant à lui, une divergence due à la focalisation qui n'est plus négligeable au regard de la pénétration optique dans la silice. L'influence de la position du col du faisceau sonde est donc étudiée.

Le signal réflectométrique mesuré par la sonde focalisée, soit à la surface libre de la silice

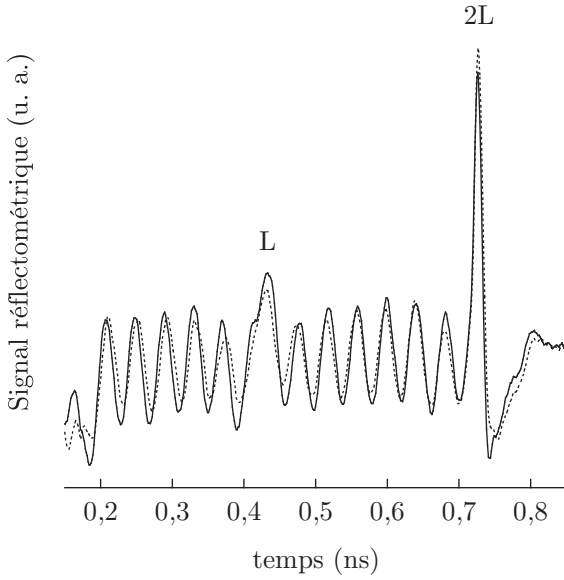


FIG. 7.12 – Comparaison entre le signal réflectométrique mesuré à l'épicentre en focalisant la sonde à l'interface SiO₂/air (trait plein) et à l'interface SiO₂/Al (pointillés).

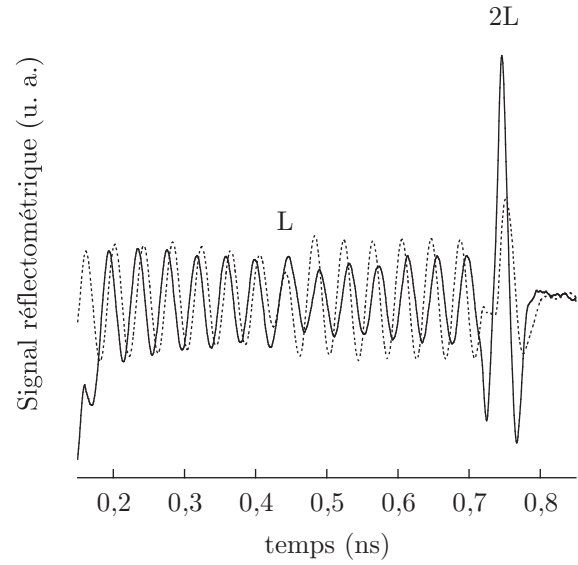


FIG. 7.13 – Comparaison entre le signal réflectométrique mesuré à l'épicentre (trait plein) et pour $x_1^d = 0.8 \mu\text{m}$ (pointillés) en focalisant la sonde à l'interface SiO₂/Al. Un déphasage est observé entre les deux signaux.

(pointillés), soit à l'interface SiO₂/Al (trait plein), est tracé sur la figure 7.12. Un polynôme est retranché de façon à soustraire le fond thermique. L'origine temporelle des signaux est fixée par le pic de coïncidence, qui n'est pas représenté. Une série d'oscillations est observée, de même qu'un pic vers 0.7 ns. L'analyse de son temps d'arrivée montre qu'il correspond à l'onde longitudinale 2L qui a parcouru un aller-retour dans le film de silice à la célérité $v_L = 5.97 \mu\text{m/ns}$ [146]. De plus, un saut de phase est observé vers 0.4 ns au moment où cette même onde se réfléchit sur la surface libre. L'examen du spectre fréquentiel des signaux montre que la fréquence des oscillations Brillouin correspond à celle générée par l'onde longitudinale : $f_b = 2nv_L/\lambda_r = 22 \text{ GHz}$, avec $n = 1.47$ [146]. Ainsi, le spectre n'est pas affecté par la diffraction et aucun signe de la présence d'une onde transverse n'est constaté. De plus, la forme des signaux n'est pas modifiée par la position du col du faisceau sonde.

Par la suite, la sonde est donc focalisée sur l'interface SiO₂/Al de manière à maximiser le rapport signal sur bruit, et la distance pompe sonde x_2^d est augmentée. Les signaux obtenus à l'épicentre et à $x_2^d = 0.8 \mu\text{m}$ sont comparés sur la figure 7.13. Les mêmes caractéristiques que sur les résultats présentés sur la figure 7.12 sont observées. Encore une fois, aucune modification du contenu fréquentiel n'est mesurée. En revanche, un déphasage des oscillations Brillouin obtenues pour les deux positions apparaît.

Afin d'analyser l'origine de ce déphasage, un calcul semi-analytique est effectué pour $\chi = 1.2 \mu\text{m}$. La géométrie expérimentale est trop complexe, en l'état actuel des modélisations numériques implémentées. Par conséquent, un espace semi-infini d'aluminium, absorbant au regard de la pompe, est considéré. Ses propriétés sont celles décrites en annexe B, excepté pour la partie imaginaire de l'indice optique à la longueur d'onde de la sonde $\lambda_r = 796 \text{ nm}$. Celle-ci est réduite d'un facteur 50 de telle manière que $n = 2.685 + 0.169j$, de façon à rendre

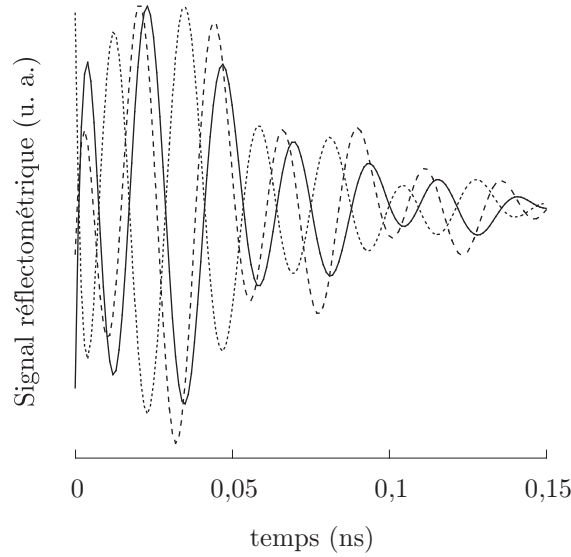


FIG. 7.14 – Calcul semi-analytique des oscillations Brillouin dans un matériau opaque pour la génération, et transparent pour la détection. Un polynôme est soustrait, et les amplitudes sont normalisées. Un déphasage est observé entre les signaux calculés à l'épicentre (trait plein), à $x_1^d = 1.5 \mu\text{m}$ (trait discontinu) et à $x_1^d = 3 \mu\text{m}$ (pointillés).

le milieu transparent au regard de la sonde (la longueur d'onde acoustique est plus petite que la profondeur de pénétration optique). La variation de la forme du faisceau gaussien sonde est négligée au cours de la propagation optique, conformément à l'équation (6.28). Les signaux réflectométriques calculés pour plusieurs distances pompe-sonde sont tracés sur la figure 7.14. De la même manière que sur les résultats expérimentaux, un déphasage est observé.

La phase des oscillations Brillouin est liée à celle du champ acoustique, ainsi qu'à celle de la fonction de sensibilité qui relie le champ optique diffracté à la perturbation élastique [89]. Dans chaque direction de diffraction optique considérée, la phase de l'onde acoustique au point détection, ainsi que le coefficient de réflexion optique sur celle-ci, varient. Par conséquent, la diffraction acoustique modifie la répartition spatiale de la phase des oscillations Brillouin. C'est ce phénomène qui est à l'origine du déphasage observé. Cela veut dire que la phase des oscillations est plus sensible à la diffraction acoustique que la fréquence.

Rien n'empêche théoriquement la détection des ondes transverses composant le champ acoustique diffracté, et leur absence peut s'expliquer de plusieurs manières. D'abord, l'efficacité de la génération des ondes transverses par rapport aux ondes longitudinales à l'interface SiO_2/Al doit être étudiée. De plus, les constantes photoélastiques doivent être suffisamment grandes à la longueur d'onde considérée. Or, pour un laser de sonde rouge, elles sont relativement faibles dans la silice pour permettre la détection d'ondes transverses de faible amplitude. Il serait alors intéressant de faire la même étude en sondant l'échantillon à une longueur d'onde bleue. Enfin, la divergence du faisceau gaussien au cours de sa propagation (conformément à la discussion menée au paragraphe 6.3), qui n'est pas prise en compte dans la simulation, peut atténuer la détection des ondes transverses.

Des analyses supplémentaires sont nécessaires afin de savoir si le contenu spectral du signal

mesuré en réflectométrie est sensible à la diffraction acoustique dans les milieux transparents. En outre, le déphasage observé doit être quantifié, et les simulations comparées aux expériences dans des cas plus proches des conditions expérimentales.

7.8 Conclusion

A partir de la diffraction optique par une seule onde plane monochromatique, le champ optique diffracté a été reconstruit par une double transformée de Fourier inverse en temps et en espace. Il a été mis en évidence dans ce chapitre que la grandeur mesurée expérimentalement ne pouvait plus être assimilée à l'intensité du champ optique diffracté et que, du fait de l'extension latérale limitée de la sonde, il était nécessaire de calculer sa puissance. La détermination de cette dernière a démontré que c'est l'aspect gaussien du faisceau sonde qui permet la détection des rayons optiques diffractés.

En outre, il a été établi que négliger l'aspect gaussien de la sonde, au moment de l'interaction élasto-optique, conduit à une mésestimation de la diffraction acoustique basse fréquence. Cependant, pour des taches focales suffisamment larges, telles que celles utilisées expérimentalement, cette approximation peut être faite. Elle permet alors de simplifier les expressions analytiques, et un parallèle avec la spectroscopie Raman peut alors être établi au travers de la conservation des moments.

Enfin, de la même manière que dans la première partie, l'application de la transformée de Hankel inverse permet d'obtenir la puissance du champ optique diffracté par un champ acoustique généré par une source quasi-ponctuelle. Les signaux réflectométriques mesurés dans un film d'aluminium sont alors parfaitement décrits par les calculs théoriques. Les effets de la diffraction acoustique sont identifiés, notamment à travers la détection d'ondes transverses. Cette comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs théoriques illustre la nécessité des développements présentés dans ce chapitre.

Dans les matériaux transparents, il a été montré que la diffraction acoustique modifiait la phase des oscillations Brillouin. Ce résultat remarquable est observé expérimentalement de même que théoriquement. Cependant, de manière à décrire quantitativement ce phénomène, des développements supplémentaires sont nécessaires. Il faudrait décrire la détection dans un milieu transparent déposé sur un substrat métallique, et prendre en compte la variation du faisceau sonde au cours de la propagation optique. De plus, il faudrait considérer expérimentalement d'autres échantillons, afin d'analyser l'influence des coefficients élasto-optiques. Au cours de cette analyse future, la quête de la détection d'ondes transverses diffractées par oscillations Brillouin pourra être poursuivie.

Conclusion

A travers une succession d'étapes simples, depuis la réflexion optique à une interface entre milieux isotrope et anisotrope, jusqu'à la diffraction d'un faisceau optique gaussien par un champ acoustique diffracté, les phénomènes impliqués dans la détection élasto-optique en acoustique picoseconde ont été analysés. Cette étude a conduit au calcul du changement de réflectivité induit par une source quasi-ponctuelle dans un film isotrope transverse, détecté par un faisceau optique gaussien focalisé.

L'association des transformées de Hankel et de Fourier a permis de ramener l'étude du champ acoustique tridimensionnel à la considération d'une seule onde plane de direction de propagation quelconque. L'interaction de celle-ci avec le faisceau optique gaussien peut se réduire à n'examiner la diffraction que d'une seule onde plane optique, si la diffraction acoustique n'est pas prise en compte. Dans ce cas, le calcul peut être effectué en optique géométrique pour des cas simples, ou à l'aide de la méthode basée sur le matricant pour des configurations plus complexes, faisant appel à de l'anisotropie, des multicouches ou des gradients de propriétés. Ces développements étendent le cas d'une onde acoustique plane, longitudinale ou transverse, se propageant normalement à la surface libre [121, 22], en considérant une direction de propagation quelconque. En outre, ils offrent une alternative simple au calcul par fonction de Green ou par approximations successives. Ils sont par conséquent particulièrement utiles pour l'étude par couplage élasto-optique de champs acoustiques se propageant dans une direction unique, tels que les ondes de surface [147], ou les ondes guidées.

Lorsque la diffraction acoustique est considérée, il est indispensable de prendre en compte l'aspect gaussien de l'impulsion sonde pour expliquer les mécanismes de détection. Il s'agit ainsi d'analyser l'interaction d'un champ acoustique tridimensionnel avec un faisceau optique gaussien quasi-ponctuel. La méthode matricielle prend alors toute son ampleur puisqu'elle permet une résolution aisée, sans avoir à décomposer le faisceau optique en ondes planes. Ce calcul revêt un intérêt particulier lorsque une source acoustique tridimensionnelle est présente. A terme, ce pourrait être le cas d'un diffuseur enfoui dans un milieu transparent. De plus, la modélisation de la forme du faisceau peut s'avérer opportune lors de l'étude de matériaux dont la géométrie n'est pas plane, comme dans les études envisagées au Laboratoire de Mécanique Physique pour les cylindres. Au delà du champ d'application de l'acoustique picoseconde, cette méthode est utile pour la caractérisation de l'interaction d'un champ propagatif tridimensionnel avec une perturbation acoustique également tridimensionnelle.

L'examen fondamental des processus d'interaction élasto-optique a permis de mettre en place les outils nécessaires à la compréhension de la détection d'un champ acoustique diffracté. Il a

été démontré que la diffraction acoustique des ondes transverses est révélée par la diffraction optique. Ce phénomène a été observé dans les matériaux absorbants, mais des études supplémentaires sont nécessaires pour caractériser son influence dans les milieux transparents. En outre, l'effet de la diffraction acoustique sur la phase des oscillations Brillouin a été mis en évidence expérimentalement, de même que théoriquement. Cela montre qu'il est possible de mesurer l'effet de la diffraction acoustique dans les milieux transparents. Dans ce simple déphasage sont cristallisés l'aboutissement et les perspectives offertes par ce travail de thèse.

Conclusion générale

La première partie de ce mémoire a traité du processus de génération d'un champ acoustique diffracté par impulsions laser sub-picosecondes focalisées. De façon à décrire les mécanismes microscopiques à l'œuvre dans les métaux, le modèle à deux températures a été étendu aux géométries tridimensionnelles. Une résolution analytique dans le domaine des fréquences et des longueurs d'onde a permis une analyse théorique du couplage photo-élastique. L'introduction du concept de surface de dispersion thermique a mis en exergue de façon inattendue l'influence de la diffusion électronique sur la diffraction acoustique basse fréquence. Une confrontation entre les données expérimentales et les simulations a démontré la validité de cette prédiction à travers l'étude de l'onde de Rayleigh générée dans un film d'or.

Un parallèle a été établi avec le modèle hyperbolique, et il serait intéressant d'analyser la description de la diffraction basse fréquence par ce dernier. En outre, la prise en compte de la propagation balistique des électrons dans les configurations bidimensionnelles pourrait étendre la gamme de modèles de génération et ainsi proposer une analyse fondamentale des processus microscopiques. Dès lors, la description fidèle des signaux expérimentaux offrira une estimation plus précise des constantes d'élasticité. Par ailleurs, l'utilisation d'impulsions de durées proches du temps de relaxation des électrons et de taches focales d'extension latérale inférieure à la distance de diffusion des électrons permettrait d'analyser l'influence des effets microscopiques sur la diffraction acoustique.

Dans le cas des configurations unidimensionnelles, un dispositif d'étirement des impulsions a été mis en place dans le montage expérimental. Les signaux ont été calculés à partir des contributions de la déformation, de manière classique, mais également de la température du réseau et de la température électronique. Cette approche a autorisé la représentation précise et complète des résultats expérimentaux quelle que soit l'échelle temporelle. Dès lors, l'évolution du pic de coïncidence et des échos acoustiques avec la durée d'impulsion a été décrite fidèlement. Cela a démontré l'existence d'un effet de filtre permettant de séparer les oscillations Brillouin des échos acoustiques. En outre, un maximum de génération a été mis en évidence pour des impulsions dimensionnées pour maintenir le maximum de température du réseau en dessous du seuil d'ablation.

Ainsi, le modèle à deux températures a atteint une maturité d'utilisation qui permet de décrire précisément la forme des échos et le signal issu du processus thermique. Dès lors, les modifications de ces derniers attribuées aux imperfections de contact entre le film et le substrat peuvent être caractérisées. La modélisation des interfaces pourrait se faire en introduisant d'abord une couche virtuelle, pouvant représenter un alliage formé entre le film et substrat. Une

description plus raffinée consisterait ensuite à introduire un gradient de propriétés thermique et mécanique. Le système différentiel à coefficients variables ainsi obtenu pourrait alors être résolu à l'aide du matricant. Alors, les effets d'interface sur les ondes de volume et sur les ondes de surface pourraient être analysés.

La seconde partie a été consacrée à la modélisation de l'interaction tridimensionnelle entre le champ acoustique diffracté le faisceau sonde focalisé. Pour y parvenir, deux approches ont été exposées. La première, basée sur l'optique géométrique, a permis de comprendre et d'identifier facilement les mécanismes physiques impliqués dans le processus de détection. Elle peut être utilisée dans des cas simples, lorsque des matériaux isotropes sont considérés, et si une seule onde plane acoustique de direction de propagation quelconque est présente. Par ailleurs, le faisceau sonde est également assimilé à une seule onde plane. Il serait alors intéressant d'étudier la possibilité de détecter des ondes de surface ou des ondes guidées par des techniques réflectométriques. Une incidence de sonde oblique pourrait être utilisée pour être sensible à la variation de l'induction électrique engendrée par la perturbation élastique.

La deuxième approche offre une méthode analytique plus souple et plus élégante à l'aide du matricant. Son formalisme matriciel est simple à manipuler et peut être facilement appliqué à des cas complexes. Elle permet en outre de considérer la forme gaussienne du faisceau laser. Il a été mis en évidence que c'est précisément cette forme gaussienne qui permet la détection du champ optique diffracté. De plus, le calcul de la puissance mesurée par la photodiode a été exprimé, car la quantité accédée expérimentalement n'est plus assimilable à l'intensité du fait de l'extension latérale finie du faisceau sonde. Ainsi, la méthodologie et le formalisme nécessaires à la description de la détection d'un champ optique d'extension latérale finie, diffracté par un champ acoustique tridimensionnel, ont été mis en place. La caractérisation des propriétés élastiques longitudinales et transverses par mesures réflectométriques est donc rendue accessible dans les milieux absorbants.

La méthode basée sur le matricant peut être étendue au cas des matériaux anisotropes. Cela offrirait la possibilité de représenter des signaux expérimentaux plus riches, et ainsi d'accéder à plus d'informations élastiques. Des rotations de polarisation dues au couplage élasto-optique avec le champ acoustique diffracté pourraient ainsi être étudiées. En séparant spatialement les contributions de chaque polarisation, différentes quantités élastiques pourraient alors être mesurées. De même, l'évolution du modèle vers les géométries multicouches est techniquement simple à mettre en œuvre. En outre, si ce mémoire se concentre sur les applications en acoustique picoseconde, une caractérisation thermique est également possible, en étendant la prise en compte du couplage thermo-optique, effectuée en 1D, à des configurations tridimensionnelles.

Mais la perspective la plus attractive est sans doute celle présentée à la fin de la deuxième partie. Il a en effet été démontré qu'il était possible d'observer l'influence de la diffraction acoustique sur les oscillations Brillouin. La détection d'ondes transverses reste à analyser dans d'autres matériaux et à d'autres longueurs d'onde. Une modification de la fréquence Brillouin, ainsi que de la forme du spectre est à attendre. La prise en compte dans le modèle de la variation de la forme du faisceau sonde au cours de sa propagation devra être implémentée. Alors, l'imagerie par des techniques réflectométriques dans les matériaux transparents sera accessible. En outre, des diffuseurs enfouis pourront être caractérisés à travers la détection du champ acoustique

qu'ils rayonneront.

En se basant sur des principes de diffraction de la lumière presque centenaires, une culture théorique, nécessaire au développement de modèles de détection élaborés, a été introduite au sein du Laboratoire de Mécanique Physique. Ce savoir permettra de poursuivre l'analyse de la détection optique d'un champ acoustique diffracté dans des structures plus complexes.

Annexe A

Détails du calcul du champ de déplacement

A partir des expressions des solutions homogènes et particulières, le champ de déplacement total a été exprimé dans le chapitre 1, pour les milieux I et II :

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{u}}_I &= \sum_{n=L,T} A_n^- U_I^{n-} e^{-j^n k_1^I x_1} + A_n^+ U_I^{n+} e^{j^n k_1^I x_1} + U_I^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I x_1} + U_I^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I x_1} + U_I^{p\gamma} e^{-\gamma_I x_1} \\ \tilde{\mathbf{u}}_{II} &= \sum_{n=L,T} B_n^- U_{II}^{n-} e^{-j^n k_1^{II} (x_1-d)} + U_{II}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_{II} (x_1-d)}\end{aligned}\quad (\text{A.1})$$

Les six inconnues A_n^- , A_n^+ et B_n^- , décrivant les amplitudes des solutions homogènes dans les milieux I et II sont obtenues en appliquant des conditions limites. De façon classique, la continuité des vecteurs contrainte et déplacement normaux à l'interface film/substrat, et l'annulation du vecteur contrainte normal à la surface libre permettent de résoudre complètement le système :

$$\begin{aligned}[\tilde{\sigma}^I] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=0} &= 0 \\ [\tilde{\sigma}^I] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=d} &= [\tilde{\sigma}^{II}] \cdot \mathbf{x}_1|_{x_1=d} \\ \tilde{\mathbf{u}}_I|_{x_1=d} &= \tilde{\mathbf{u}}_{II}|_{x_1=d}\end{aligned}\quad (\text{A.2})$$

De la même manière que pour le déplacement, la contrainte, donnée par l'équation (1.5) est séparée en parties homogène et particulière. La première contient les inconnues d'amplitude, et est rassemblée dans le membre de gauche, et la deuxième correspond au terme source :

$$\begin{aligned}\tilde{\sigma}_{11}^{Ih}|_{x_1=0} &= -\tilde{\sigma}_{11}^{Ip}|_{x_1=0} \\ \tilde{\sigma}_{12}^{Ih}|_{x_1=0} &= -\tilde{\sigma}_{12}^{Ip}|_{x_1=0} \\ (\tilde{\sigma}_{11}^{Ih} - \tilde{\sigma}_{11}^{IIh})|_{x_1=d} &= -\left(\tilde{\sigma}_{11}^{Ip} - \tilde{\sigma}_{11}^{IIp}\right)|_{x_1=d} \\ (\tilde{\sigma}_{12}^{Ih} - \tilde{\sigma}_{12}^{IIh})|_{x_1=d} &= -\left(\tilde{\sigma}_{12}^{Ip} - \tilde{\sigma}_{12}^{IIp}\right)|_{x_1=d} \\ (\tilde{u}_{I1}^h - \tilde{u}_{II1}^h)|_{x_1=d} &= -(\tilde{u}_{I1}^p - \tilde{u}_{II1}^p)|_{x_1=d} \\ (\tilde{u}_{I2}^h - \tilde{u}_{II2}^h)|_{x_1=d} &= -(\tilde{u}_{I2}^p - \tilde{u}_{II2}^p)|_{x_1=d}\end{aligned}\quad (\text{A.3})$$

Ces deux types de contraintes vont maintenant être exprimés.

A.1 Contraintes acoustiques homogènes

Puisque seules les solutions homogènes participent aux processus propagatifs, la contrainte homogène ne dépend que de la contrainte mécanique. Alors, en projetant l'équation (1.5) sur chaque direction :

$$\begin{aligned}\tilde{\sigma}_{11}^{mh} &= C_{11}\tilde{u}_{1,1}^{mh} + C_{12}\tilde{u}_{2,2}^{mh} \\ \tilde{\sigma}_{12}^{mh} &= \frac{1}{2}C_{66}\left(\tilde{u}_{1,2}^{mh} + \tilde{u}_{2,1}^{mh}\right)\end{aligned}\tag{A.4}$$

En utilisant (1.37), les équations ci-dessus deviennent :

$$\begin{aligned}\tilde{\sigma}_{11}^{Ih} &= \sum_{n=L,T} S_{I1}^n \left(-A_n^- e^{-j^n k_1^I} + A_n^+ e^{j^n k_1^I} \right) \\ \tilde{\sigma}_{12}^{Ih} &= \sum_{n=L,T} S_{I2}^n \left(A_n^- e^{-j^n k_1^I} + A_n^+ e^{j^n k_1^I} \right) \\ \tilde{\sigma}_{11}^{IIh} &= - \sum_{n=L,T} S_{II1}^n B_n^- e^{-j^n k_1^{II}} \\ \tilde{\sigma}_{12}^{IIh} &= \sum_{n=L,T} S_{II2}^n B_n^- e^{-j^n k_1^{II}}\end{aligned}\tag{A.5}$$

avec :

$$\begin{aligned}S_{m1}^n &= j \left({}^n k_1^m C_{11}^m U_{m1}^n - k_2 C_{12}^m U_{m2}^n \right) \\ S_{m2}^n &= j C_{66}^m \left({}^n k_1^m U_{m1}^n - k_2 U_{m1}^n \right)\end{aligned}\tag{A.6}$$

La partie homogène des conditions limites, c'est-à-dire les membres de gauche des équations (A.3), peut alors s'écrire sous forme matricielle contractée :

$$[\Lambda^h]\mathbf{X} = \begin{bmatrix} S_{I1}^L & S_{I1}^T & -S_{I1}^L & -S_{I1}^T & 0 & 0 \\ S_{I2}^L & S_{I2}^T & S_{I2}^L & S_{I2}^T & 0 & 0 \\ S_{I1}^L e^{j^L k_1^I d} & S_{I1}^T e^{j^T k_1^I d} & -S_{I1}^L e^{-j^L k_1^I d} & -S_{I1}^T e^{-j^T k_1^I d} & S_{II1}^L & S_{II1}^T \\ S_{I2}^L e^{j^L k_1^I d} & S_{I2}^T e^{j^T k_1^I d} & S_{I2}^L e^{-j^L k_1^I d} & S_{I2}^T e^{-j^T k_1^I d} & -S_{II2}^L & -S_{II2}^T \\ U_{I1}^L & U_{I1}^T & U_{I1}^L & U_{I1}^T & -U_{II1}^L & -U_{II1}^T \\ -U_{I2}^L & -U_{I2}^T & -U_{I2}^L & -U_{I2}^T & U_{II2}^L & U_{II2}^T \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} A_L^+ \\ A_T^+ \\ A_L^- \\ A_T^- \\ B_L^- \\ B_T^- \end{Bmatrix}\tag{A.7}$$

A.2 Contraintes particulières acoustiques et thermiques

Les contraintes particulières sont formées par la solution particulière du déplacement, et par la contrainte thermique :

$$\begin{aligned}\tilde{\sigma}_{11}^{Ip} &= C_{11}^I \tilde{u}_{1,1}^{Ip} + C_{12}^I \tilde{u}_{2,2}^{Ip} - (\lambda_1 M_I + \gamma_1^e C_e) \tilde{T}_I^e \\ \tilde{\sigma}_{12}^{Ip} &= \frac{1}{2} C_{66}^I \left(\tilde{u}_{1,2}^{Ip} + \tilde{u}_{2,1}^{Ip} \right) \\ \tilde{\sigma}_{11}^{IIp} &= C_{11}^{II} \tilde{u}_{1,1}^{IIp} + C_{12}^{II} \tilde{u}_{2,2}^{IIp} - \lambda_1 \tilde{T}_{II} \\ \tilde{\sigma}_{12}^{IIp} &= \frac{1}{2} C_{66}^{II} \left(\tilde{u}_{1,2}^{IIp} + \tilde{u}_{2,1}^{IIp} \right)\end{aligned}\tag{A.8}$$

Elles fournissent le membre de droite du système (A.3) donné par les conditions limites. Elles sont regroupées dans un vecteur $\mathbf{Y}$ dont les composantes s'expriment de la manière suivante :

$$Y_1 = -C_{11}^I \left(-\Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma-} + \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma+} - \gamma_I U_{I1}^{p\gamma} \right) - jk_2 C_{12}^I \left(U_{I2}^{p\Gamma-} + U_{I2}^{p\Gamma+} + U_{I2}^{p\gamma} \right) + (\lambda_1 M_I + \gamma_1^e C_e) \left(T_I^{h-} + T_I^{h+} + T_I^p \right) \quad (\text{A.9})$$

$$Y_2 = -\frac{1}{2} C_{66}^I \left[jk_2 \left(U_{I1}^{p\Gamma-} + U_{I1}^{p\Gamma+} + U_{I1}^{p\gamma} \right) - \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma-} + \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma+} - \gamma_I U_{I1}^{p\gamma} \right] \quad (\text{A.10})$$

$$Y_3 = jk_2 C_{12}^{II} U_{II2}^{p\Gamma-} - C_{11}^{II} \Gamma_{II} U_{II1}^{p\Gamma-} - C_{11}^I \left(-\Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} + \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} - \gamma_I U_{I1}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} \right) - jk_2 C_{12}^I \left(U_{I2}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} + U_{I2}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} + U_{I2}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} \right) + (\lambda_1 M_I + \gamma_1^e C_e) \left(T_I^{h-} e^{-\Gamma_I d} + T_I^{h+} e^{\Gamma_I d} + T_I^p e^{-\gamma_I d} \right) \quad (\text{A.11})$$

$$Y_4 = \frac{1}{2} C_{66}^{II} \left(jk_2 U_{II1}^{p\Gamma-} - \Gamma_{II} U_{II1}^{p\Gamma-} \right) - \frac{1}{2} C_{66}^I \left[jk_2 \left(U_{I1}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} + U_{I1}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} + U_{I1}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} \right) - \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} + \Gamma_I U_{I1}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} - \gamma_I U_{I1}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} \right] \quad (\text{A.12})$$

$$Y_5 = -U_{I1}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} - U_{I1}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} - U_{I1}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} + U_{II1}^{p\Gamma-} \quad (\text{A.13})$$

$$Y_6 = -U_{I2}^{p\Gamma-} e^{-\Gamma_I d} - U_{I2}^{p\Gamma+} e^{\Gamma_I d} - U_{I2}^{p\gamma} e^{-\gamma_I d} + U_{II2}^{p\Gamma-} \quad (\text{A.14})$$

A.3 Résolution

Le système (A.3) donné par les conditions limites s'écrit ainsi sous forme matricielle de la façon suivante, à partir des conditions homogènes et particulières :

$$[\Lambda^h] \mathbf{X} = \mathbf{Y} \quad (\text{A.15})$$

Il s'agit d'un système 6×6 où le vecteur $\mathbf{Y}$ contient les conditions limites associées aux solutions particulières. Le vecteur $\mathbf{X}$ regroupe les inconnues en amplitude A_n^- , A_n^+ et B_n^- du champ acoustique dans le film et dans le substrat. Cependant, la détermination du déplacement dans le substrat n'est pas nécessaire et, en manipulant la matrice du système, il est possible de se ramener à un unique système 4×4 . Finalement, ce dernier est inversé pour aboutir à la solution.

Annexe B

Propriétés des matériaux utilisés

Les propriétés des matériaux utilisés sont rassemblées dans deux tableaux distincts, un pour chaque partie, car les conventions de notations n'y sont pas les mêmes.

TAB. B.1 – Propriétés des matériaux utilisés dans la première partie à $\lambda=796$ nm. Les propriétés optiques, thermiques et élastiques proviennent de la référence [148]. Les propriétés électroniques du tungstène et de l'or proviennent respectivement des références [45] et [149]. Les constantes élasto-optiques $\partial n/\partial \eta$ et thermo-optiques $\partial n/\partial T^e$ et $\partial n/\partial T^l$, la résistance thermique R_{th} , ainsi que le coefficient d'atténuation ξ , sont identifiés en ajustant le modèle théorique sur les données expérimentales. Les constantes élastiques de l'or sont ajustées à partir de celles données par M. Perton [28]. Le symbole † représente les valeurs non utilisées.

	Unités	Tungstène	Or	Silicium
ρ	g/cm ³	19.3	19.3	2.33
n	–	3.58+2.73 <i>j</i>	†	†
C_{11}^*	GPa	522	227	156
C_{12}^*	GPa	†	170	35
C_{22}^*	GPa	†	210	194
C_{23}^*	GPa	†	152	64
C_{66}^*	GPa	†	30	51
ξ	ps	1	0.5	0.1
$\partial n/\partial \eta$	–	6.5+1.5 <i>j</i>	†	†
$\partial n/\partial T^l \times 10^{-4}$	–	8.8+6.7 <i>j</i>	†	†
$\partial n/\partial T^e \times 10^{-4}$	–	0.4+0.3 <i>j</i>	†	†
$\kappa_{kl}\delta_{kl}$	W m ⁻¹ K ⁻¹	170	317	115
$g \times 10^{16}$	W m ⁻³ K ⁻¹	10	2	†
$C_l \times 10^6$	J m ⁻³ K ⁻¹	2.55	2.49	1.8
$C_e \times 10^4$	J m ⁻³ K ⁻¹	10	2	†
$R_{th} \times 10^{-8}$	K m ² W ⁻¹	1	†	†

avec ξ et C_{kl}^* tels que $C_{kl} = (1 + j\omega\xi)C_{kl}^*$. A $\lambda = 398$ nm, $n=0.49+4.87j$ pour l'aluminium, et

TAB. B.2 – Propriétés des matériaux utilisés dans la seconde partie à $\lambda=796$ nm. Les propriétés optiques, thermiques et élastiques proviennent de la référence [148]. Les composantes du tenseur de Pockels p_{ij} sont identifiées en ajustant le modèle théorique sur les données expérimentales.

	Unités	Aluminium
ρ	g/cm ³	2.7
n	–	2.69+8.45j
C_{11}^*	GPa	111.3
C_{12}^*	GPa	59.1
C_{66}^*	GPa	$(C_{11}^* - C_{12}^*)/2$
ξ	ps	20
p_{11}	–	-10+5j
p_{12}	–	-10-j
p_{66}	–	$(p_{11} - p_{12})/2$
$\kappa_{jl}\delta_{jl}$	W m ⁻¹ K ⁻¹	237
$C_l \times 10^6$	J m ⁻³ K ⁻¹	2.42

$n=1.54+1.81j$ pour l'or.

Annexe C

Recherche d'un spectre hermitien

L'indice optique n non perturbé du milieu est complexe, pour prendre en compte l'absorption optique. L'expression (5.11) indique donc que le changement de réflectivité r_3^s est également complexe. Par conséquent, le spectre de Fourier $\tilde{r}_3^s$ en ω , qui est exprimé analytiquement par l'équation (5.11), n'est pas hermitien [128]. Cela implique que la partie du spectre qui correspond aux fréquences négatives ne peut pas se déduire de celle correspondant aux fréquences positives. Il sera donc nécessaire numériquement de calculer entièrement le spectre en ω , ce qui double le temps de calcul. Pour pallier à ce problème, il faut alors séparer les parties réelle et imaginaire du changement de réflectivité r_3^s , dont les transformées de Fourier respectives fourniront des spectres hermitiens.

L'équation (5.11) est donc développée analytiquement en faisant apparaître les parties réelle et imaginaire de l'indice optique $n = n' + jn''$ et en utilisant (2.1) :

$$\frac{r_3^s(t)}{r^h} = q_0 \frac{-4n'n'' + 2j(1 - n'^2 + n''^2)}{(1 + n'^2 + n''^2) - 4n'^2} \left[\left(n' \frac{\partial n'}{\partial A} - n'' \frac{\partial n''}{\partial A} \right) + j \left(n' \frac{\partial n''}{\partial A} + n'' \frac{\partial n'}{\partial A} \right) \right] \times \int_0^d A(x_1, t) e^{2jq_0 n' x_1} e^{-2q_0 n'' x_1} dx_1 \quad (C.1)$$

où $A(x_1, t)$ représente la température ou la déformation. Les parties réelle et imaginaire sont séparées pour donner :

$$\begin{aligned} \mathcal{Re} \left(\frac{r_3^s}{r^h} \right) &= \frac{2[-2n'n''I(t) + (n'^2 - n''^2 - 1)J(t)]}{(1 + n'^2 + n''^2) - 4n'^2} \left(n' \frac{\partial n'}{\partial A} - n'' \frac{\partial n''}{\partial A} \right) \\ &+ \frac{2[(n'^2 - n''^2 - 1)I(t) + 2n'n''J(t)]}{(1 + n'^2 + n''^2) - 4n'^2} \left(n' \frac{\partial n''}{\partial A} + n'' \frac{\partial n'}{\partial A} \right) \quad (C.2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathcal{Im} \left(\frac{r_3^s}{r^h} \right) &= \frac{2[-(n'^2 - n''^2 - 1)I(t) - 2n'n''J(t)]}{(1 + n'^2 + n''^2) - 4n'^2} \left(n' \frac{\partial n'}{\partial A} - n'' \frac{\partial n''}{\partial A} \right) \\ &+ \frac{2[-2n'n''I(t) + (n'^2 - n''^2 - 1)J(t)]}{(1 + n'^2 + n''^2) - 4n'^2} \left(n' \frac{\partial n''}{\partial A} + n'' \frac{\partial n'}{\partial A} \right) \quad (C.3) \end{aligned}$$

en définissant les intégrales suivantes [127] :

$$\begin{aligned} I(t) &= q_0 \int_0^d A(x_1, t) \cos(2q_0 n' x_1) e^{-2q_0 n'' x_1} dx_1 \\ J(t) &= q_0 \int_0^d A(x_1, t) \sin(2q_0 n' x_1) e^{-2q_0 n'' x_1} dx_1 \end{aligned} \tag{C.4}$$

Puisque $A(x_1, t)$, qui représente indifféremment la température ou la déformation, est réel, les spectres de $\mathcal{Re}(r_3^s/r^h)$ et de $\mathcal{Im}(r_3^s/r^h)$ sont hermitiens. Leur parties correspondant aux fréquences négatives sont donc le conjugué de celles correspondant aux fréquences positives.

Le problème est alors que, contrairement à l'intégrale de l'équation (5.11), les intégrales I et J ne peuvent pas être calculées analytiquement. Pour calculer les spectres hermitiens de $\mathcal{Re}(r_3^s/r^h)$ et de $\mathcal{Im}(r_3^s/r^h)$, il faut donc évaluer numériquement I et J pour chaque fréquence ω . Cette opération augmente le temps de calcul, et nécessite un test de convergence. Par conséquent, seule l'équation (5.11) sera utilisée numériquement, en calculant entièrement son spectre en ω . L'analyse ici présentée permet d'identifier les développements analytiques à effectuer de façon à optimiser le temps de calcul numérique. Cela revêtira une importance particulière pour les configurations bidimensionnelles.

Annexe D

Méthodes alternatives pour le calcul du changement de réflectivité induit par une unique onde plane acoustique

Dans le domaine des ultrasons laser, l'interaction d'une onde acoustique plane, longitudinale ou transverse, se propageant normalement aux interfaces, avec une onde optique plane en incidence oblique a été traité récemment [121]. Il s'agit d'une configuration unidimensionnelle d'un point de vue acoustique, et qui ne prend pas en compte l'aspect gaussien du faisceau optique. Ce problème a été résolu dans la littérature de deux façons différentes.

Le terme inhomogène du système différentiel peut être considéré comme une source [121], et la fonction de Green correspondante est alors recherchée [130]. Une autre approche consiste à résoudre l'équation de propagation optique par la méthode de la variation de la constante [21, 131]. Dans ces deux méthodes, la solution est ensuite approchée au premier ordre. Elles n'ont été appliquées qu'au cas d'une seule onde plane acoustique. Leur principe va être rappelé dans cette annexe.

D.1 Méthode basée sur la fonction de Green développée par O. Matsuda *et al.*

La propagation de l'onde plane acoustique modifie l'indice optique du matériau considéré. Dès lors, il est nécessaire de décrire la propagation du champ électrique $\mathbf{E}$ dans un milieu à propriétés variables, à l'aide de l'équation de Maxwell (4.2).

Comme la fréquence de la perturbation acoustique est beaucoup plus faible que celle de la lumière, il s'agit d'un problème quasi-statique et la dérivée temporelle du tenseur diélectrique $^{(2)}\bar{\epsilon}$ est négligée. En recherchant des solutions harmoniques de pulsation ω , l'équation de propagation optique (4.2) devient alors :

$$\Delta \mathbf{E} - \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) + q_0^2 \mu^{(2)} \bar{\epsilon} \mathbf{E} = 0 \quad (\text{D.1})$$

avec $q_0 = \omega/c_0$ le nombre d'onde optique dans le vide et μ la permittivité magnétique.

Le cas où une seule onde plane acoustique longitudinale, se propageant normalement à la surface libre, est envisagé. Par conséquent, le tenseur de permittivité diélectrique se simplifie à partir de l'équation (4.22) :

$$[\varepsilon(x_1, t)] = \varepsilon^h[I] + \begin{bmatrix} p_{11} & 0 & 0 \\ 0 & p_{12} & 0 \\ 0 & 0 & p_{12} \end{bmatrix} \eta_1(x_1, t) = \varepsilon^h[I] + [\varepsilon^s] \quad (\text{D.2})$$

où ε^h est la permittivité initiale, $[\varepsilon^s]$ la perturbation due à l'onde acoustique plane longitudinale, et $[I]$ la matrice identité. Les propriétés optiques ne sont donc perturbées que dans la direction $\mathbf{x}_1$. Cette hypothèse autorise à chercher le champ électrique $\mathbf{E}$ solution de l'équation de Maxwell (4.2) sous forme d'ondes planes hétérogènes :

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{E}(x_1, t)e^{jk_2x_2} \quad (\text{D.3})$$

où k_2 est la projection du vecteur d'onde sur la surface. Cela n'est pas possible en présence d'un champ acoustique diffracté. Alors l'équation (D.1) devient s'écrit :

$$\left[L(k_2) + q_0^2 \varepsilon^h \right] \mathbf{E}(x_1, t) = -q_0^2 [\varepsilon^s] \mathbf{E}(x_1, t) \quad (\text{D.4})$$

avec :

$$L(k_2) = \begin{bmatrix} \frac{\partial^2}{\partial x_1^2} & 0 & -jk_2 \frac{\partial}{\partial x_1} \\ 0 & \frac{\partial^2}{\partial x_1^2} - k_2^2 & 0 \\ -jk_2 \frac{\partial}{\partial x_1} & 0 & -k_2^2 \end{bmatrix} \quad (\text{D.5})$$

La solution de l'équation (D.4) est ensuite recherchée comme la somme des solutions homogène $\mathbf{E}^h$ et particulière $\mathbf{E}^s$.

La solution homogène $\mathbf{E}^h$ de l'équation (D.4) sans source décrit la propagation dans le milieu non perturbé. La solution particulière est exprimée à partir de la fonction de Green matricielle $[G]$:

$$\mathbf{E}^s(x_1, t) = q_0^2 \{ [\varepsilon^s(x'_1, t)] \mathbf{E}(x'_1, t) \} * [G(x_1, x'_1)] \quad (\text{D.6})$$

où l'opérateur $*$ désigne la convolution suivant x'_1 . La matrice $[G]$ satisfait l'équation suivante :

$$\left[L(k_2) + q_0^2 \varepsilon^h \right] [G(x_1, x'_1)] = -[I] \delta(x_1 - x'_1) \quad (\text{D.7})$$

En développant l'équation (D.6), la solution totale $\mathbf{E} = \mathbf{E}^h + \mathbf{E}^s$ s'exprime alors de la manière suivante :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^h + \int_{-\infty}^{+\infty} q_0^2 [G(x_1, x'_1)] [\varepsilon^s(x'_1, t)] \mathbf{E}(x'_1, t) dx'_1 \quad (\text{D.8})$$

$$= \mathbf{E}^h + \int_{-\infty}^{+\infty} q_0^2 [G(x_1, x'_1)] [\varepsilon^s(x'_1, t)] \left\{ \mathbf{E}^h(x'_1, t) + \mathbf{E}^s(x'_1, t) \right\} dx'_1 \quad (\text{D.9})$$

Alors, en négligeant les termes d'ordre deux $[\varepsilon^s]\mathbf{E}^s$, la solution approchée de l'équation (4.2) est finalement obtenue :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^h + \int_{-\infty}^{+\infty} q_0^2[G(x_1, x'_1)][\varepsilon^s(x'_1, t)]\mathbf{E}^h(x'_1, t)dx'_1 \quad (\text{D.10})$$

Ainsi, la linéarisation n'est pas nécessaire au niveau de l'équation de propagation (4.2) car le champ acoustique ne dépend que de x_1 . En revanche, elle est indispensable pour pouvoir évaluer analytiquement le changement de réflectivité à partir de l'équation (D.8).

Dans le cas ici traité, la fonction de Green matricielle $[G]$ est donnée par A. A. Maradudin [130]. Lorsque les ondes transverses sont présentes, il faut la recalculer. Dès lors, pour considérer l'influence d'un acoustique diffracté, ou encore pour prendre en compte la forme spatiale du faisceau sonde, la détermination de $[G]$ peut s'avérer difficile.

D.2 Méthode basée sur la théorie des approximations successives développée par T. Pézeril *et al.*

Cette fois-ci, la propagation d'une unique onde plane est considérée dans un matériau anisotrope. Puisqu'elle ne se propage pas dans les axes principaux, elle génère les déformations $\eta_1(x_1, t)$ et $\eta_6(x_1, t)$ uniquement. Cela conduit à un tenseur diélectrique de la forme suivante, écrit dans les axes cristallins :

$$[\varepsilon(x_1, t)] = \varepsilon^h[I] + \begin{bmatrix} \varepsilon_1^s & \varepsilon_6^s & 0 \\ \varepsilon_6^s & \varepsilon_2^s & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3^s \end{bmatrix} = \varepsilon^h[I] + [\varepsilon^s] \quad (\text{D.11})$$

La variation spatiale des propriétés optiques ne dépend que de x_1 car elle résulte de la propagation d'une onde plane acoustique homogène. En injectant ce tenseur dans les équations de Maxwell (4.2) décrivant la propagation du champ électrique, trois équations différentielles d'ordre deux à coefficients non constants sont obtenues.

La dépendance en temps des coefficients est négligée en supposant que la fréquence de la perturbation acoustique est beaucoup plus faible que celle de la lumière [121]. La dépendance en espace est supprimée en appliquant la théorie des approximations successives [135] à l'ordre un. Alors, des équations différentielles couplées d'ordre deux à coefficients constants sont obtenues. Le formalisme matriciel n'est pas utilisé, et les solutions de chaque équation sont recherchées comme la somme d'une solution homogène et d'une solution particulière.

La forme de la solution homogène est exprimée classiquement en décomposant son expression sur une base de fonctions exponentielles. La solution particulière est définie en appliquant la méthode de la variation de la constante. Puisque les équations différentielles sont d'ordre deux, cette technique implique une double intégration. Celle-ci est effectuée dans le repère lié au plan de phase acoustique. Cela n'est possible que pour une onde plane acoustique homogène. Enfin, l'amplitude la solution homogène est déterminée en appliquant les conditions limites optiques.

Annexe E

Détails du calcul du changement de réflectivité à l'aide du matricant

E.1 Coefficients de la matrice d'expansion

Le matricant associé à la solution diffractée $\tilde{\mathbf{f}}_p^s$ est défini dans l'équation (6.14) en fonction d'exponentielles. Il est maintenant exprimé à l'aide de sinus et cosinus pour simplifier les écritures :

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x_1, x_0, k_2)] = \begin{bmatrix} \frac{e^{jq_1^s x_1} + e^{-jq_1^s x_1}}{2} & \frac{e^{jq_1^s x_1} - e^{-jq_1^s x_1}}{2\beta_p^s} \\ \beta_p^s \frac{e^{jq_1^s x_1} - e^{-jq_1^s x_1}}{2} & \frac{e^{jq_1^s x_1} + e^{-jq_1^s x_1}}{2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} cs & \frac{j}{\beta_p^s} ss \\ j\beta_p^s ss & cs \end{bmatrix} \quad (\text{E.1})$$

avec $cs(x_1) = \cos q_1^s x_1$ et $ss(x_1) = \sin q_1^s x_1$. Le déterminant de $[\tilde{\mathcal{M}}_p^s]$ est égal à 1, donc la matrice est inversible et son inverse s'écrit simplement comme la transposée de la matrice des cofacteurs :

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x_1, x_0, k_2)]^{-1} = \begin{bmatrix} cs & -\frac{j}{\beta_p^s} ss \\ -j\beta_p^s ss & cs \end{bmatrix} \quad (\text{E.2})$$

De même, le matricant associé à la solution homogène $\tilde{\mathbf{f}}_p^h$ s'écrit :

$$[\tilde{\mathcal{M}}_p^h(x_1, x_0)] = \begin{bmatrix} ch & \frac{j}{\beta_p^h} sh \\ j\beta_p^h sh & ch \end{bmatrix} \quad (\text{E.3})$$

avec $ch(x_1) = \cos q_1^h x_1$ et $sh(x_1) = \sin q_1^h x_1$, dans le cadre de l'approximation paraxiale qui a conduit à l'équation (6.29). La matrice d'expansion $[\tilde{m}(x_1, k_2)]$, caractérisant la propagation du terme source de l'équation (6.10), s'exprime ensuite en utilisant l'équation (6.32) :

$$[\tilde{m}(x_1, k_2)] = \int_{x_0}^{x_1} [\tilde{\mathcal{M}}_p^s(x'_1, x_0, k_2)]^{-1} [I_p^k(k_2)] \{ [\tilde{a}_p(x'_1, k_2)] \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2) \} [\mathcal{M}_p^h(x'_1, x_0)] dx'_1 \quad (\text{E.4})$$

avec :

$$[\tilde{a}_3(x_1, k_2)] = jq_0 \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ \tilde{a}_{21} & 0 \end{bmatrix}, \quad [\tilde{a}_2(x_1, k_2)] = jq_0 \begin{bmatrix} \tilde{a}_{33} & 0 \\ \tilde{a}_{43} & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{E.5})$$

Les matrices $[\tilde{a}_p(x'_1, k_2)]$ contiennent les spectres des composantes de la déformation acoustique, source de la perturbation optique, définis par l'équation (6.8). Puis, en posant :

$$[\tilde{m}_3(x_1, k_2)] = \begin{bmatrix} \tilde{m}_{11} & \tilde{m}_{12} \\ \tilde{m}_{21} & \tilde{m}_{22} \end{bmatrix}, \quad [\tilde{m}_2(x_1, k_2)] = \begin{bmatrix} \tilde{m}_{33} & \tilde{m}_{34} \\ \tilde{m}_{43} & \tilde{m}_{44} \end{bmatrix} \quad (\text{E.6})$$

le développement du produit matriciel de l'équation (E.4) conduit à la détermination des coefficients suivants :

$$\begin{aligned} \tilde{m}_{11} &= \frac{q_0}{\beta_3^s} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{21}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ss(x'_1) ch(x_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{12} &= j \frac{q_0}{\beta_3^h \beta_3^s} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{21}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) ss(x'_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{21} &= j q_0 \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{21}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ch(x'_1) cs(x'_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{22} &= - \frac{q_0}{\beta_3^h} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{21}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) cs(x_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{33} &= \frac{q_0}{\beta_2^s} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{43}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ss(x'_1) ch(x_1) dx'_1 \\ &\quad + j q_0 \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{33}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ch(x'_1) cs(x'_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{34} &= j \frac{q_0}{\beta_2^h \beta_2^s} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{43}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) ss(x'_1) dx'_1 \\ &\quad - \frac{q_0}{\beta_2^h} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{33}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) cs(x_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{43} &= j q_0 \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{43}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ch(x'_1) cs(x'_1) dx'_1 \\ &\quad + q_0 \beta_2^s \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{33}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} ch(x'_1) ss(x'_1) dx'_1 \\ \tilde{m}_{44} &= j \frac{q_0 \beta_2^s}{\beta_2^h} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{33}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) ss(x'_1) dx'_1 \\ &\quad - \frac{q_0}{\beta_2^h} \int_0^{x_1} \{ \tilde{a}_{43}(x'_1, k_2) \tilde{g}_r(k_2) \} sh(x'_1) cs(x_1) dx'_1 \end{aligned}$$

E.2 Calcul du changement de réflectivité

La condition limite optique à l'interface virtuelle en x_1^h fournit les conditions limites (6.35) :

$$\begin{aligned} &\left(\tilde{m}_{7-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) \tilde{E}_p^h(x_0) \\ &+ \left(\tilde{m}_{7-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) \tilde{H}_{5-p}^h(x_0) = -\tilde{E}_p^s(x_0, k_2) + \frac{1}{\beta_p^s} \tilde{H}_{5-p}^s(x_0, k_2) \end{aligned} \quad (\text{E.7})$$

où les champs $\tilde{E}_p^h$, $\tilde{H}_{5-p}^h$, $\tilde{E}_p^s$ et $\tilde{H}_{5-p}^s$ sont définis par les équations (6.34), issues de la continuité des champs électrique et magnétique à la surface libre :

$$\begin{aligned}\tilde{E}_p^h(x_0, k_2) &= (1 + r_p^h) \tilde{g}_r E_p^{inc} \\ \tilde{H}_{5-p}^h(x_0, k_2) &= v \beta_p^h (1 - r_p^h) \tilde{g}_r E_p^{inc} \\ \tilde{E}_p^s(x_0, k_2) &= \tilde{r}_p^s E_p^{inc} \\ \tilde{H}_{5-p}^s(x_0, k_2) &= -v \beta_p^s \tilde{r}_p^s E_p^{inc}\end{aligned}\tag{E.8}$$

En injectant les équations ci-dessus dans l'équation (E.7), la forme suivante est obtenue :

$$\begin{aligned}& \left[\left(\tilde{m}_{7-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) (1 + r_p^h) \right. \\ & \quad \left. + \left(\tilde{m}_{7-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \right) v \beta_p^h (1 - r_p^h) \right] \tilde{g}_r = -\tilde{r}_p^s - \frac{v \beta_p^s}{\beta_p^s} \tilde{r}_p^s\end{aligned}\tag{E.9}$$

L'équation précédente est maintenant écrite de la façon suivante :

$$\begin{aligned}& \left[a_p (1 + r_p^h) + b_p \frac{v \beta_p^h}{\beta_p^s} (1 - r_p^h) \right] \tilde{g}_r = - \left(1 + \frac{v \beta_p^s}{\beta_p^s} \right) \tilde{r}_p^s \\ & \left[a_p \beta_p^s + b_p v \beta_p^h + \left(a_p \beta_p^s - b_p v \beta_p^h \right) r_p^h \right] \tilde{g}_r = - (\beta_p^s + v \beta_p^s) \tilde{r}_p^s\end{aligned}\tag{E.10}$$

en posant :

$$\begin{aligned}a_p &= \tilde{m}_{7-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2) - \frac{\tilde{m}_{8-2p, 7-2p}(x_1^h, k_2)}{\beta_p^s} \\ b_p &= \beta_p^s \tilde{m}_{7-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2) - \tilde{m}_{8-2p, 8-2p}(x_1^h, k_2)\end{aligned}\tag{E.11}$$

En remplaçant r^h par sa valeur :

$$r^h = \frac{v \beta_p^h - \beta_p^h}{v \beta_p^h + \beta_p^h}\tag{E.12}$$

l'équation (E.10) devient :

$$\begin{aligned}& \frac{2^v \beta_p^h}{v \beta_p^h + \beta_p^h} \left(a_p \beta_p^s + b_p \beta_p^h \right) \tilde{g}_r = - (\beta_p^s + v \beta_p^s) \tilde{r}_p^s \\ & \frac{2^v \beta_p^h}{v \beta_p^h + \beta_p^h} \frac{2 \beta_p^s}{\beta_p^s + v \beta_p^s} \frac{1}{2 \beta_p^s} \left(a_p \beta_p^s + b_p \beta_p^h \right) \tilde{g}_r = -\tilde{r}_p^s \\ & - \frac{t_{01} t_{10}}{2 \beta_p^s} \left(a_p \beta_p^s + b_p \beta_p^h \right) \tilde{g}_r = \tilde{r}_p^s\end{aligned}\tag{E.13}$$

où apparaissent les coefficients de transmission t_{01} et t_{10} du vide vers le milieu en incidence normale, et du milieu vers le vide avec un composante k_2 :

$$t_{01} = \frac{2^v \beta_p^h}{v \beta_p^h + \beta_p^h} \quad , \quad t_{10} = \frac{2 \beta_p^s}{\beta_p^s + v \beta_p^s}\tag{E.14}$$

A partir des équations (E.11) et des coefficients de la matrice d'expansion, les quantités suivantes sont explicitées :

$$\begin{aligned} a_2\beta_2^s + b_2\beta_2^h &= \beta_2^s \tilde{m}_{33} - \tilde{m}_{43} + \beta_2^h \beta_2^s \tilde{m}_{34} - \beta_2^h \tilde{m}_{44} \\ &= -jq_0 \int_0^{x_1} [\{\tilde{a}_{43} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} - \beta_2^s \{\tilde{a}_{33} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\}] e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (\text{E.15})$$

$$\begin{aligned} a_3\beta_3^s + b_3\beta_3^h &= \beta_3^s \tilde{m}_{11} - \tilde{m}_{21} + \beta_3^h \beta_3^s \tilde{m}_{12} - \beta_3^h \tilde{m}_{22} \\ &= -jq_0 \int_0^{x_1} \{\tilde{a}_{21} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (\text{E.16})$$

En remplaçant ces expressions dans l'équation (E.13) :

$$\begin{aligned} \tilde{r}_2^s &= jt_{01} \frac{q_0}{2\beta_2^s} t_{10} \tilde{g}_r \int_0^{x_1} (\{\tilde{a}_{43} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} - \beta_2^s \{\tilde{a}_{33} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\}) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \\ \tilde{r}_3^s &= jt_{01} \frac{q_0}{2\beta_3^s} t_{10} \tilde{g}_r \int_0^{x_1} \{\tilde{a}_{21} \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (\text{E.17})$$

Avec $\tilde{a}_{21} = \tilde{\varepsilon}_3^s$, $\tilde{a}_{33} = -k_2 \tilde{\varepsilon}_3^s / q_0 \varepsilon^h$ et $\tilde{a}_{43} = -\tilde{\varepsilon}_2^s$, les formules du changement de réflectivité trouvées dans la seconde partie sont obtenues :

$$\begin{aligned} \tilde{r}_3^s(k_2) &= jq_0 \frac{t_3^h t_3^s}{2\beta_3^s} \tilde{g}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \{\tilde{\varepsilon}_3^s(x'_1, k_2) \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \\ \tilde{r}_2^s(k_2) &= -jq_0 \frac{t_2^h t_2^s}{2\beta_2^s} \tilde{g}_r(k_2) \int_0^{x_1^h} \left(\{\tilde{\varepsilon}_2^s(x'_1, k_2) \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} - \frac{k_2}{q_1^s} \{\tilde{\varepsilon}_6^s(x'_1, k_2) \tilde{*} \tilde{g}_r(k_2)\} \right) e^{j(q_1^h + q_1^s)x'_1} dx'_1 \end{aligned} \quad (\text{E.18})$$

Bibliographie

- [1] F. GALTON : Hydrogen whistles. *Nature*, 27:491–492, 1883.
- [2] F. A. FIRESTONE : The supersonic reflectoscope, an instrument for inspecting the interior of solid parts by means of sound waves. *J. Acoust. Soc. Am.*, 17(3):287–299, 1946.
- [3] T. H. MAIMAN : Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187:493–494, 1960.
- [4] R. M. WHITE : Generation of elastic waves by transient surface heating. *J. Appl. Phys.*, 34(12):3559–3567, 1963.
- [5] R. E. LEE et R. M. WHITE : Excitation of surface elastic waves by transient surface heating. *Appl. Phys. Lett.*, 12(1):12–14, 1968.
- [6] L. M. LYAMSHEV et B. I. CHELNOKOV : Sound generation in a solid by penetrating radiation. *Sov. Phys. Acoust.*, 29(3):220–225, 1983.
- [7] C. V. SHANK et E. P. IPPEN : Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked CW dye laser. *Appl. Phys. Lett.*, 24(8):373–375, 1974.
- [8] C. THOMSEN, J. STRAIT, Z. VARDENY, H. J. MARIS, J. TAUC et J. J. HAUSER : Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 53(10):989, 1984.
- [9] R. HOOKE : Of a new property in the air. *Micrographia*, 1665.
- [10] A. L. FOLEY et W. H. SOUDER : A new method of photographing sound waves. *Phys. Rev.*, 35(5):373–386, 1912.
- [11] D. H. AUSTON et C. V. SHANK : Picosecond ellipsometry of transient electron-hole plasma in germanium. *Phys. Rev. Lett.*, 32(20):1120–1123, 1974.
- [12] F. POCKELS : Ueber den einfluss elastischer deformationen, speciell einseitigen druckes, auf das optische verhalten krystallinischer körper. *Ann. Physik*, 273(5):144–172, 1889.
- [13] L. BRILLOUIN : Diffusion de la lumière et des rayons X par un corps transparent homogène, influence de l'agitation thermique. *Ann. Phys.*, 17:88–122, 1922.
- [14] D. M. PROFUNSER, O. B. WRIGHT et O. MATSUDA : Imaging ripples on phononic crystals reveals acoustic band structure and bloch harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 97:055502, 2006.
- [15] E. PÉRONNE et B. PERRIN : Generation and detection of acoustic solitons in crystalline slabs by laser ultrasonics. *Ultrasonics*, 44:e1203–e1207, 2006.
- [16] S. BERCIAUD, L. COGNET, G. A. BLAB et B. LOUNIS : Photothermal heterodyne imaging of individual nonfluorescent nanoclusters and nanocrystals. *Phys. Rev. Lett.*, 93:257402, 2004.

- [17] O. MATSUDA, T. TACHIZAKI, T. FUKUI, J. J. BAUMBERG et O. B. WRIGHT : Acoustic phonon generation and detection in GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum wells with picosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 71(11):115330–13, 2005.
- [18] D. H. HURLEY, O. B. WRIGHT, O. MATSUDA, V. E. GUSEV et O. V. KOLOSOV : Laser picosecond acoustics in isotropic and anisotropic materials. *Ultrasonics*, 38(1-8):470–474, 2000.
- [19] T. BIENVILLE et B. PERRIN : Generation and detection of quasi transverse waves in a anisotropic crystal by picosecond ultrasonics. *In Proceedings of the WCU*, pages 813–816, Paris, 2003.
- [20] O. MATSUDA et O. B. WRIGHT : Laser picosecond acoustics in a two-layer structure with oblique probe light incidence. *Ultrasonics*, 42(1-9):653–656, 2004.
- [21] T. PÉZERIL : *Génération et détection d’ondes acoustiques transverses picosecondes : théories et expériences*. Thèse de doctorat, Université du Maine, 2005.
- [22] T. PÉZERIL, N. CHIGAREV, P. RUELLO, S. GOUGEON, D. MOUNIER, J.-M. BRETEAU, P. PICART et V. E. GUSEV : Laser acoustics with picosecond collimated shear strain beams in single crystals and polycrystalline materials. *Phys. Rev. B*, 73(13):132301, 2006.
- [23] Y. SUGAWARA, O. B. WRIGHT, O. MATSUDA et V. E. GUSEV : Spatiotemporal mapping of surface acoustic waves in isotropic and anisotropic materials. *Ultrasonics*, 40(1-8):55–59, 2002.
- [24] Y. SUGAWARA, O. B. WRIGHT, O. MATSUDA, M. TAKIGAHIRA, Y. TANAKA, S. TAMURA et V. E. GUSEV : Watching ripples on crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 88(18):185504, 2002.
- [25] N. C. R. HOLME, B. C. DALY, M. T. MYAING et T. B. NORRIS : Gouy phase shift of single-cycle picosecond acoustic pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 83(2):392–394, 2003.
- [26] B. C. DALY, T. B. NORRIS, J. CHEN et J. B. KHURGIN : Picosecond acoustic phonon pulse propagation in silicon. *Phys. Rev. B*, 70(21):214307, 2004.
- [27] C. ROSSIGNOL, J. M. RAMPNOUX, M. PERTON, B. AUDOIN et S. DILHAIRE : Generation and detection of shear acoustic waves in metal submicrometric films with ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94(16):166106–4, 2005.
- [28] M. PERTON : *Ultrasons rayonnés par une source laser ponctuelle dans des milieux isotropes transverses et application à la mesure du tenseur d’élasticité de cylindres et de couches minces*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, n°3294, 2006.
- [29] B. AUDOIN : Ultrasons générés par laser. Application à l’évaluation non destructive de matériaux composites. Habilitation à Diriger des Recherches, Université Bordeaux 1, n°135, 1999.
- [30] C. ROSSIGNOL : *Etude théorique et numérique d’expériences d’acoustique picoseconde*. Thèse de doctorat, Université Pierre & Marie Curie, n°6417, 2000.
- [31] J.-M. RAMPNOUX : *Développement de bancs d’acoustique picoseconde pour la caractérisation sans contact par impulsions laser ultracourtes de couches micrométriques et sub-micrométriques de composants microélectroniques*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, n°2757, 2003.

- [32] H. MÉRI : *Rayonnements d'ultrasons générés par laser dans les matériaux anisotropes*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, n°2842, 2004.
- [33] J. F. READY : Effects due to absorption of laser radiation. *J. Appl. Phys.*, 36(2):462–468, 1965.
- [34] J. F. READY : *Effect of high-power radiation*. Academic Press, New York, 1971.
- [35] R. G. STEARNS et G. S. KINO : Effect of electronic strain on photoacoustic generation in silicon. *Appl. Phys. Lett.*, 47(10):1048–1050, 1985.
- [36] B. AUDOIN, H. MÉRI et C. ROSSIGNOL : Two-dimensional diffraction of plasma, thermal, and elastic waves generated by an infrared laser pulse in semiconductors. *Phys. Rev. B*, 74(21):214304–8, 2006.
- [37] A.G. BELL : Upon the production of sound by radiant energy. *Philiso. Mag.*, 11(5):510–528, 1881.
- [38] J. P. GORDON, H. J. ZEIGER et C. H. TOWNES : The maser – new type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer. *Phys. Rev.*, 99(4):1264–1274, 1955.
- [39] R. Y. CHIAO et C. H. TOWNES : Stimulated Brillouin scattering and coherent generation of intense hypersonic waves. *Phys. Rev. Lett.*, 12(21):592–595, 1964.
- [40] N. M. KROLL : Excitation of hypersonic vibrations by means of photoelastic coupling of high-intensity light waves to elastic waves. *J. Appl. Phys.*, 36(1):34–43, 1965.
- [41] S. S. PENNER et O. P. SHARMA : Interaction of laser radiation with an absorbing semi-infinite solid bar. *J. Appl. Phys.*, 37(6):2304–2308, 1966.
- [42] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS et J. TAUC : Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34(6):4129–4138, 1986.
- [43] S. I. ANISIMOV, B. L. KAPIELOVITCH et T. L. PERELMAN : Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys. JETP*, 39:375–377, 1974.
- [44] P. B. CORKUM, F. BRUNEL, N. K. SHERMAN et T. SRINIVASAN-RAO : Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 61(25):2886–2889, 1988.
- [45] O. B. WRIGHT : Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Phys. Rev. B*, 49(14):9985–9988, 1994.
- [46] A. MIKLÓS, Z. BOZÓKI et A. LÖRINCZ : Picosecond transient reflectance of thin metal films. *J. Appl. Phys.*, 66(7):2968–2972, 1989.
- [47] C. KITTEL : *Solid state physics*. Wiley interscience, New York, 7ème édition, 1995.
- [48] F. REVERDY : *Synthèse de fronts acoustiques plans par déplacement d'une source laser : application à l'évaluation non destructive de matériaux composites*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, n°2280, 2000.
- [49] O.B. WRIGHT et V.E. GUSEV : Ultrafast generation of acoustic waves in copper. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, 42(3):331–338, 1995.
- [50] R. LE HARZIC, N. HUOT, E. AUDOUARD, C. JONIN et P. LAPORTE : Comparison of heat-affected zones due to nanosecond and femtosecond laser pulses using transmission electronic microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 80(21):3886–3888, 2002.

- [51] S. VALETTE, R. LE HARZIC, N. HUOT, E. AUDOUARD et R. FORTUNIER : 2D calculations of the thermal effects due to femtosecond laser-metal interaction. *Appl. Surf. Sci.*, 247:238–242, 2005.
- [52] H. E. ELSAYED-ALI, T. JUHASZ, G. O. SMITH et W. E. BRON : Femtosecond thermorefectivity and thermotransmissivity of polycrystalline and single-crystalline gold films. *Phys. Rev. B*, 43(5):4488–4491, 1991.
- [53] B.A. AULD : *Acoustic fields and waves in solids*, volume 2. R. E. Krieger Publishing Compagny, Malabar, Florida, 1990.
- [54] B.A. AULD : *Acoustic fields and waves in solids*, volume 1. R. E. Krieger Publishing Compagny, Malabar, Florida, 1990.
- [55] P. M. NORRIS, P. A. CAFFREY, A. P., R. J. STEVENS, J. M. KLOPF, J. T. MCLESKEY et A. N. SMITH : Femtosecond pump–probe nondestructive examination of materials (invited). In *Papers from the 12th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena*, volume 74, pages 400–406, Toronto, 2003. Rev. Sci. Instrum.
- [56] G. BRUHAT : *Thermodynamique*. Masson, Paris, 1968.
- [57] R. H. M. GROENEVELD, R. SPRIK et A. LAGENDIJK : Effect of a nonthermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metals. *Phys. Rev. B*, 45(9):5079–5082, 1992.
- [58] G. N. WATSON : *A treatrise on the theory of Bessel fonctions*. Cambridge University Press, 1966.
- [59] R.L. WEAVER, W. SACHSE et K.Y. KIM : Transient elastic waves in a transversely isotropic plate. *J. Appl. Mech.*, 63:338–346, 1996.
- [60] R. M. BRACEWELL : *The Fourier transform and its applications*. McGraw-Hill, New York, 1965.
- [61] L. D. LANDAU et E. M. LIFCHITZ : *Electrodynamics of continuous media*. Mir, Moscow, 1969.
- [62] V. GUSEV et O. B. WRIGHT : Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals. *Phys. Rev. B*, 57(5):2878, 1998.
- [63] B. PERRIN, C. ROSSIGNOL, B. BONELLO et J. C. JEANNET : Interferometric detection in picosecond ultrasonics. *Physica B*, 263-264:571–573, 1999.
- [64] E. B. TREACY : Measurement of picosecond pulse substructure using compression techniques. *Appl. Phys. Lett.*, 14(3):112–114, 1969.
- [65] J. L. HOSTETLER, A. N. SMITH et P. M. NORRIS : Simultaneous measurement of thermophysical and mechanical properties of thin films. *Int. J. Therm.*, 19(2):569, 1998.
- [66] A. N. SMITH, J. L. HOSTETLER et P. M. NORRIS : Nonequilibrium heating in metal films : An analytical and numerical analysis. *Numer. Heat Transfer, Part A*, 35:859–873, 1999.
- [67] C. J. K. RICHARDSON et J. B. SPICER : Short-time thermoelastic contributions to picosecond-time scale reflectivity measurements of metals. *Appl. Phys. Lett.*, 80(16):2895–2897, 2002.

- [68] C. J. K. RICHARDSON et J. B. SPICER : Characterization of heat-treated tungsten thin films using picosecond duration thermoelastic transients. *Opt. Lasers Eng.*, 40(4):379–391, 2003.
- [69] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS et J. TAUC : Picosecond interferometric technique for study of phonons in the Brillouin frequency range. *Opt. Commun.*, 60(1-2):55–58, 1986.
- [70] E. ROMATET : *Réalisation et application d'un dispositif d'acoustique picoseconde*. Thèse de doctorat, Université de Paris VI, 1996.
- [71] R. J. STONER et H. J. MARIS : Kapitza conductance and heat flow between solids at temperatures from 50 to 300 K. *Phys. Rev. B*, 48(22):16373–16387, 1993.
- [72] P. L. KAPITZA : *J. Phys. U.S.S.R.*, 4:177–181, 1941.
- [73] G. L. POLLACK : Kapitza resistance. *Rev. Mod. Phys.*, 41(1):48–81, 1969.
- [74] E. T. SWARTZ et R. O. POHL : Thermal resistance at interfaces. *Appl. Phys. Lett.*, 51(26):2200–2202, 1987.
- [75] A. N. SMITH, J. L. HOSTETLER et P. M. NORRIS : Measurement of thermal boundary resistance between thin metal films and dielectric substrates. In *Proceedings of Eurotherm Seminar on Microscale Heat Transfert*, volume 57, page 277, Poitiers, France, 1998.
- [76] B. PERRIN, B. BONELLO, J.-C. JEANNET et E. ROMATET : Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures. *Prog. Natural Sci.*, 6:444–448, 1996.
- [77] A. E. SIEGMAN : *Lasers*. University science books, California, 1986.
- [78] C. HIRLIMANN : *Femtosecond laser pulses*, pages 25–52. Springer, Berlin, 1998.
- [79] A. COURJAUD : *Sources lasers femtosecondes pompées par diode basées sur l'ion Ytterbium*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, n°2392, 2001.
- [80] J. A. GIORDMAINE, P. M. RENTZEPIS, S. L. SHAPIRO et K. W. WECHT : Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 11(7):216–218, 1967.
- [81] J. A. ARMSTRONG : Measurement of picosecond laser pulse widths. *Appl. Phys. Lett.*, 10(1):16–18, 1967.
- [82] K. SALA, G. A. KENNEY-WALLACE et G. E. HALL : CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses. *IEEE J. Quantum Electron.*, 16:990–996, 1980.
- [83] A. DEVOS et C. LEROUGE : Evidence of laser-wavelength effect in picosecond ultrasonics : possible connection with interband transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 86:2669, 2001.
- [84] E. T. SWARTZ et R. O. POHL : Thermal boundary resistance. *Rev. Mod. Phys.*, 61(3):605–668, 1989.
- [85] G. TAS et H. J. MARIS : Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 49(21):15046, 1994.
- [86] J. VOLLMANN, D. M. PROFUNSER, A. H. MEIER, M. DÖBELI et J. DUAL : Pulse laser acoustics for the characterization of inhomogeneities at interfaces of microstructures. *Ultrasonics*, 42:657–663, 2004.

- [87] T. DEHOUX, M. PERTON, N. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL, J.-M. RAMPNOUX et B. AUDOIN : Effect of laser pulse duration in picosecond ultrasonics. *J. Appl. Phys.*, 100(6):064318, 2006.
- [88] O. B. WRIGHT, B. PERRIN, O. MATSUDA et V. E. GUSEV : Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond acoustic pulses. *Phys. Rev. B.*, 64(8):081202–081204, 2001.
- [89] R. CÔTE : *Oscillations Brillouin en acoustique picoseconde colorée*. Thèse de doctorat, Université de Lille 1, n°0127, 2005.
- [90] J. VILLE : Théorie et application de la notion de signal analytique. *Câbles et Transmissions*, 2:61–74, 1948.
- [91] V. E. GUSEV et A. A. KARABUTOV : *Laser optoacoustics*. American Institute of Physics, New York, 1993.
- [92] V. SCHMIDT, W. HUSINSKY et G. BETZ : Ultrashort laser ablation of metals : pump–probe experiments, the role of ballistic electrons and the two-temperature model. *Appl. Surf. Sci.*, 197–198:145–155, 2002.
- [93] L. JIANG et H.-L. TSAI : Improved two-temperature model and its application in ultrashort laser heating of metal films. *J. Heat Transfer*, 127:1167, 2005.
- [94] O. B. WRIGHT et V. E. GUSEV : Acoustic generation in crystalline silicon with femtosecond optical pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 66(10):1190–1192, 1995.
- [95] X. ZHU : A new method for determining critical pulse width in laser material processing. *Appl. Surf. Sci.*, 167(3–4):230–242, 2000.
- [96] H. W. LORD et Y. A. SCHULMAN : A generalized dynamical theory of thermoelasticity. *J. Mech. Phys. Solids*, 15(5):299–309, 1967.
- [97] P. GUILLEMET et J.-P. BARDON : Conduction de la chaleur aux temps courts : les limites spatio-temporelles des modèles parabolique et hyperbolique. *Int. J. Therm. Sci.*, 39:968–982, 2000.
- [98] N. V. CHIGAREV, D. Yu. PARASHCHUK, X. Y. PAN et V. E. GUSEV : Coherent phonon emission in the supersonic expansion of photoexcited electron-hole plasma in Ge. *Phys. Rev. B*, 61(23):15837–15840, 2000.
- [99] I. A. VIKTOROV : *Rayleigh and Lamb waves : physical theory and applications*. Plenum Press, New York, 1967.
- [100] D. ROYER et E. DIEULESAINT : *Ondes élastiques dans les solides*, volume 1. Masson, Paris, 1999.
- [101] N. V. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : Surface displacement measured by beam distortion detection technique : application to picosecond ultrasonics. *Rev. Sci. Instrum.*, 77(11):114901, 2006.
- [102] P. B. ALLEN : Theory of thermal relaxation of electrons in metals. *Phys. Rev. Lett.*, 59(13):1460–1463, 1987.
- [103] A. A. MAZNEV, J. HOHLFELD et J. GUDDE : Surface thermal expansion of metal under femtosecond laser irradiation. *J. Appl. Phys.*, 82(10):5082–5085, 1997.

- [104] H. DALLAPORTA et A. CROS : Influence of low-energy electron irradiation on the adhesion of gold films on a silicon substrate. *Appl. Phys. Lett.*, 48(20):1357–1359, 1986.
- [105] L. BRAICOVICH, C. M. GARNER, P. R. SKEATH, C. Y. SU, P. W. CHYE, I. LINDAU et W. E. SPICER : Photoemission studies of the silicon-gold interface. *Phys. Rev. B*, 20(12):5131–5141, 1979.
- [106] H. HIRORI, T. TACHIZAKI, O. MATSUDA et O. B. WRIGHT : Electron dynamics in chromium probed with 20-fs optical pulses. *Phys. Rev. B*, 68(11):113102–4, 2003.
- [107] M. TOMODA, O. MATSUDA, O. B. WRIGHT et R. LI VOTI : Tomographic reconstruction of picosecond acoustic strain propagation. *Appl. Phys. Lett.*, 90(4):041114, 2007.
- [108] X. LIU, R. STOCK et W. RUDOLF : Ballistic electron transport in Au films. *Phys. Rev. B*, 72(19):195431, 2005.
- [109] A. C. TAM : Pulsed-laser generation of ultrashort acoustic pulses : application for thin-film ultrasonic measurements. *Appl. Phys. Lett.*, 45(5):510–512, 1984.
- [110] H. LE BOITEUX et R. BOUSSARD : *Elasticité et photoélasticimétrie*. Hermann, Paris, 1940.
- [111] P. DEBYE et F. W. SEARS : On the scattering of light by supersonic waves. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 18(6):409–414, 1932.
- [112] R. LUCAS et P. BICQUARD : Propriétés optiques des milieux solides et liquides soumis aux vibrations élastiques ultra sonores. *J. Phys. et le Radium*, 10:464–477, 1932.
- [113] B. PERRIN, B. BONELLO, J. C. JEANNET et E. ROMATET : Picosecond ultrasonics study of metallic multilayers. *Physica B*, 219-220(1-4):681–683, 1996.
- [114] M. C. PEASE : *Methods of matrix algebra*. Academic Press, New York and London, 1965.
- [115] L. D. LANDAU et E. M. LIFCHITZ : *Theory of elasticity*. Mir, Moscow, 1967.
- [116] D. F. NELSON et M. LAX : Theory of the photoelastic interaction. *Phys. Rev. B*, 3(8):2778–2794, 1971.
- [117] R. D. MINDLIN : Influence of rotary inertia and shear in flexural motion of isotropic, elastic plate. *J. Appl. Mech.*, 18:31–38, 1951.
- [118] F. POCKELS : *Lehrbuch der kristallographie*. Teubner, Leipzig and Berlin, 1906.
- [119] M. BORN et E. WOLF : *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 7ème édition, 1999.
- [120] A. KASTLER : *Optique*. G. Bruhat : cours de physique générale. Masson, Paris, 1965.
- [121] O. MATSUDA et O. B. WRIGHT : Laser picosecond acoustics with oblique probe light incidence. In *Papers from the 12th International Conference on Photoacoustic and Photo-thermal Phenomena*, volume 74, pages 895–897, Toronto, Canada, 2003. Rev. Sci. Instrum.
- [122] D. F. NELSON et M. LAX : New symmetry for acousto-optic scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 24(8):379–380, 1970.
- [123] O. KELLER : Theory of Brillouin scattering in anisotropic, piezoelectric semiconductors. *Phys. Rev. B*, 13(10):4612–4625, 1976.

- [124] D. ROYER et E. DIEULESAINT : *Ondes élastiques dans les solides*, volume 2. Masson, Paris, 1999.
- [125] D. F. NELSON et P. D. LAZAY : Measurement of the rotational contribution to Brillouin scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 25(17):1187–1191, 1970.
- [126] O. MATSUDA, O. B. WRIGHT, D. H. HURLEY, V. E. GUSEV et K. SHIMIZU : Coherent shear phonon generation and detection with ultrashort optical pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 93(9):095501–4, 2004.
- [127] A. MIKLÓS et A. LÖRINCZ : Transient thermorefectance of thin metal films in the picosecond regime. *J. Appl. Phys.*, 63(7):2391–2395, 1988.
- [128] W. APPEL : *Mathématiques pour la physique*. H & K, Paris, 2ème édition, 2002.
- [129] C. BARON : *Le développement en série de Peano du matricant pour l'étude de la propagation des ondes élastiques en milieux à propriétés continûment variables*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, n°3036, 2005.
- [130] A. A. MARADUDIN et D. L. MILLS : Scattering and absorption of electromagnetic radiation by a semi-infinite medium in the presence of surface roughness. *Phys. Rev. B*, 11(4):1392–1415, 1975.
- [131] T. PÉZERIL, P. RUELLO, S. GOUGEON, N. V. CHIGAREV, D. MOUNIER, J.-M. BRETEAU, P. PICART et V. E. GUSEV : Generation and detection of plane coherent shear picosecond acoustic pulses by lasers : Experiment and theory. *Phys. Rev. B*, 75(17):174307, 2007.
- [132] W. T. THOMSON : Transmission of elastic waves through a stratified solid medium. *J. Appl. Phys.*, 21:89–93, 1950.
- [133] N. A. HASKELL : The dispersion of surface waves on multilayered media. *Bull. Seism. Soc. Amer.*, 43:17–34, 1953.
- [134] G. PEANO : Intégration par séries des équations différentielles linéaires. *Math. Ann.*, 32:450–456, 1888.
- [135] E. PICARD : Sur la méthode des approximations successives et les équations différentielles linéaires. *Bull. Soc. Math. Fr.*, 22:52–57, 1894.
- [136] T. DEHOUX, N. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : Optical reflectometric detection of a three-dimensional acoustic field. In *Papers from the 14th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena*, volume to be published, Cairo, Egypt, 2007. Eur. J. Phys. Special Topics.
- [137] A. MIKLÓS et A. LÖRINCZ : Determination of thermal transport properties of thin metal films from pulsed thermorefectance measurements in the picosecond regime. *Appl. Phys. B*, 48:261–267, 1989.
- [138] C. BARON, A. L. SHUVALOV et O. PONCELET : Impact of localized inhomogeneity on the surface-wave velocity and bulk-wave reflection in solids. *Ultrasonics*, 46(1):1–12, 2007.
- [139] K. AKI et P. G. RICHARDS : *Quantitative seismology*, volume 1. W. H. Freeman, San Francisco, 1980.
- [140] E. HECHT : *Optics*. Addison Wesley, San Francisco, 4ème édition, 2002.

- [141] H. KOGELNIK et T. LI : Laser beams and resonators. *Appl. Opt.*, 5(10):1550–1567, 1966.
- [142] T. DEHOUX, N. CHIGAREV, C. ROSSIGNOL et B. AUDOIN : Three-dimensional elastooptic interaction for reflectometric detection of diffracted acoustic fields in picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 76(2), 2007.
- [143] L. M. BREKHOVSKIKH : *Waves in Layered Media*. Academic Press, Orlando, Floride, 2ème édition, 1980.
- [144] C. V. RAMAN et K. S. KRISHNAN : A change of wave-length in light scattering. *Nature*, 121:619–620, 1928.
- [145] O. L. ANDERSON : *Physical Acoustics*, volume 3B. Masson, Academic, New York, 1965.
- [146] A. DEVOS et R. CÔTE : Strong oscillations detected by picosecond ultrasonics in silicon : Evidence for an electronic-structure effect. *Phys. Rev. B*, 70(12):125208, 2004.
- [147] O. MATSUDA et C. GLORIEUX : A Green’s function method for surface acoustic waves in functionally graded materials. *J. Acoust. Soc. Am.*, 121(6), 2007.
- [148] D. LIDE : *CRC Handbook of chemistry and physics*. CRC Press, Boca Raton, 1999.
- [149] J. G. FUJIMOTO, J. M. LIU et E. P. IPPEN : Femtosecond laser interaction with metallic tungsten and nonequilibrium electron and lattice temperatures. *Phys. Rev. Lett.*, 53(19): 1837–1840, 1984.

