

12

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

22 Date de dépôt : 23.12.14.

30 Priorité :

43 Date de mise à la disposition du public de la demande : 24.06.16 Bulletin 16/25.

56 Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du présent fascicule*

60 Références à d'autres documents nationaux apparentés :

Demanda(s) d'extension :

71 Demandeur(s) : CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE Etablissement public — FR, UNIVERSITE DE LILLE 1 Etablissement public — FR et ISEN Etablissement public — FR.

72 Inventeur(s) : DEVOS ARNAUD.

73 Titulaire(s) : CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE Etablissement public, UNIVERSITE DE LILLE 1 Etablissement public, ISEN Etablissement public.

74 Mandataire(s) : CABINET NONY.

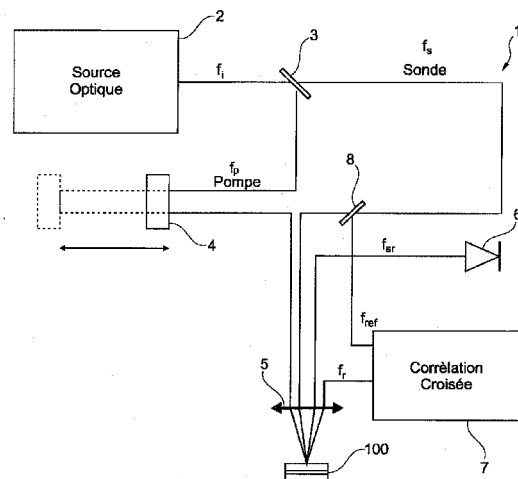
54 PROCEDE DE RE-FOCALISATION D'UN MONTAGE OPTIQUE D'ANALYSE D'ECHANTILLONS.

57 Procédé de re-focalisation d'un montage optique d'analyse d'un échantillon (100), utilisant un faisceau sonde ( $f_s$ ) et un faisceau pompe ( $f_p$ ) provenant d'au moins une source optique (2) à impulsions courtes, comportant au moins une ligne à retard (4) placée sur le trajet de l'un des faisceaux pompe ( $f_p$ ) et sonde ( $f_s$ ) sur l'échantillon (100) à analyser, la re-focalisation étant opérée après connaissance de conditions de référence pour lesquelles le montage optique est considéré comme étant focalisé, procédé dans lequel :

- on détecte un signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre un faisceau réfléchi (f) par l'échantillon (100), retardé par la ligne à retard (4), et un faisceau de référence non réfléchi ( $f_{ref}$ ) par l'échantillon (100) et issu de la ou de l'une des sources (2),

- on fait varier, à partir desdites conditions de référence, le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard (4) de façon à amener ledit signal de focalisation à atteindre ou dépasser un seuil prédéfini, et

- on réajuste la focalisation à partir de la connaissance de la variation de chemin optique entre les conditions de référence et les conditions pour lesquelles le signal de focalisation atteint ou dépasse ledit seuil prédéfini.



La présente invention concerne un procédé et un dispositif de re-focalisation d'un montage optique d'analyse d'échantillons.

Dans un montage optique dit « *résolu en temps* », notamment du type « *pompe-sonde* », on utilise des impulsions laser ultra-courtes temporellement, c'est-à-dire de l'ordre de la femtoseconde ou de la picoseconde, pour exciter optiquement l'échantillon et détecter son état avant, pendant et après la création du phénomène. Il peut s'agir d'exciter des porteurs de charge dans un métal ou un semi-conducteur, d'apporter de la chaleur ou encore de générer des impulsions acoustiques.

Les montages pompe-sonde permettent d'étudier des phénomènes très rapides, par exemple la dynamique des électrons dans la matière, la diffusion de la chaleur à petite échelle ou encore des phénomènes de photo-acoustique ultra-rapide, aussi appelée « *acoustique picoseconde* ». Cette application de photo-acoustique est très répandue dans le monde industriel. La société Rudolph Technologies commercialise depuis de nombreuses années des équipements de contrôle en ligne de l'épaisseur des couches de circuits intégrés, très utilisés par tous les grands producteurs de micro-électronique. La société MENAPiC exploite une variante de la technique photo-acoustique, qui permet la caractérisation de matériaux.

Le principe de ces montages optiques est d'employer deux sources optiques, notamment laser, ou une source optique divisée en deux faisceaux. La première source optique, appelée « *pompe* », est responsable de la génération du phénomène. Le faisceau pompe est focalisé sur l'échantillon à travers une optique de focalisation dédiée, telle qu'une lentille ou un objectif de microscope par exemple. Le second faisceau, appelé « *sonde* », est également focalisé sur l'échantillon au même point, avec la même optique ou une optique différente.

Les deux faisceaux ont des trajets optiques différents mais l'un d'eux au moins est réglable en longueur de sorte qu'il existe un moyen de rendre rigoureusement égales les longueurs des chemins optiques parcourus par les deux faisceaux. Le réglage de la longueur d'un des trajets, par une ligne à retard, fixe le déphasage temporel entre les faisceaux pompe et sonde et détermine l'instant auquel on regarde l'état de l'échantillon.

Les deux faisceaux pompe et sonde se réfléchissent sur l'échantillon ou le traversent. Le faisceau sonde réfléchi ou transmis est analysé en amplitude, phase ou direction selon les montages. L'analyse des dépendances de l'une de ces grandeurs en

fonction du délai entre les faisceaux pompe et sonde permet de reconstruire l'histoire de l'échantillon avant, pendant et après la création du phénomène.

La figure 1 représente un exemple de montage optique pompe-sonde 51 employant une seule source laser 52. Le faisceau  $f_i$  issu de celle-ci est divisé en deux faisceaux, pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$ , par un élément séparateur 53. Le retard entre ces faisceaux 5 est réglable grâce à une ligne à retard 54, constituée dans cet exemple d'un miroir mobile selon un déplacement linéaire. Les deux faisceaux pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$  sont ensuite recombinaés sur l'échantillon à analyser 100 grâce à une optique de focalisation 55, unique pour les deux faisceaux dans l'exemple considéré. Le faisceau sonde réfléchi  $f_{s_r}$  par 10 l'échantillon 100 est analysé, dans cet exemple, en intensité grâce à une photodiode 56, le faisceau pompe  $f_{p_r}$  étant stoppé par un piège de lumière 57.

L'ajustement précis de la distance entre l'optique de focalisation et la surface de l'échantillon à analyser est crucial pour obtenir le signal recherché, comme expliqué dans les articles de A. Devos *et al.* « *Strong oscillations detected by picosecond ultrasonics* 15 *in silicon: evidence for an electronic structure effect* », Physical Review B, 70, 12, 125208, 2004, et « *A different way of performing picosecond ultrasonic measurements in thin transparent films based on laser-wavelength effects* », Applied Physics Letters 86, 21, 211903, 2005.

A chaque changement d'échantillon ou de zone de l'échantillon analysée, en 20 particulier pour un échantillon d'épaisseur variable, ce réglage doit être repris selon l'épaisseur locale et le type d'échantillon.

Dans des méthodes connues, la re-focalisation est effectuée en observant l'évolution du signal lorsque la distance focale varie, en cherchant à obtenir avec le nouvel échantillon une réponse comparable ou plus forte que celle de l'échantillon de référence. 25 Toutefois, dans le cas d'un échantillon ayant une réponse plus faible, rien ne garantit que cette exploration suffise. Dans la pratique, lorsqu'il est nécessaire de modifier la superposition spatiale des faisceaux, ou les calibres des appareils électroniques de mesure, le signal est souvent perdu.

Une autre technique connue consiste à analyser la divergence du faisceau 30 réfléchi sur l'échantillon. Toutefois, cette technique ne trouve à s'appliquer que pour les montages où la focalisation et la re-collimation des faisceaux est réalisée par la même optique. En regardant au loin le faisceau réfléchi, celui-ci doit apparaître collimaté quand

l'échantillon est dans le plan focal de l'optique. Cette technique souffre souvent d'un manque de précision.

Dans d'autres méthodes connues, un système externe est utilisé, par exemple un système électronique comme décrit dans la demande de brevet CA 02281747. La méthode peut reposer sur une mesure de capacité, comme dans le produit Autofocus control module de la société American Laser Enterprises. La méthode peut encore reposer sur une mesure optique, à l'aide d'un système optique externe, comme dans le produit FocusTrac<sup>TM</sup> de la société Motion X corporation.

Les systèmes utilisant des mesures de capacité requièrent une surface d'échantillon métallique, ce qui exclut toutes sortes d'échantillon, comme les échantillons en verre par exemple

Les systèmes optiques externes imposent d'ajouter différentes optiques sur le trajet de la source laser, ce qui est dommageable pour la précision des mesures.

Il subsiste par conséquent un besoin pour améliorer encore les méthodes permettant de focaliser des faisceaux sur un support optiquement réfléchissant dans un montage optique d'analyse d'échantillons, afin de remédier aux inconvénients ci-dessus.

L'invention a pour but de répondre à ce besoin et elle y parvient, selon l'un de ses aspects, grâce à un procédé de re-focalisation d'un montage optique d'analyse d'un échantillon, utilisant un faisceau sonde et un faisceau pompe provenant d'au moins une source optique à impulsions courtes, comportant au moins une ligne à retard placée sur le trajet de l'un des faisceaux et au moins une optique de focalisation des faisceaux pompe et sonde sur l'échantillon à analyser, la re-focalisation étant opérée après connaissance de conditions de référence pour lesquelles le montage optique est considéré comme étant focalisé, procédé dans lequel :

- on détecte un signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre un faisceau réfléchi par l'échantillon, retardé par la ligne à retard, et un faisceau de référence non réfléchi par l'échantillon et issu de la ou de l'une des sources,

- on fait varier, à partir desdites conditions de référence, le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard, de façon à amener ledit signal de focalisation à atteindre ou dépasser un seuil prédéfini, et

- on réajuste la focalisation à partir de la connaissance de la variation de chemin optique entre les conditions de référence et celles pour lesquelles le signal de focalisation atteint ou dépasse ledit seuil prédéfini.

L'invention porte encore, selon un autre de ses aspects, sur un dispositif de re-  
5 focalisation destiné à la mise en œuvre du procédé selon l'invention ci-dessus, le montage optique d'analyse utilisant un faisceau sonde et un faisceau pompe provenant d'au moins une source optique à impulsions courtes, comportant au moins une ligne à retard placée sur le trajet de l'un des faisceaux et au moins une optique de focalisation des faisceaux sur l'échantillon à analyser,  
10 le dispositif comportant un moyen de détection d'un signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre un faisceau réfléchi par l'échantillon, retardé par la ligne à retard, et un faisceau de référence non réfléchi par l'échantillon et issu de la ou de l'une des sources,  
le dispositif étant configuré pour :

15 - faire varier, à partir de conditions de référence pour lesquelles le montage optique était considéré comme étant focalisé, le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard, de façon à amener ledit signal de focalisation à atteindre ou dépasser un seuil prédéfini, et  
- réajuster la focalisation à partir de la connaissance de la variation de chemin  
20 optique entre lesdites conditions de référence et celles pour lesquelles le signal de focalisation atteint ou dépasse ledit seuil prédéfini.

L'invention permet, dans des montages optiques du type pompe-sonde, de régler facilement la focalisation de faisceaux sur un échantillon, de façon très rapide, sans l'intervention d'un technicien ou l'utilisation de systèmes externes.

25 Le procédé selon l'invention permet de réajuster automatiquement la focalisation avec succès même pour des échantillons d'une épaisseur différente d'environ 4 mm à celle de l'échantillon de référence.

L'invention peut utiliser le faisceau pompe réfléchi sur la surface où il faut faire la mise au point, signal habituellement perdu dans ce type de montage. La précision de la  
30 focalisation est excellente car la résolution temporelle est celle du montage pompe-sonde. L'invention permet ainsi de déterminer indépendamment de la réponse de l'échantillon la nouvelle position à donner à la ou aux optiques de focalisation.

L'invention peut être mise en œuvre à l'aide d'optiques indépendantes du montage optique d'analyse, ce qui évite de perturber ce dernier, et d'un moyen permettant de réaliser une corrélation croisée, mais ne requiert pas l'ajout de systèmes optiques complexes étrangers au montage. Il en résulte un dispositif très compact.

5 L'invention vise tous les équipements implémentant un montage optique de type pompe-sonde, par exemple des montages de thermoréfectance, d'acoustique picoseconde ou térahertz. Elle est particulièrement adaptée aux mesures optiques rapides et aux systèmes d'analyse acoustique, par exemple pour des mesures d'épaisseur, de temps de vie de porteurs dans des semi-conducteurs, ou de propriétés élastiques de matériaux,  
10 notamment pour des applications sonar.

On peut faire varier, à partir desdites conditions de référence, le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard en déplaçant la ligne à retard par rapport à l'échantillon, ce qui donne un résultat de focalisation optimal. Dans une variante, on fait varier le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard en  
15 déplaçant l'échantillon par rapport à la ligne à retard, notamment grâce à un porte-échantillon mobile sur lequel l'échantillon est disposé.

La ligne à retard et/ou l'échantillon à analyser sont ainsi avantageusement déplacés afin de réaliser diverses détections du signal de focalisation, jusqu'à ce ledit signal de focalisation atteigne ou dépasse le seuil prédéfini.

20 Ce seuil prédéfini peut être égal à zéro, mieux est strictement supérieur à zéro. Le seuil prédéfini peut dépendre de la largeur des impulsions, un seuil égal à zéro pouvant ne pas être suffisant pour réaliser facilement la re-focalisation, notamment pour des impulsions de l'ordre de la picoseconde. Ce seuil prédéfini peut être fonction de la longueur d'onde de la ou des sources optiques.

25 Le signal de focalisation représentatif du recouvrement temporel des impulsions peut être obtenu par corrélation croisée entre le faisceau réfléchi par l'échantillon, retardé par la ligne à retard, et le faisceau de référence non réfléchi par l'échantillon et issu de la ou de l'une des sources.

30 La corrélation croisée, ou autocorrélation, entre des impulsions optiques, notamment laser, a été décrite dans l'article de Chong *et al.* « *Autocorrelation measurement of femtosecond laser pulses based on two-photon absorption in GaP photodiode* », Applied Physics Letter volume 105, page 062111, 2014.

Le procédé de focalisation selon l'invention peut être mis en œuvre à l'aide d'une boucle d'asservissement, ce qui permet d'analyser un échantillon dans son entier de manière totalement automatique. La boucle d'asservissement peut être programmée pour effectuer les différentes étapes du procédé de re-focalisation selon l'invention ainsi que  
5 l'analyse de l'état de l'échantillon, à chaque changement des conditions d'analyse, notamment en cas de changement d'échantillon ou de changement de zone d'observation.

Le montage optique d'analyse dans lequel est mis en œuvre le procédé selon l'invention peut comporter une unique source optique et un élément séparateur pour séparer le faisceau provenant de la source optique afin de créer les faisceaux pompe et  
10 sonde. Dans une variante, le montage optique d'analyse comporte deux sources optiques, émettant respectivement les faisceaux pompe et sonde. Dans le cas où le montage optique d'analyse comporte deux sources optiques distinctes, celles-ci peuvent être synchronisées en utilisant des électroniques dédiées.

La ligne à retard est avantageusement placée sur le trajet du faisceau pompe.

15 Le faisceau de référence non réfléchi par l'échantillon peut être le faisceau pompe non retardé par la ligne à retard, ou le faisceau sonde ou, dans le cas où le montage optique d'analyse comporte une seule source et un élément séparateur, un faisceau issu de la source optique capturé avant l'élément séparateur.

L'utilisation du faisceau pompe non retardé par la ligne à retard est préférée,  
20 car cela permet d'obtenir des impulsions plus énergétiques, le faisceau ne parcourant pas, sur son trajet, des optiques susceptibles de le modifier.

Le montage optique d'analyse dans lequel est mis en œuvre le procédé selon l'invention comporte avantageusement une seule optique de focalisation permettant aux deux faisceaux pompe et sonde d'être recombinaés sur l'échantillon. Dans une variante, le  
25 montage optique d'analyse comporte une optique de focalisation différente pour chaque faisceau pompe et sonde.

La focalisation peut être réajustée en déplaçant la ou les optiques de focalisation par rapport à l'échantillon. Dans une variante, la focalisation est modifiée en déplaçant l'échantillon par rapport à la ou aux optiques de focalisation, notamment grâce  
30 au déplacement du porte-échantillon sur lequel l'échantillon est disposé.

Lors de la mise en œuvre du procédé selon l'invention, lorsque la focalisation peut être rétablie, et dans le cas où la ligne à retard a été déplacée pour faire varier le

chemin optique du faisceau sur lequel cette dernière est placée, la ligne à retard est de préférence replacée au zéro de référence pour obtenir le signal pompe-sonde et débiter l'analyse de l'échantillon.

Les conditions de référence correspondent avantageusement à l'état dans lequel la ou les optiques de focalisation sont considérées comme étant focalisées sur un échantillon de référence, et peuvent correspondre à une longueur de référence  $d_1$  du chemin optique entre la ligne à retard et l'échantillon.

La détermination de cette longueur de référence  $d_1$  peut être réalisée de façon conventionnelle avec un échantillon de référence autre que celui à analyser, ou avec l'échantillon à analyser mais lors de l'observation d'une zone de référence autre que la zone de l'échantillon devant être analysée, par exemple à la surface de l'échantillon ou à une profondeur plus ou moins grande dans son épaisseur.

Selon un mode de réalisation préféré de l'invention, on détermine la longueur  $d_2$  du chemin optique entre la ligne à retard et l'échantillon, pour laquelle le signal de focalisation atteint ou dépasse le seuil prédéfini. Il suffit alors de réajuster la focalisation en déplaçant l'optique de focalisation ou l'échantillon d'une valeur dépendant de préférence de  $d_2-d_1$ , mais pouvant être régie par une relation autre entre  $d_2$  et  $d_1$ .

Ainsi, dans le cas où le montage optique est configuré pour que le faisceau passe à plusieurs reprises par la ou les lignes à retard, le réajustement est un multiple de cette valeur  $d_2-d_1$ , à savoir par exemple  $2k(d_2-d_1)$ , où  $k$  est le nombre de passages aller et retour.

Le décalage maximal en valeur absolue concernant la position de l'échantillon, permis par le montage optique d'analyse, vaut  $d$ , étant par exemple compris entre 0 et 25 mm. La ligne à retard ne peut être éloignée de l'échantillon d'une valeur supérieure à  $d_1+d$  ou inférieure à  $d_1-d$ .

La recherche du signal de focalisation par corrélation croisée s'effectue alors avantageusement à partir de la valeur  $d_1-d$ , en incrémentant progressivement la longueur de chemin optique.

Le procédé selon l'invention est particulièrement adapté à des échantillons comportant un empilement de couches minces, notamment métalliques, sur un substrat, notamment en silicium. Les échantillons comportent par exemple une couche d'aluminium,

notamment d'épaisseur égale à 10 nm, une couche de nitrure de silicium, notamment d'épaisseur égale à 200 nm, et une couche de silicium, étant de composition Al/SiN/Si.

La focalisation peut se faire à la surface de l'échantillon ou en profondeur, à une distance prédéfinie de sa surface.

5 La source optique est avantageusement un laser à impulsions courtes, notamment comprises entre 10 fs et 10 ps. Les lasers utilisés sont par exemple le modèle Chameleon Ultra ou le modèle MIRA de la société Coherent, ou le modèle Mai Tai de la société Spectra Physics.

10 Ces lasers délivrent avantageusement des impulsions d'environ 100 fs de durée, accordables à des longueurs d'onde comprises entre 680 nm et 1050 nm, correspondant au proche infrarouge. Dans le cas d'une seule source optique, un doubleur de fréquence, disposé avant ou après l'élément séparateur pompe/sonde, peut être utilisé afin de délivrer par exemple des impulsions accordables à des longueurs d'onde comprises entre 350 nm et 520 nm, correspondant au bleu, sans modifier la durée des impulsions.

15 La puissance moyenne de la ou des sources optiques peut être comprise entre quelques mW à plus de 100 mW, une atténuation à l'entrée du montage optique pouvant être utilisée si nécessaire. Plus la source optique émet d'impulsions énergétiques, plus les mesures de corrélation croisée sont aisées à réaliser.

20 Le moyen de détection du signal de focalisation peut comporter un cristal non linéaire, qui procure une polarisation importante, notamment un cristal de beta borate de barium (BBO). Afin de détecter le signal de focalisation, les deux faisceaux sont combinés dans le cristal non linéaire, et le faisceau issu de la somme des photons issus de la corrélation croisée est détecté à l'aide d'une photodiode.

25 Dans une variante, le moyen de détection du signal de focalisation est une photodiode à deux photons sur laquelle on focalise les deux faisceaux, notamment une photodiode à deux photons en carbure de silicium (SiC), phospho-arséniure de gallium (GaAsP) ou phosphure de gallium (GaP). L'utilisation d'une photodiode à deux photons, notamment en carbure de silicium, est particulièrement avantageuse dans le cas d'applications utilisant des sources optiques de longueurs d'onde différentes, par exemple  
30 une longueur d'onde pour le faisceau pompe située dans le proche infrarouge, de longueur d'onde comprise entre 680 nm et 1050 nm environ, et celle du faisceau sonde située dans le bleu, de longueur d'onde comprise entre 350 nm et 520 nm environ.

La ligne à retard optique peut comporter un miroir et/ou un ou plusieurs prismes à réflexion totale et/ou un rétro-rélecteur et/ou un modulateur électro-optique, notamment portés par un chariot mobile. Le choix du type de ligne à retard dépend avantagement de la longueur d'onde de la ou des sources optiques. Un microcontrôleur  
5 peut être présent dans le dispositif pour piloter les déplacements de la ligne à retard.

La ligne à retard utilisée pour faire varier le chemin optique du faisceau optique sur lequel cette dernière est placée peut être la même que celle utilisée pour fixer le déphasage temporel entre les faisceaux pompe et sonde pour l'analyse de l'échantillon, de manière connue, comme décrit précédemment. Dans une variante, le dispositif selon  
10 l'invention comporte deux lignes à retard distinctes.

L'invention porte encore, selon un autre de ses aspects, sur un ensemble, encore appelé kit, destiné à la mise en œuvre du procédé de re-focalisation selon l'invention, comprenant :

- le dispositif de re-focalisation selon l'invention, tel que défini ci-dessus, comportant au moins une ligne à retard et au moins une optique de focalisation de  
15 faisceaux sur l'échantillon à analyser, et

- un échantillon de référence pour la détermination préalable des conditions de référence pour lesquelles le montage optique est considéré comme étant focalisé sur l'échantillon de référence.

L'échantillon de référence comporte avantagement une couche métallique, en aluminium notamment, et au moins une couche en un autre matériau, notamment du silicium ou du verre.

L'échantillon de référence est de préférence observé sous incidence normale pour la détermination préalable desdites conditions de référence.

Les caractéristiques énoncées ci-dessus pour le procédé et le dispositif de focalisation s'appliquent audit ensemble.

L'invention pourra être mieux comprise à la lecture de la description détaillée qui va suivre, d'exemples de mise en œuvre non limitatifs de celle-ci, et à l'examen du dessin annexé, sur lequel :

- la figure 1, déjà décrite, représente un montage optique pompe-sonde selon l'art antérieur,

- la figure 2 représente un dispositif selon l'invention pour la focalisation d'un montage optique pompe-sonde,

- la figure 3 illustre des étapes dans la mise en œuvre du procédé selon l'invention, et

5 - la figure 4 représente des chronogrammes de signaux obtenus en appliquant le procédé selon l'invention.

Un dispositif de focalisation 1 d'un montage optique d'analyse d'un échantillon 100, destiné à la mise en œuvre du procédé selon l'invention, est représenté à la figure 2.

10 L'échantillon 100 comporte par exemple une couche d'aluminium, d'épaisseur égale à 10 nm, une couche de nitrure de silicium, d'épaisseur égale à 200 nm, et une couche de silicium, étant de composition Al/SiN/Si. L'invention n'est toutefois pas limitée à un type d'échantillon à analyser particulier.

Le montage optique d'analyse utilise un faisceau pompe  $f_p$  et un faisceau sonde  $f_s$  provenant d'un faisceau initial  $f_i$  émis par une unique source optique 2 et séparé en deux faisceaux pompe et sonde par un élément séparateur 3. Dans une variante non illustrée, le montage optique d'analyse comporte deux sources optiques émettant respectivement les faisceaux pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$ .

La source optique 2 est avantageusement un laser à impulsions courtes, par exemple de durée sensiblement égale à 100 fs, et accordable à des longueurs d'onde comprises entre 680 nm et 1050 nm, ce qui correspond au proche infrarouge.

Un doubleur de fréquence, non représenté, peut être disposé après l'élément séparateur 3 afin de délivrer pour la sonde des impulsions accordables à des longueurs d'onde comprise entre 350 nm et 520 nm, correspondant au bleu, sans modifier la durée des impulsions. L'invention n'est toutefois pas limitée à un type particulier de source optique ni à des types particuliers de faisceaux pompe et sonde.

Le montage optique d'analyse comporte une ligne à retard 4 placée sur le trajet du faisceau pompe  $f_p$  et une optique de focalisation 5 permettant aux deux faisceaux pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$  d'être recombinaés sur l'échantillon à analyser 100. Dans une variante non illustrée, le montage optique d'analyse comporte une optique de focalisation différente pour chaque faisceau pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$ . La ou les optiques de focalisation 5 sont par exemple des lentilles de type AC254-50-B 50 mm ou Achro MG 60 mm.

Dans l'exemple décrit, la ligne à retard 4 comporte un miroir porté par un chariot mobile. Dans des variantes, la ligne à retard 4 comporte un ou plusieurs prismes à réflexion totale et/ou un rétro-rélecteur et/ou un modulateur électro-optique.

5 Un circuit électronique à microcontrôleur, non représenté, peut être présent pour piloter les déplacements des différents éléments mobiles du montage optique, notamment la ligne à retard 4.

Préalablement à la mise en œuvre du procédé de re-focalisation selon l'invention, une longueur de référence  $d_1$  du chemin optique entre la ligne à retard 4 et l'échantillon a été déterminée, dans des conditions de référence dans lesquelles l'optique  
10 de focalisation 5 est considérée comme étant focalisée sur un échantillon de référence.

La détermination préalable de la longueur de référence  $d_1$  peut être réalisée avec un échantillon de référence autre que celui à analyser, ou avec l'échantillon à analyser  
100 mais dans une zone de référence autre que celle devant être analysée.

Un faisceau sonde de référence  $f_{ref}$  non réfléchi par l'échantillon 100 est obtenu  
15 par la disposition d'un élément séparateur 8 pour capturer une partie du faisceau sonde et l'envoyer vers un moyen de détection 7 dudit signal de focalisation. Le faisceau sonde réfléchi  $f_s$  par l'échantillon 100 est capturé, dans l'exemple décrit, par une photodiode 6.

Le moyen de détection 7 du signal de focalisation est avantageusement une photodiode à deux photons, par exemple en carbure de silicium (SiC), particulièrement  
20 avantageuse lorsque les longueurs d'onde des faisceaux pompe  $f_p$  et sonde  $f_s$  sont différentes.

Dans des variantes, le moyen de détection 7 du signal de focalisation est une photodiode à deux photons en phospho-arséniure de gallium (GaAsP) ou phosphure de gallium (GaP), ou comporte un cristal non linéaire, par exemple un cristal de beta borate de  
25 barium (BBO). L'invention n'est toutefois pas limitée à un type particulier de moyen de détection dudit signal de focalisation.

Le procédé de re-focalisation selon l'invention peut être mis en œuvre de façon automatique à l'aide d'une boucle d'asservissement, dont un exemple est représenté à la  
figure 3.

30 Lors d'un changement d'échantillon à analyser ou de changement de zone observée, changement matérialisé par l'étape 11 à la figure 3, une nouvelle focalisation du montage optique est nécessaire.

La ligne à retard 4 est initialement placée à la valeur correspondante à  $d_1-d$ , à l'étape 12. La valeur  $d$  est le décalage maximal entre la ligne à retard 4 et l'échantillon 100 permis par le montage optique d'analyse, et  $d$  peut être comprise entre 0 et 25 mm. La ligne à retard 4 est progressivement déplacée depuis la position correspondant au chemin

5 optique  $d_1-d$ , lors d'une étape 13, afin d'augmenter le chemin optique du faisceau pompe sur lequel la ligne à retard 4 est placée.

A chaque incrément de déplacement, dans une étape 14, une détection du signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre le faisceau pompe réfléchi  $f_r$  par l'échantillon 100 et retardé par la ligne à retard 4, et le

10 faisceau sonde de référence  $f_{ref}$ , non réfléchi par l'échantillon 100, est réalisée. La longueur du chemin optique est incrémentée en déplaçant la ligne à retard jusqu'à détecter un signal de focalisation supérieur à un seuil prédéfini.

On mémorise, lors d'une étape 15, la longueur correspondante  $d_2$ . Dans une variante non illustrée, l'échantillon 100 est déplacé par rapport à la ligne à retard 4 afin de

15 faire varier le chemin optique du faisceau pompe  $f_p$ , par exemple grâce à un porte-échantillon sur lequel l'échantillon est disposé.

La détection du signal de focalisation se fait avantageusement, comme décrit plus haut, par la corrélation croisée entre le faisceau pompe réfléchi  $f_r$  par l'échantillon 100 et retardé par la ligne à retard 4, et le faisceau sonde de référence  $f_{ref}$ , non réfléchi par

20 l'échantillon 100.

Lors d'une étape 16, la ligne à retard 4 est remplacée au zéro de référence, qui correspond à la longueur de référence  $d_1$  du chemin optique.

Lors d'une étape 17, on réajuste la focalisation en déplaçant l'optique de focalisation 5 d'une valeur  $d_2-d_1$ , de sorte que l'optique de focalisation soit à nouveau

25 correctement focalisée sur le nouvel échantillon à analyser 100.

La focalisation peut être réajustée en déplaçant l'optique de focalisation 5 par rapport à l'échantillon 100 de la valeur  $d_2-d_1$ . Dans une variante, la focalisation est réajustée en déplaçant l'échantillon 100 par rapport à l'optique de focalisation 5, par exemple en déplaçant le porte-échantillon sur lequel l'échantillon est disposé, l'optique de

30 focalisation 5 restant fixe.

Dans le cas où le montage optique est configuré pour que le faisceau pompe  $f_p$  passe à plusieurs reprises par la ligne à retard 4, la valeur de réajustement de la focalisation dépend du nombre de passages aller et retour.

L'analyse de l'échantillon 100 peut ensuite débiter à l'étape 18.

5 La figure 4 représente des chronogrammes de signaux obtenus en appliquant le procédé selon l'invention.

Le chronogramme 4(a) représente un exemple de signaux de focalisation obtenus par corrélation croisée entre le faisceau pompe réfléchi  $f_r$  par l'échantillon 100 et retardé par la ligne à retard 4, et un faisceau sonde de référence  $f_{ref}$ , non réfléchi par  
10 l'échantillon 100. Le chronogramme 4(b) représente une courbe lissée passant par les valeurs mesurées.

Les chronogrammes 4(c) et 4(d) représentent différents recouvrements selon le déplacement de la ligne à retard 4.

Un kit comprenant le dispositif de re-focalisation selon l'invention et un  
15 échantillon de référence pour la détermination préalable des conditions de référence peut être proposé.

L'expression « comportant un » doit être comprise comme signifiant « comportant au moins un », sauf si le contraire est spécifié.

## REVENDICATIONS

1. Procédé de re-focalisation d'un montage optique d'analyse d'un échantillon (100), utilisant un faisceau sonde ( $f_s$ ) et un faisceau pompe ( $f_p$ ) provenant d'au moins une source optique (2) à impulsions courtes, comportant au moins une ligne à retard (4) placée sur le trajet de l'un des faisceaux et au moins une optique de focalisation (2) des faisceaux pompe ( $f_p$ ) et sonde ( $f_s$ ) sur l'échantillon (100) à analyser, la re-focalisation étant opérée après connaissance de conditions de référence ( $d_1$ ) pour lesquelles le montage optique est considéré comme étant focalisé, procédé dans lequel :
- 5
- 10
- on détecte un signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre un faisceau réfléchi ( $f_r$ ) par l'échantillon (100), retardé par la ligne à retard (4), et un faisceau de référence non réfléchi ( $f_{ref}$ ) par l'échantillon (100) et issu de la ou de l'une des sources (2),
  - on fait varier, à partir desdites conditions de référence, le chemin optique du faisceau sur lequel est placée la ligne à retard (4) de façon à amener ledit signal de focalisation à atteindre ou dépasser un seuil prédéfini, et
  - on réajuste la focalisation à partir de la connaissance de la variation de chemin optique entre les conditions de référence ( $d_1$ ) et les conditions ( $d_2$ ) pour lesquelles le signal de focalisation atteint ou dépasse ledit seuil prédéfini.
- 15
- 20
2. Procédé selon la revendication 1, dans lequel on fait varier le chemin optique du faisceau ( $f_p$ ) sur lequel est placée la ligne à retard (4) en déplaçant la ligne à retard par rapport à l'échantillon (100), ou en déplaçant l'échantillon par rapport à la ligne à retard, notamment grâce à un porte-échantillon mobile sur lequel l'échantillon est disposé.
- 25
3. Procédé selon la revendication 1 ou 2, dans lequel ledit seuil prédéfini est égal à zéro.
4. Procédé selon la revendication 1 ou 2, dans lequel ledit seuil prédéfini est strictement supérieur à zéro.
5. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel
- 30
- on détecte le signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions à partir de la corrélation croisée entre un faisceau réfléchi ( $f_r$ ) par l'échantillon

(100), retardé par la ligne à retard (4), et un faisceau de référence ( $f_{ref}$ ) non réfléchi par l'échantillon (100) et issu de la ou de l'une des sources (2).

5 6. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel le montage optique d'analyse comporte une unique source optique (2) et un élément  
séparateur (3) pour séparer le faisceau ( $f_i$ ) provenant de ladite source optique afin de créer  
les faisceaux pompe ( $f_p$ ) et sonde ( $f_s$ ).

7. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel le  
montage optique d'analyse comporte deux sources optiques émettant respectivement les  
faisceaux pompe ( $f_p$ ) et sonde ( $f_s$ ).

10 8. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel  
la ligne à retard (4) est placée sur le trajet du faisceau pompe ( $f_p$ ).

9. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel  
le faisceau de référence non réfléchi ( $f_{ref}$ ) par l'échantillon (100) est le faisceau pompe ( $f_p$ )  
non retardé par la ligne à retard (4), ou le faisceau sonde ( $f_s$ ) ou, dans le cas où le montage  
15 optique d'analyse comporte une seule source (2) et un élément séparateur (3), un faisceau  
( $f_i$ ) issu de la source optique capturé avant ledit élément séparateur.

10. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans  
lequel on réajuste la focalisation en déplaçant la ou les optiques de focalisation (5) par  
rapport à l'échantillon (100), ou en déplaçant l'échantillon par rapport à la ou aux optiques  
20 de focalisation, notamment grâce à un porte-échantillon mobile sur lequel l'échantillon  
(100) est disposé.

11. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans  
lequel les conditions de référence correspondent à un état dans lequel la ou les optiques de  
focalisation (5) sont considérées comme étant focalisées sur un échantillon de référence,  
25 une longueur de référence ( $d_1$ ) du chemin optique entre la ligne à retard (4) et l'échantillon  
étant déterminée à partir dudit état de focalisation.

12. Procédé selon la revendication précédente, dans lequel la  
détermination préalable de la longueur de référence ( $d_1$ ) est réalisée avec un échantillon de  
référence autre que celui à analyser, ou avec l'échantillon à analyser (100) mais à un  
30 endroit de référence autre que l'endroit de l'échantillon devant être analysé.

13. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel on détermine la longueur ( $d_2$ ) du chemin optique entre la ligne à retard (4) et l'échantillon (100) pour laquelle le signal de focalisation atteint ledit seuil prédéfini.

14. Procédé selon les deux revendications immédiatement précédentes, dans lequel on réajuste la focalisation d'une valeur dépendant de la différence entre ladite longueur ( $d_2$ ) et ladite longueur de référence ( $d_1$ ) de sorte que la ou les optiques de focalisation (5) soient focalisées sur l'échantillon à analyser.

15. Dispositif de re-focalisation (1) destiné à la mise en œuvre du procédé de focalisation d'un montage optique d'analyse d'un échantillon (100) selon l'une quelconque des revendications précédentes, ledit montage optique d'analyse utilisant un faisceau sonde ( $f_s$ ) et un faisceau pompe ( $f_p$ ) provenant d'au moins une source optique (2) à impulsions courtes, comportant au moins une ligne à retard (4) placée sur le trajet de l'un des faisceaux et au moins une optique de focalisation (5) des faisceaux sur l'échantillon à analyser (100),

le dispositif comportant un moyen (7) de détection d'un signal de focalisation représentatif d'un recouvrement temporel des impulsions entre un faisceau réfléchi ( $f_r$ ) par l'échantillon (100), retardé par la ligne à retard (4), et un faisceau de référence ( $f_{ref}$ ) non réfléchi par l'échantillon (100) et issu de la ou de l'une des sources (2),

le dispositif étant configuré pour :

- faire varier, à partir de conditions de référence pour lesquelles le montage optique était considéré comme étant focalisé, le chemin optique du faisceau ( $f_p$ ) sur lequel est placée la ligne à retard (4) de façon à amener ledit signal de focalisation à atteindre ou dépasser un seuil prédéfini, et

- réajuster la focalisation à partir de la connaissance de la variation de chemin optique entre lesdites conditions de référence et celles pour lesquelles le signal de focalisation atteint ledit seuil prédéfini.

16. Dispositif selon la revendication précédente, dans lequel le moyen (7) de détection dudit signal de focalisation comporte un cristal non linéaire ou une photodiode à deux photons.

17. Dispositif selon l'une quelconque des deux revendications immédiatement précédentes, dans lequel ladite au moins une source optique (2) est un laser à impulsions courtes, notamment comprises entre 10 fs et 10 ps.

18. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 15 à 17, dans lequel la ligne à retard optique (4) comporte un miroir et/ou un ou plusieurs prismes à réflexion totale et/ou un rétro-rélecteur et/ou un modulateur électro-optique, notamment portés par un chariot mobile.

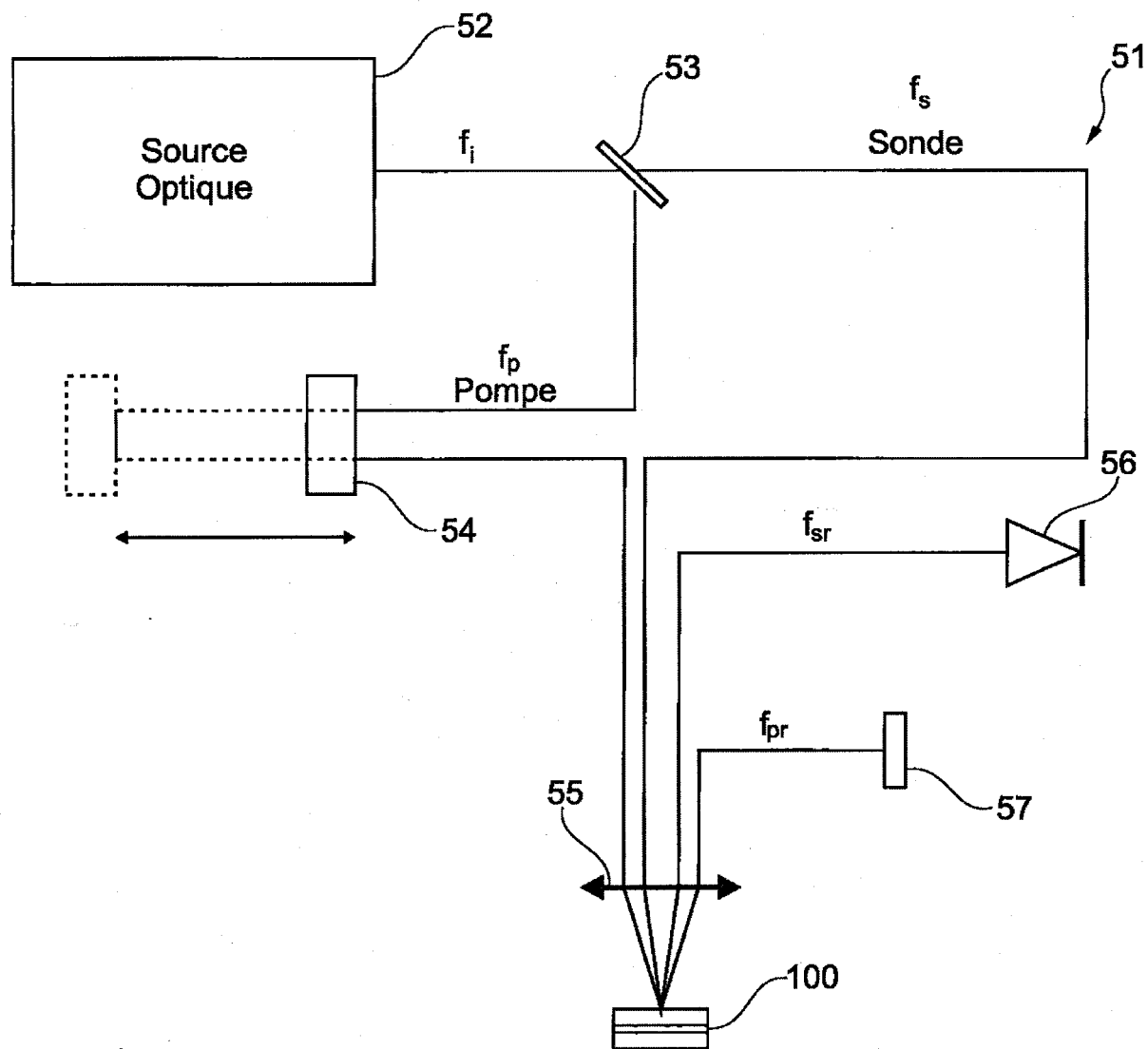
5 19. Ensemble destiné à la mise en œuvre du procédé de re-focalisation d'un montage optique d'analyse d'un échantillon (100) selon l'une quelconque des revendications 1 à 14, comprenant :

- le dispositif de re-focalisation (1) selon l'une quelconque des revendications 15 à 18, comportant au moins une ligne à retard (4) et au moins une optique de focalisation  
10 (5) de faisceaux sur l'échantillon à analyser (100), et

- un échantillon de référence pour la détermination préalable desdites conditions de référence pour lesquelles le montage optique est considéré comme étant focalisé sur ledit échantillon de référence.

15 20. Ensemble selon la revendication précédente, dans lequel l'échantillon de référence comporte une couche métallique, en aluminium notamment, et au moins une couche en un autre matériau, notamment du silicium ou du verre, et est observé sous incidence normale pour la détermination préalable desdites conditions de référence.

1/4



**Fig. 1**  
Etat de la Technique

2/4

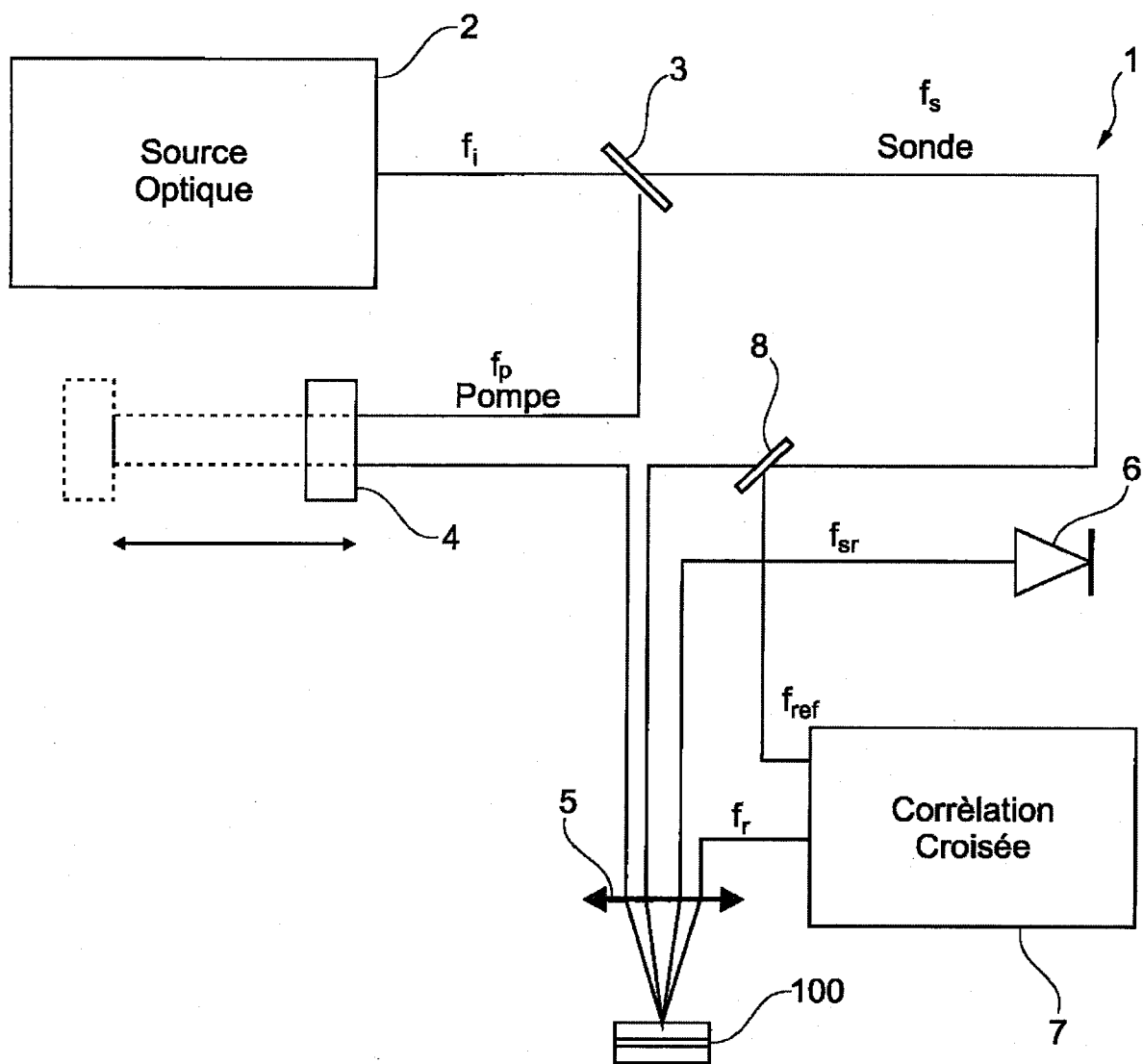


Fig. 2

3/4

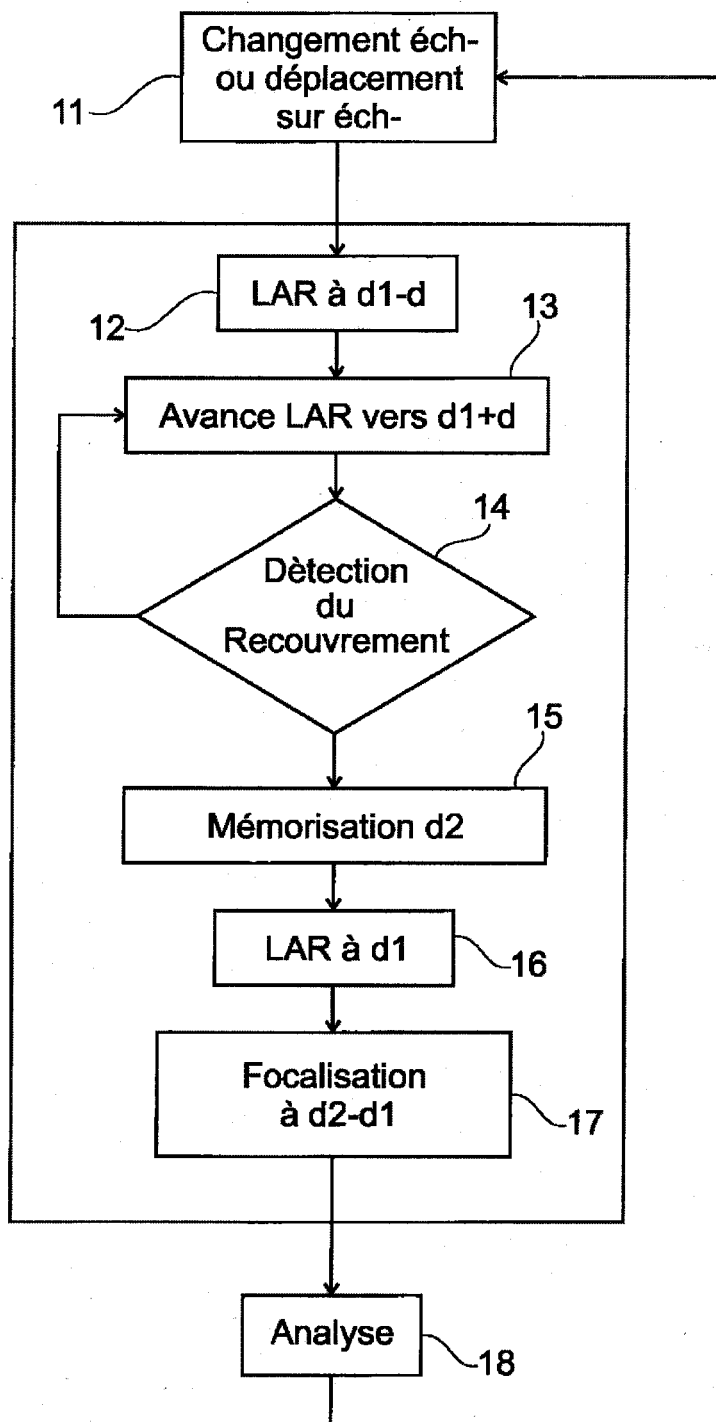


Fig. 3

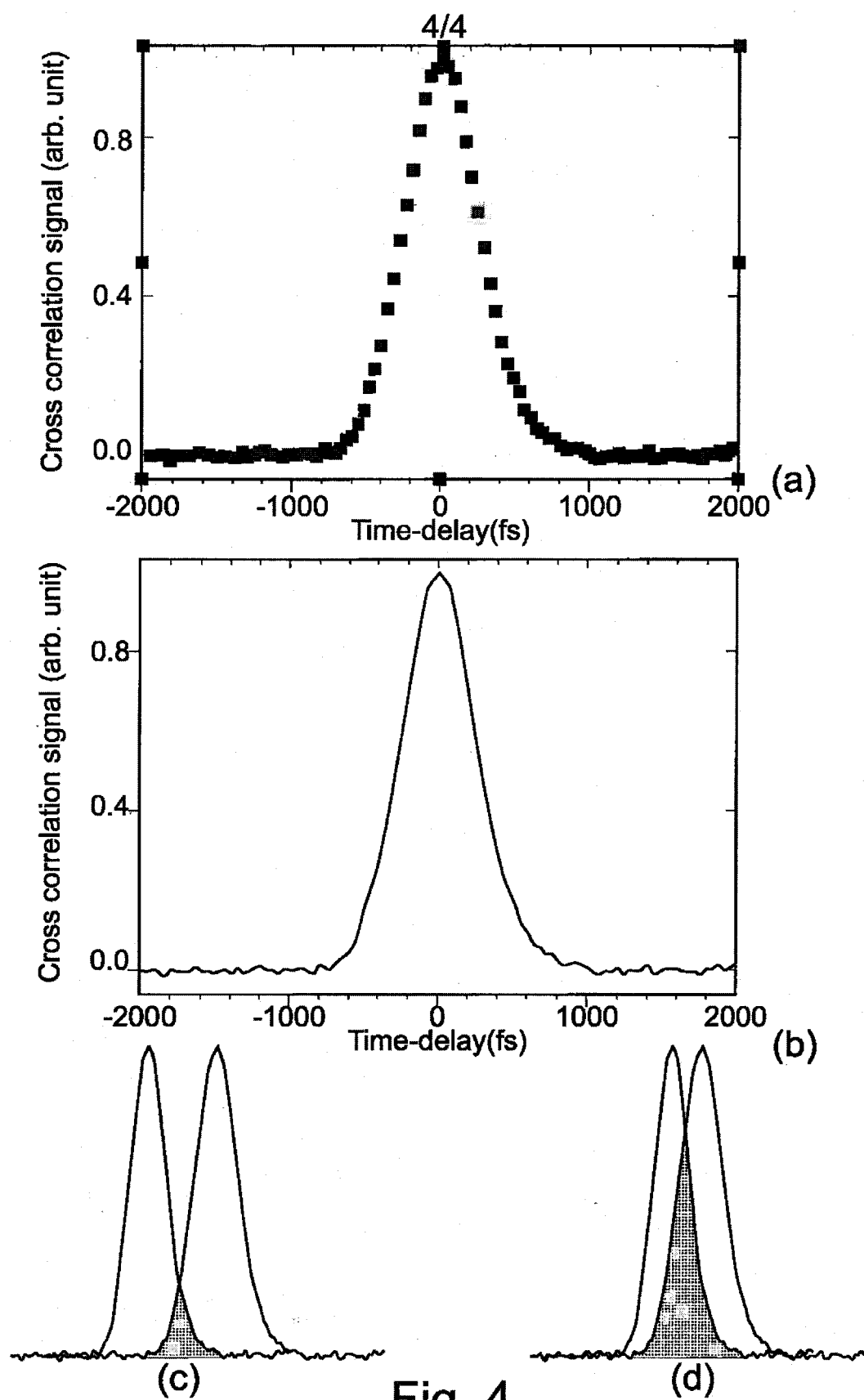


Fig. 4



**RAPPORT DE RECHERCHE  
PRÉLIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement  
national

FA 808833  
FR 1463250

| DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS                 |  | Revendication(s)<br>concernée(s)                         | Classement attribué<br>à l'invention par l'INPI |
|---|--|--|---|
| Catégorie   | Citation du document avec indication, en cas de besoin,<br>des parties pertinentes   |  |   |
| X   | FR 2 887 334 A1 (CENTRE NAT RECH SCIENT<br>[FR]) 22 décembre 2006 (2006-12-22)   | 15-20  | G02B7/28  |
| A   | * abrégé; figure 6 *<br>* page 4 - page 5 *  | 1-14   | G02B27/40<br>G01N21/01                          |
| A   | -----<br>US 2005/036136 A1 (OPSAL JON [US] ET AL)<br>17 février 2005 (2005-02-17)  | 1-20   |   |
|   | * abrégé; figure 4 *<br>* alinéa [0009] - alinéa [0011] *  |  |   |
| A   | -----<br>FR 3 001 544 A1 (COMMISSARIAT ENERGIE<br>ATOMIQUE [FR]) 1 août 2014 (2014-08-01)  | 1-20   |   |
|   | * abrégé; figure 1 *<br>* page 2 - page 3 *  |  |   |
| A   | -----<br>WO 2005/124423 A1 (KONINKL PHILIPS<br>ELECTRONICS NV [NL]; VAN BEEK MICHAEL<br>CORNELIS [DE]; L)<br>29 décembre 2005 (2005-12-29) | 1-20   |   |
|   | * abrégé; figure 4 *<br>* page 4 - page 12 *   |  |   |
|   | -----  |  |   |
|   |  |  | DOMAINES TECHNIQUES<br>RECHERCHÉS (IPC)         |
|   |  |  | G01J<br>G01N<br>G02B                            |
| Date d'achèvement de la recherche                     |  | Examineur  |   |
| 16 octobre 2015                                       |  | Jakober, François  |   |
| CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS                         |  | T : théorie ou principe à la base de l'invention         |   |
| X : particulièrement pertinent à lui seul             |  | E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure |   |
| Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un |  | à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date |   |
| autre document de la même catégorie                   |  | de dépôt ou qu'à une date postérieure.                   |   |
| A : arrière-plan technologique                        |  | D : cité dans la demande                                 |   |
| O : divulgation non-écrite                            |  | L : cité pour d'autres raisons                           |   |
| P : document intercalaire                             |  | .....  |   |
|   |  | & : membre de la même famille, document correspondant    |   |

1

EPO FORM 1503 12.99 (P04C14)

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE  
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 1463250 FA 808833**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.

Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du **16-10-2015**

Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

| Document brevet cité<br>au rapport de recherche |    | Date de<br>publication | Membre(s) de la<br>famille de brevet(s) | Date de<br>publication |
|---|----|------------------------|---|------------------------|
| FR 2887334                                      | A1 | 22-12-2006             | EP 1893976 A1                           | 05-03-2008             |
|   |    |                        | FR 2887334 A1                           | 22-12-2006             |
|   |    |                        | JP 4991708 B2                           | 01-08-2012             |
|   |    |                        | JP 2008544269 A                         | 04-12-2008             |
|   |    |                        | US 2008315131 A1                        | 25-12-2008             |
|   |    |                        | WO 2006136690 A1                        | 28-12-2006             |
| -----   |    |                        |   |                        |
| US 2005036136                                   | A1 | 17-02-2005             | AUCUN                                   |                        |
| -----   |    |                        |   |                        |
| FR 3001544                                      | A1 | 01-08-2014             | CA 2898641 A1                           | 07-08-2014             |
|   |    |                        | FR 3001544 A1                           | 01-08-2014             |
|   |    |                        | WO 2014118263 A1                        | 07-08-2014             |
| -----   |    |                        |   |                        |
| WO 2005124423                                   | A1 | 29-12-2005             | AT 479918 T                             | 15-09-2010             |
|   |    |                        | CN 1969215 A                            | 23-05-2007             |
|   |    |                        | EP 1761816 A1                           | 14-03-2007             |
|   |    |                        | JP 5047788 B2                           | 10-10-2012             |
|   |    |                        | JP 2008502898 A                         | 31-01-2008             |
|   |    |                        | US 2007252984 A1                        | 01-11-2007             |
|   |    |                        | WO 2005124423 A1                        | 29-12-2005             |
| -----   |    |                        |   |                        |