

Imagerie quantitative opto-acousto-optique 4D des transformations transitoires de matériaux

Encadrements – Vitaliy Gusev, Samuel Raetz et Ronan Fablet (IMT Atlantique, Lab-STICC UMR CNRS 6285, Brest)

Résumé : L'acoustique picoseconde est une technique expérimentale opto-acousto-optique basée sur des lasers ultrarapides, de taux de répétition élevés, appliqués pour la génération et la détection d'impulsions acoustiques cohérentes d'encombrement spatial nanométrique et temporel de l'ordre de quelques picosecondes. Dans des matériaux optiquement transparents, ces impulsions acoustiques peuvent être détectées tout au long de leur trajet de propagation à l'intérieur d'un échantillon. Le signal temporel mesuré contient ainsi, à un instant donné, des informations sur les propriétés du matériau à la position qu'occupait l'impulsion acoustique dans l'épaisseur à l'instant considéré. Cette technique est communément appelée interférométrie acoustique picoseconde (PAI) [1] ou diffusion Brillouin dans le domaine temporel (TDBS) [2]. La mesure continue de la propagation des impulsions nano-acoustiques cohérentes (Fig. 1) fournit une image de l'inhomogénéité de l'échantillon traversée par l'impulsion acoustique avec une résolution axiale nanométrique [3]. La résolution latérale est contrôlée par la focalisation de la lumière. Récemment, suite à nos premiers travaux sur la caractérisation en épaisseur [3,4] et à l'application pionnière des ultrasons laser à des expériences sous haute pression dans une cellule à enclumes de diamant (DAC) par des chercheurs français [5,6], la technique TDBS a été appliquée dans notre équipe à l'imagerie tridimensionnelle de matériaux polycristallins texturés avec une résolution axiale sub-micrométrique et une résolution latérale micrométrique [7,8] (Fig. 1). Très récemment et pour la première fois, nous avons utilisé les ondes acoustiques de cisaillement à des fréquences GHz pour l'imagerie quantitative de polycristaux à des pressions élevées dans une cellule à enclume de diamant, ondes qui ont permis un gain indéniable du contraste et apporté des informations supplémentaires pour une caractérisation plus complète [8].

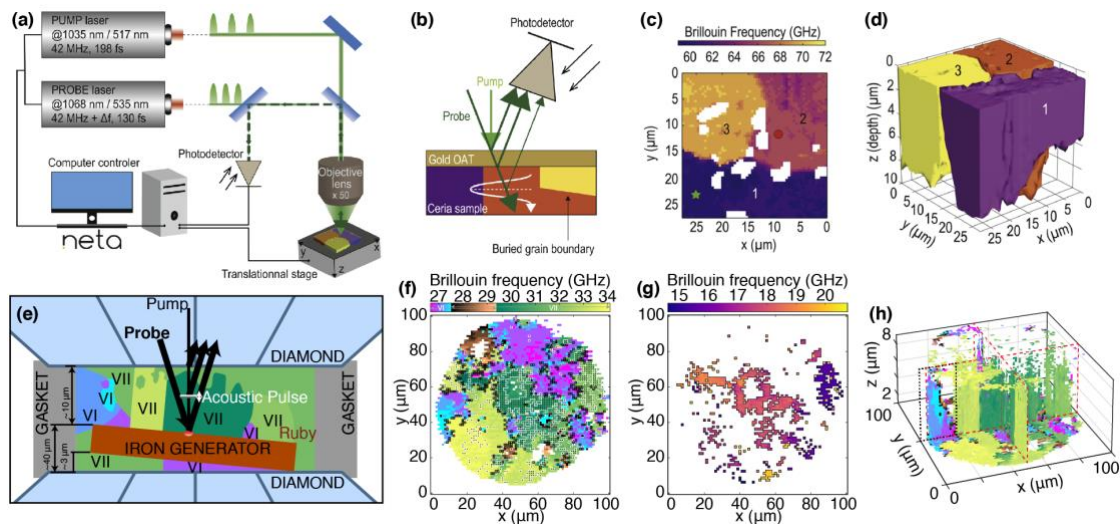


Figure 1. (a) Schéma du système expérimental d'imagerie TDBS (JAX-M1). (b) Schéma des réflexions du faisceau sonde dans la technique TDBS (configuration de réflexion) : deux réflexions stationnaires se produisent aux interfaces du transducteur optoacoustique (OAT), tandis qu'une troisième réflexion, plus faible, se produit à différentes profondeurs le long du chemin de propagation de l'impulsion acoustique. Une frontière inclinée entre deux grains est représentée dans la partie droite du schéma du polycristal [7]. Résultats d'imagerie : (c) image 2D de la surface libre de l'échantillon et (d) reconstitution 3D de 3 grains (1/pourpre, 2/orange et 3/jaune) avec le mode longitudinal [7]. (e) Vue latérale agrandie en coupe transversale de la cellule à enclumes de diamant. Les résultats (f-h) des expériences TDBS [8] ont révélé la coexistence dans l'échantillon de deux phases, la glace VI (bleutâtre) et la glace VII (verdâtre). Le générateur opto-acoustique en fer en forme de disque dans la chambre expérimentale a un diamètre d'environ 100 μm . Il touche l'enclume de diamant inférieure à son extrémité droite. Bien que les trajectoires des lasers pompe et sonde soient colinéaires dans l'expérience, celui de la sonde est montré incliné pour une meilleure visualisation de ses différentes réflexions [8]. (f-g) Contenu fréquentiel dominant attribué aux (f) modes longitudinaux et (g) modes transversaux des deux premières nanosecondes des signaux TDBS observés dans la zone de 100 x 100 μm^2 de l'échantillon de glace. (h) Représentation de l'image 3D du volume complet sondé [8].

L'objectif du projet de recherche doctorale que nous proposons ici est de réaliser, en utilisant la technique TDBS, une méthode d'imagerie très rapide et en quatre dimensions : mesures tridimensionnelles dans l'espace et résolues en temps (3+1 = 4), afin d'évaluer quantitativement par cette méthode des processus (transitoires) dans des milieux élastiques. La réalisation de cet objectif nécessite l'utilisation d'un échantillonnage optique asynchrone (Fig. 1 (a)) [7-9] pour générer et détecter par lasers des impulsions acoustiques picosecondes cohérentes, dans des volumes de mesure inférieurs à 10 μm^3 . L'échantillonnage asynchrone permet en effet d'augmenter le taux d'acquisition de 10^6 fois par rapport à une configuration plus classique utilisant une ligne à retard mécanique pour produire le délai entre l'arrivée de l'impulsion pompe et celle de l'impulsion sonde sur l'échantillon [1-5].

Les phénomènes fondamentaux d'intérêt pour une telle méthode d'imagerie sont actuellement les transitions de phase, les réactions chimiques, le mouvement des frontières des grains, la polycristallisation, la texture et le flux des matériaux, et plus généralement tout phénomène transitoire spatialement inhomogène et induit, dans des volumes inférieurs à 10 μm^3 , par des actions externes telles que l'augmentation de la pression ou de la température, ou encore l'action d'un laser UV ou autres types de rayonnement.

Pour réaliser une image quantitative 4D avec une résolution micrométrique à nanométrique, l'application de méthodes efficaces et rapides de traitement du signal apparaît comme primordiale, encore plus que pour l'imagerie 3D, de par les énormes volumes de données à traiter, obtenus de plus sur des matériaux dont les paramètres sont a priori mal connus ou inconnus, en particulier concernant leurs variations avec la température, la pression ou leur exposition à un rayonnement UV, par

exemple. Les développements récents dans le domaine de l'intelligence artificielle et des réseaux de neurones, notamment par l'introduction d'une fonction coût intégrant la physique des problèmes inverses à résoudre (réseau de neurones nommé PINN pour physics-informed neural networks), semblent très prometteurs pour obtenir une image quantitative 4D de l'évolution des paramètres matériaux en fonction de l'espace (3D) et du temps, et ce pour deux raisons : (i) la description mathématique des phénomènes physiques mis en jeu dans la génération et la détection d'ondes acoustiques dans la technique TDBS, bien que fortement multi-physiques (comportement et interactions des porteurs de charges, des champs électromagnétiques, thermiques et acoustiques, dans des matériaux élastiques, diélectriques, semi-conducteurs, ..., transparents ou absorbants, ...), est bien connue [2, 10] ; (ii) des premiers résultats d'utilisation de PINN pour l'imagerie ont démontré un fort potentiel de ces approches en termes de robustesse aux bruits et de bonne reconstruction sous contrainte de faible échantillonnage [11-13], rendant ces approches attractives pour imager des processus transitoires rapides pour lesquels un fort moyennage sur une cartographie fine serait limitante.

Les tâches scientifiques principales de cette recherche doctorale consisteront à réaliser une imagerie spatio-temporelle et une caractérisation quantitative, par le développement et l'utilisation de réseaux PINN dédiés, pour les trois processus transitoires suivants : a) réactions chimiques induites, dans des matériaux tels que l'époxy et les films nanoporeux à faible constante diélectrique, par durcissement thermique et/ou rayonnement UV ; b) transitions de phase provoquées, dans des polymères, par une augmentation de pression et/ou une exposition à un rayonnement UV ; c) relaxation de films minces ayant crû épitaixialement sur substrats par dépôt par laser pulsé.

La connaissance de la structure des matériaux et de l'évolution de l'élasticité sous les actions extérieures (hautes pressions, températures élevées, doses élevées de rayonnements) est d'une extrême importance pour plusieurs branches des sciences naturelles, comme la physique de la matière condensée ou la science et le génie des matériaux. Notre recherche fera progresser les approches expérimentales innovantes d'évaluation non destructive et les méthodes de traitement des signaux qui pourraient être utiles pour l'application de la technique TDBS dans d'autres domaines de recherche traitant de l'imagerie à résolution nanométrique à l'intérieur d'objets microscopiques tels que des cellules végétales ou animales [14] et des nanostructures ou matériaux microélectroniques [2, 3, 15-17].

Références (Les publications de notre équipe sont en gras)

[1] H. T. Graham et al., *IEEE J. Quantum Electron.* 25, 2562 (1989). [2] **V. E. Gusev, P. Ruello**, *Appl. Phys. Rev.* 5(3), 031101 (2018) (Cover page of V. 5 No 3 September 2018; <https://aip.scitation.org/toc/are/5/3?expanded=5>). [3] **C. Mechri et al.**, *Appl. Phys. Lett.* 95, 091907 (2009). [4] **A. M. Lomonosov et al.**, *ACS Nano* 6, 1410 (2012). [5] F. Decremps et al., *Phys. Rev. Lett.* 100, 035502 (2008). [6] **N. Chigarev et al.**, *Appl. Phys. Lett.* 93, 181905 (2008). [7] **S. M. Nikitin et al.**, *Sci. Rep.* 5, 9352 (2015) (Faits marquants CNRS 2015). [8] **T. Thréard et al.**, *Photoacoustics*, 23, 100286 (2021). [9] **S. Sandeep et al.**, *J. Appl. Phys.* 130, 053104 (2021) (Editor's Pick and article by Anashe Bandari in the online journal AIP Scilight <https://doi.org/10.1063/1.50005895>) [10] A. Bartels et al., *Rev Sci Instrum.* 78, 035107 (2007). [11] **P. Ruello, V. E. Gusev**, *Ultrasonics* 56, 21-35 (2015). [12] **R. Fablet et al.**, *J. Adv. Model. Earth Sys.* 13, e2021MS002572 (2021). [13] **R. Fablet et al.**, *ISPRS Ann. Photogramm. Remote Sens. Spatial Inf. Sci.*, V-3-2021, 295–302 (2021). [14] F. Pérez-Cota et al., *Sci. Rep.* 6(1), 39326 (2016).

2 présentations à e-Forum Acusticum (Lyon, France, 7-11 December 2020); <https://fa2020.universite-lyon.fr/>; [15]. **S. Sathyan et al.**, Three-dimensional imaging of metal/epoxy interface using time-domain Brillouin scattering. [16]. **N. Chigarev et al.**, Studying the polymerization of 2-(hydroxyethyl) methacrylate using laser ultrasonics techniques.

2 présentations à IEEE International Ultrasonics Symposium (virtual, September 12 – 16, 2021 in Xi'an China); <https://2021.ijece-ius.org/>; [17]. **S. Sathyan, et al.**, Evaluation of Optical and Acoustical Properties of Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ Material Library by Picosecond Laser Ultrasonics. [18]. **S. Sathyan et al.**, Evaluation of Epoxy Curing Dynamics near its Interface with Metals by Time-Domain Brillouin Scattering Three-Dimensional Imaging.

[19]. **S. Sathyan et al.**, Evaluation of Optical and Acoustical Properties of Ba_{1-x}Sr_xTiO₃ thin film Material Library via Conjugation of Picosecond Laser Ultrasonics with X-ray diffraction, Energy Dispersive Spectroscopy, Electron Probe Micro Analysis, Scanning Electron and Atomic Force Microscopies, *Nanomaterials* 11, 3131 (2021). <https://doi.org/10.3390/nano11113131>. [20]. **S. Sathyan et al.**, Evaluation of curing efficiency of OSG low-k films using time-domain Brillouin scattering. 47th International Conference on MICRO & NANO ENGINEERING – MNE2021 (20-23 September 2021 - TORINO (ITALY) & ON-LINE) www.mne2021.org [21]. **T. Thréard, et al.**, Three-dimensional opto-acousto-optic imaging of grain boundaries and grains in polycrystalline materials, Symposium on the Materials Acoustics, Technologies and Industrialization, MATI2019 (Nanjing, China, October 24-25, 2019) (Plenary). [22]. **V. Gusev et al.**, Advances in Applications of Picosecond Acoustic Interferometry for Nanoscale Imaging, 20th World Conference on Non-Destructive Testing (20th WCNDT 2020, Seoul, Korea, June 8-12, 2020). (Keynote, postponed for May 30 – June 3, 2022).