

Génération et détection par impulsion optique femtoseconde de phonons acoustiques cohérents dans le semi-conducteur piézo-électrique d'arséniure de gallium

Philippe Marc Alain Babilotte

▶ **To cite this version:**

Philippe Marc Alain Babilotte. Génération et détection par impulsion optique femtoseconde de phonons acoustiques cohérents dans le semi-conducteur piézo-électrique d'arséniure de gallium. Matière Condensée [cond-mat]. Université du Maine, 2010. Français. NNT : . tel-00536049

HAL Id: tel-00536049

https://theses.hal.science/tel-00536049

Submitted on 15 Nov 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.







Version corrigée du 29/10/2010

Académie de Nantes

Ecole Doctorale Matière, Molécules et Matériaux en Pays de la Loire

Le Mans, France

THESE DE DOCTORAT

SPECIALITE : PHYSIQUE

présentée par Philippe BABILOTTE

en vu de l'obtention du titre de Docteur de l'Université du Maine

Génération et détection par impulsion optique femtoseconde de phonons acoustiques cohérents dans le semi-conducteur piézo-électrique d'arséniure de gallium

Préparée au sein du *Laboratoire de Physique de l'Etat Condensé*

LPEC/UMR 6087/CNRS/Université du Maine

Soutenue le 14 Janvier 2010, devant le Jury composé de

Arnaud DEVOS	**Chargé de Recherche au CNRS, IEMN, UMR 8520**	***Rapporteur***
Natalia DEL FATTI	**Professeur des Universités, Membre Junior IUF, LASIM, UMR 5579, Université Claude Bernard Lyon I**	***Rapporteur***
Bernard CASTAGNEDE	**Professeur des Universités, LAUM, UMR 6613, Université du Maine**	***Président du Jury, Examinateur***
Emmanuel PERONNE	**Chargé de Recherche au CNRS, INSP, UMR 7588, Université Pierre et Marie Curie**	***Examinateur***
Vitalyi E. GUSEV	**Professeur des Universités, Membre Senior IUF, LPEC, UMR 6087, Université du Maine**	***Directeur de thèse***
Pascal RUELLO	**Professeur des Universités, LPEC, UMR 6087, Université du Maine**	***Directeur de thèse***

A ma famille,

A tous ceux que j'aime,

A toutes les rencontres humaines heureuses, constructives, et inattendues que ce travail de thèse m'a permis d'avoir eues. Tout autant que le primordial aspect scientifique, elles sont parmi les plus beaux achèvements de ce travail de recherche.

Table des matières

Remerciements **18**

Introduction **20**

1 Descriptions des phénomènes photo-induits dans les semiconducteurs **23**

1.1 Description du champ de déformation acoustique photo-induit : description globale 27

1.1.1 Effet macroscopique de l'irradiation laser de pompe 27

1.2 Effet thermo-élastique dans les semi-conducteurs : origine microscopique (Pression phononique) 29

1.2.1 Production de phonons incohérents et thermalisation électron-phonon de l'électron photo-induit 29

1.2.2 Description thermodynamique et microscopique de la contrainte thermoélastique 31

1.2.3 Volume d'interaction, profondeur caractéristique de dépôt d'énergie et durée d'impulsion acoustique 35

1.2.4 Energie déposée et élévation de température 36

1.2.5 Température du réseau cristallin (Modèle photothermique) 39

1.3 Déformation de potentiel (Pression électronique) 40

1.3.1 Description du phénomène 40

1.3.2 Expression mathématique 40

1.3.3 Ratio σ_{eh} / σ_{th} en zone de Brillouin centrale en fonction de différents paramètres 43

1.3.4 Dynamique des porteurs de charges 44

1.4 Contrainte piézo-électrique 47

1.4.1 Définition de la contrainte 47

1.4.2 Réduction du tenseur piézo-inverse par utilisation de la classe de symétrie -43m 48

1.4.3 Situation physique en l'absence de champs électriques imposés artificiellement au système . . . 50
1.4.4 Situation physique considérée en présence d'un champ électrique appliqué externe imposé au système . . . 52
1.4.5 Situation physique considérée en l'absence de champ électrique appliqué externe au système, dans la direction cristallographique < 111 > . . . 53
1.5 Contrainte d'électrostriction . . . 55
1.6 Spectre des phonons acoustiques photo-excités dans le cas d'un mécanisme de déformation de potentiel prédominant, avec recombinaison volumique du plasma . . . 57
1.6.1 Expression du spectre de déformation acoustique . . . 57
1.6.2 Cas d'un temps de recombinaison dans le plasma électron-trou (τ_R) variant . . . 63
1.6.3 Impact d'une variation de diffusion ambipolaire (D_{eh}) sur le spectre de phonons acoustiques photo-généré . . . 64
1.7 Processus de détection . . . 64
1.7.1 Notion de coefficient photo-élastique . . . 64
1.7.2 Lien entre variation de permittivité diélectrique et processus de détection . . . 65
1.7.3 Solution générale du signal de réflectivité transitoire détecté . . . 66
1.7.4 Phénomène de détection : approximations selon la prédominance de k_2'' ou de k_2' . . . 72
1.7.5 Seconde approche de la diffusion Brillouin : approche interférométrique . . . 75

2 Techniques optiques expérimentales ultrarapides 78
2.1 Eléments du montage optique . . . 78
2.1.1 Laser continu de pompage VERDI . . . 80
2.1.2 Source laser femtoseconde . . . 80
2.1.3 Lame demi onde $\lambda/2$ . . . 81
2.1.4 Premier télescope . . . 82
2.1.5 Cube séparateur polarisant (*Polarised Beam Splitter : PBS*) . . . 82
2.1.6 Cellule acousto-optique (Modulateur Opto-Acoustique : MOA) . . . 82
2.1.7 Second télescope . . . 83
2.1.8 Rôle de la ligne à retard . . . 84

2.1.9 Spectromètre 84
2.1.10 Objectif de microscope 85
2.1.11 Photodiode à silicium 86
2.2 Processus de mesure par utilisation d'une détection synchrone 86
2.2.1 Nécessité de la modulation/démodulation 86
2.2.2 Principe de la démodulation synchrone 87
2.2.3 Principe de la détection synchrone 88

3 Influence des propriétés du plasma électron-trou sur le spectre des phonons acoustiques cohérents 90
3.1 Génération d'ondes acoustiques par la contrainte de déformation de potentiel dans le GaAs 92
3.1.1 Résultats expérimentaux 93
3.1.2 Discussion et analyse 96
3.2 Dynamique du plasma électron-trou et génération de phonons acoustiques hautes fréquences 104
3.2.1 Systèmes étudiés 105
3.2.2 Conditions expérimentales 107
3.2.3 Signaux expérimentaux relatifs au système ZnO/GaAs et au système $SiO_2/GaAs$ 107
3.2.4 Analyse et discussion 116
3.2.5 Simulation de signaux en configuration pompe et sonde rouge . . . 120
3.2.6 Simulation de signaux en configuration pompe rouge et sonde bleue 122
3.2.7 Simulation du signal interférométrique pur en fonction de l'épaisseur de ZnO déposé sur le substrat de GaAs [100] dopé de type n 126
3.2.8 Simulations montrant le rôle du front d'onde montant 127
3.2.9 Rôle clé de la sensibilité de la détection 129
3.3 Bilan du chapitre 133

4 Photo-génération de phonons acoustiques par effet piézo-inverse 135
4.1 Introduction au phénomène de piézo-photo-génération 136
4.2 Méthodologie utilisée dans le cadre de cette étude 137
4.3 Systèmes étudiés : caractéristiques et typologie 137
4.4 Résultats expérimentaux 139
4.4.1 Cas du GaAs [111] non dopé ; existence d'une non linéarité 141

4.4.2 Effet du dopage et de la face présentée au flux laser sur le phénomène de non linéarité constaté en basse fluence de pompe bleu sur GaAs [111] non dopé . . . 141
4.4.3 Signaux expérimentaux obtenus pour le GaAs [111] dopé de type p, en présence d'une couche de ZnO déposé, en pompe bleu et sonde rouge . . . 142
4.4.4 Signaux obtenus pour des échantillons de GaAs [111] dopé tellure . 143
4.4.5 Signaux relatifs au GaAs (411) non dopé, en pompe bleu et sonde rouge . . . 145
4.5 Premiers éléments de discussion . . . 147
4.6 Evaluation numérique de quelques grandeurs caractéristiques . . . 148
4.6.1 Valeur du champ électrique au point de raccord . . . 148
4.6.2 Estimation de la valeur du champ de Dember E_D . . . 150
4.7 Caractéristiques de la région où se situe le phénomène de piézo-génération 152
4.7.1 Description de la zone de déplétion . . . 152
4.8 Analyse et discussion théorique . . . 153
4.8.1 Expression du déplacement longitudinal $u(z,t)$ . . . 153
4.8.2 Spectre des phonons et contribution du champ de Dember . . . 155
4.8.3 Expression de la fonction de distribution de plasma $\hat{N}'(\omega,p)$ . . . 157
4.8.4 Calcul de la différence normalisée des valeurs des densités de plasma pris aux pôles $+p$ et $-p$ . . . 159
4.8.5 Calcul de la somme normalisée des valeurs des densités de plasma pris aux pôles $+p$ et $-p$ . . . 159
4.8.6 Rapport des champs de déformation $\tilde{\eta}_{eh}$ et $\tilde{\eta}_D$ . . . 159
4.8.7 Hypothèses supplémentaires de simplification de l'expression du rapport $\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D}$ et valeur numérique de ce rapport . . . 161
4.8.8 Bilan relatif à l'expression du rapport en norme de η_{eh} sur η_D ; constatations . . . 163
4.8.9 Spectre des phonons acoustiques dans le cas du champ E_{bif} dominant 164
4.8.10 Distribution en densité des électrons et des trous . . . 170
4.8.11 Distribution spatiale de densité des électrons et des trous en fonction de la profondeur dans le matériau . . . 171
4.8.12 Expression du champ écrantant de polarisation $E'(z,t)$ . . . 172
4.8.13 Expression du champ de déformation $\tilde{\eta}_{ec}$ . . . 173
4.8.14 Comparaison en normes des contributions $\tilde{\eta}_{ec}$ et $\tilde{\eta}_D$ . . . 174
4.9 Bilan du chapitre . . . 176

5 Conclusion générale et perspectives **177**

6 Annexes **180**

6.1 Définitions analogues du coefficient photo élastique 180

6.2 Temps caractéristiques de relaxation 180

6.3 Transformation de repère par rotation des axes cristallographiques principaux 181

6.4 Conditions de verrouillages de mode du MIRA 900 183

6.4.1 Condition de phase des ondes 183

6.4.2 Sélection des modes cavités 183

6.4.3 Ecart temporel et largeur à mi-hauteur des pulses 184

6.4.4 Avantages des cavités titane saphir : le *self mode locking* 185

6.5 Caractéristiques physiques et toxicologiques du GaAs 186

Bibliographie **197**

Table des figures

1.1 Photophone radiatif de Bell (Octobre 1880) : modulation du signal optique par le personnage en A et détection acoustique par le personnage en B : illustration historique tirée de [37] 24
1.2 Cornet de détection des sons émis par le cristal photo actif : illustration historique tirée de [37] ; cornet contenant le miroir parabolique de focalisation sur le cristal de sélénium contenu dans une armature de support conductrice en platine 24
1.3 Esquisse de Bell et Sumner daté de 1880 ; miroir de réception parabolique et support en platine 25
1.4 Spectrophone présenté le 16 Avril 1881 à la Société de Physique de Washington par Graham Bell et Sumner Tainter ; illustration historique tirée de [37] 25
1.5 Situation macroscopique du matériau à l'équilibre avant l'irradiation laser ; volume d'interaction V_0 ; sites e^- et h^+ au repos dans la maille cristalline . 27
1.6 Déplacements électroniques locaux dans le volume d'interaction macroscopique V_0 défini par le pointillé rouge 28
1.7 Apparition d'une contraction au niveau macroscopique et d'une force volumique, dûe à l'apparition d'un gradient de contraintes. Distortion géométrique de surface 28

1.8 Schéma de bandes typique d'un semi conducteur et d'un métal ; diagrammes de niveau d'énergie E(k) avec présentation des bandes de conduction (BC) et de valence (BV). Un diagramme plus précis montrerait plusieurs branches s d'énergie dans la bande de conduction. La flèche verte correspond à la recombinaison radiative lente (1 ns à 1 μs, sauf pour certains matériaux : LT-GaAs par exemple) et émission de photon $h\nu_{em}$ (ν_{em} est la fréquence du photon émis). Les sauts d'énergie lors de la thermalisation par collision $e^-|e^-$ et $e^-|ph$ vers le fond des vallées sont quantifiés (*flèches courbes rouges*). Existence d'une densité de porteurs de charge dans le fond de la bande de conduction en état métastable [51] : zone bleue *en bas de bande de conduction* sur la figure décrivant les semi-conducteurs 30

1.9 Cristal semi-infini excité par une impulsion laser. Description du volume d'interaction V_0 déterminé par la taille Φ du spot irradiant et la profondeur de pénétration optique ξ. 35

1.10 Création d'une impulsion acoustique bipolaire cohérente suite à l'irradiation laser (d'énergie E_L ; de temps à mi-hauteur τ_L)), considérant un coefficient d'expansion linéaire thermique β >0. Effet photothermique. Absorption. Chauffage ultrarapide 37

1.11 Tableau de comparaison des propriétés physiques d'un métal type (Al) et de GaAs et calculs de l'élévation de température ΔT typique. Les valeurs ne prennent pas en compte la diffusion de la chaleur [47] [48]. Ces élévations de températures sont celles correspondantes à un instant $\tau \approx 1ps$ après que le nuage électronique a relaxé. Des coefficients de réflexion ont été pris en compte pour le calcul de ΔT. 39

1.12 Utilisation du modèle des orbitales moléculaires pour illustrer la contrainte de déformation de potentiel, les points rouges symbolisent des électrons situés dans les différentes orbitales. Selon que l'électron est promu en orbitale donnant une combinaison liante avec une autre orbitale (***schématisation du bas***) ou donnant une combinaison antiliante avec une seconde orbitale (***schéma du milieu***), la liaison, donc la structure sera déstabilisée (dilatation) ou confortée (contraction -recouvrement de lobes positifs grisés- et raccourcissement de la longueur inter-atomique 41

1.13 Diagrammes E(k) d'un semi-conducteur à gap direct avec présentation des bandes de conduction (BC) et de valence (BV) et d'un niveau d'énergie décrit par (k, s) (il en existe de multiples). $\Delta E > E_g$ correspond à une irradiation au dessus de la valeur de l'énergie de gap E_g. 42

1.14 Diagramme de bande de GaAs tiré de [41] ; diagramme $E(k)$ montrant l'existence de 3 vallées (L, Γ et X) pour la bande de conduction. Les propriétés optiques de GaAs varient fortement avec la longueur d'onde (donc de l'énergie E) de la radiation excitatrice. On a ici le gap direct E_Γ, et les deux autres transitions entre la bande de valence (VB) et les différentes vallées de la bande de conduction (CB), [41] 44
1.15 Diffusion et impact de la diffusion sur le profil du champ de déformation photo-induit ; profondeur de pénétration à $t = 0$ ps ; asymptote horizontale 45
1.16 Unité cubique élémentaire de GaAs de volume A^3 quatre fois plus grand que la maille primitive cubique usuelle tiré de [41] ; structure de type *cubique sphalérite* ou *zinc blende* ; composition par deux sous réseaux cubiques faces centrés (CFC) décalés l'un par rapport à l'autre d'une distance valant la moitié de la diagonale d'un des cubes CFC ; paramètre de maille : $0,565nm$ 49
1.17 Situation physique avec faisceaux de pompe et de sonde ; orientation du champ E interne à l'échantillon 50
1.18 Description géométrique de l'échantillon ; description du repère cristallographique ; axes du repère 50
1.19 Simulation du spectre de l'amplitude du champ de déformation ; impact de différentes variations de propriétés du plasma électron-trous sur l'amplitude du spectre de déformation photo-induit ; impact du changement de coefficient α et du temps de recombinaison τ_R, à valeur de D_{eh} fixée ($D_{eh}^L \approx D_{eh}^\Gamma$ considérée alors) ; simulation basée sur la formule **(1.125)** . . . 64
1.20 Effet de la valeur du coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} sur le spectre des phonons acoustiques photo-induits simulé 65
1.21 Situation physique considérée : substrat avec film mince (d'épaisseur d) déposé en surface 66
1.22 Situation substrat environné d'air, sans aucune couche de dépôt en surface du substrat. Cas du substrat non recouvert 68
1.23 Propagation des ondes acoustiques créées à l'interface air / GaAs ; z = 0 correspond à l'interface air/GaAs. L'axe z est pris positif vers la profondeur du substrat GaAs 70
1.24 Vecteurs d'ondes optiques et acoustique ; sommation et conservation des moments ; variation de la quantité de mouvement des photons par les phonons 75

1.25 Etude des oscillations Brillouin résolues en temps : interférence entre le faisceau de sonde réfléchi sur la surface de l'échantillon et le faisceau de sonde se réfléchissant sur la surface du front d'onde acoustique se propageant en volume 77

2.1 Montage optique expérimental mis en place, d'autres possibilités ont pu être utilisées et existent [68, 70] ; les deux premiers miroirs de renvoi permettent de reprendre l'alignement laser en sortie de cavité 79
2.2 Détail du laser de pompe VERDI V2. Pompage d'un cristal de YVO_4 par diode laser (noté "pump" sur ce schéma) via les 2 miroirs encadrant le cristal de YVO_4 (tiré de [69]) 80
2.3 Enregistrement d'un signal issu de la photodiode placé dans la cavité MIRA 900 ; τ_e est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser ; existence d'un élargissement électronique de la diode rapide intracavité. 81
2.4 Choix expérimentaux relatif au Modulateur Opto-Acoustique : tension d'amplitude à 5 V ; offset de 2,5 V ; fréquence choisie de 750 kHz ; fréquence support de la fonction carrée de 80 MHz. Il faut noter qu'en réalité, le signal n'est pas totalement carré, car le MOA a un temps de montée non immédiat dépendant par ailleurs de la focalisation dans la cellule de Bragg 83
2.5 Signaux de réflectivité transitoire ; Période d'oscillation de 355 fs ; Echantillon de Bi métallique. Observations de phonons optiques (oscillations). Echantillon fourni par Pr A.A. Kolomenskii (Université du Texas/TAMU) 85
2.6 Signaux de dérivée temporelle de réflectivité transitoire ; Période d'oscillation mesurable à 355 fs ; Echantillon de Bi métallique. Observations de phonons optiques (oscillations). Echantillon fourni par Pr A.A. Kolomenskii (Université du Texas/TAMU) 85
2.7 Domaine spectral : décalage spectral généré par multiplication à la porteuse sinusoidale 87

3.1 Echantillon de GaAs [100] à faible taux de dopage. Signal de réflectométrie transitoire en montage pompe sonde en fonction de l'énergie E du photon en configuration pompe sonde dégénérée ($\lambda_{pompe} = \lambda_{sonde}$) ; encart du haut présentant l'évolution de la valeur de $\frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}(E)$ en fonction de l'énergie E déposé par le faisceau laser et existence d'un point singulier pour la valeur d'énergie E_g ; conditions expérimentales : sonde fixée à 12 mW et pompe à 50 mW ; encart du bas : existence d'oscillations Brillouin même si $E < E_g$. 94

3.2 *Figure de gauche* : Amplitude Brillouin (normalisée à la profondeur de pénétration optique ξ et à la tension de diode mesurée) en fonction de l'énergie E en eV. *Figure de droite* : Courbe dérivée de la permittivité diélectrique $\varepsilon_1(E)$ par rapport à l'énergie du faisceau de pompe E ; visualisation après la singularité (en $E = E_g$) responsable du changement de signe de la réflectivité transitoire, d'un accroissement de la fonction **(a)** puis d'une redécroissance relative **(b)** de la dérivée 95

3.3 Procédure d'évaluation des déphasages expérimentaux $\delta\Phi_E(i)$ du maximum d'oscillation Brillouin repéré par l'indice (i), position du i^{eme} maximum d'oscillation choisi sur le relevé expérimental. T_E est la période d'oscillation Brillouin à l'énergie E du photon. Résultats expérimentaux : évolution de la phase en fonction de l'énergie du faisceau laser ; **(a)** GaAs [100] faiblement dopé (LD Cr) (*cercles creux*) et GaAs [100] dopé de type n+ (*cercles pleins*) ; **(b)** GaAs [100] dopé de type n+ (*triangles creux*) ; cas de 2 configurations différentes de pompe et de sonde 95

3.4 Variation de la longueur d'onde (de 800 nm à 860 nm) du faisceau de pompe ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de $180nm$; encart de gauche : existence d'oscillations Brillouin à 850 nm ; encart de droite : agrandissement de la zone 0 à 60 ps 96

3.5 Calculs théoriques sur l'amplitude $\eta(\omega)$ et sur la phase $\delta\phi_E = arg(\eta(\omega))$ en condition pompe et sonde rouge ; valeur du coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} à $3cm^2.s^{-1}$. La quasi absence de changement de phase calculé ($\approx 1°$) en configuration rouge-rouge montre que le saut de 180° mesuré expérimentalement est ***lié à un processus de détection*** 100

3.6 Diagramme présentant les valeurs des coefficients α et β en fonction de l'énergie E de l'impulsion laser ; tiré de [80], interface air/GaAs 101

3.7 Diagramme de bande de GaAs à 300 K, tiré de [41], cas dégénéré en rouge et situation de pompe bleu/sonde rouge. Energie et position des bandes en fonction du vecteur d'onde réduit q. 102

3.8 Calculs théoriques menés en utilisant la forme $\eta(\omega)$ et calcul de la phase $\delta\phi_E$. **1a** et **1b** : $D_{eh} \cong 3cm^2.s^{-1}$ en vallée Γ. **2a** et **2b** : $D_{eh} \cong 0,1cm^2.s^{-1}$ en vallée L. $E_{pompe} = 2 \times E_{sonde}$. Existence d'un saut de phase de 30° en situation **2b** 103

3.9 Tableau récapitulatif des échantillons étudiés et de leur caractéristiques . . 106

3.10 Diagramme en réflectivité X du système ZnO/GaAs LD Cr ; intensité en coup par seconde (cps) en fonction du nombre d'onde Q. Existence d'oscillations par rapport à la courbe moyenne 107
3.11 Gamme d'énergie des excitations lasers rouge et bleu ; valeurs des énergies de gap E_g(GaAs) et E_g(ZnO) [85] 108
3.12 Enregistrement entre 0 et 800 ps relatif à un échantillon de GaAs dopé de type n avec dépôt de ZnO ; pompe optique à 110 mW et sonde à 29 mW ; longueur d'onde utilisée : 790 nm 108
3.13 Pompe et sonde rouge à la longueur d'onde 737 nm ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm ; étude à différentes puissances de pompe optique à puissance de sonde fixée constante 109
3.14 Signaux de réflectivité transitoire en fonction du temps ; encart : agrandissement de la zone temporelle entre 16 et 44 ps (avec et sans soustraction de la ligne de base (dite courbe moyenne) ; pompe et sonde rouge à 737 nm pour les trois courbes ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm 110
3.15 Dérivée temporelle du signal expérimental de réflectivité transitoire relatif à un échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO ; pompe et sonde à 730 nm ; visualisation d'un front montant à $30ps$ 111
3.16 Comparaison entre un échantillon de GaAs dopé de type n avec et sans dépôt de ZnO ; visualisation de la singularité et absence de cette même singularité si la couche de ZnO est absente. Flèche montrant l'évolution de la singularité en fonction de la position de focalisation des faisceaux sur l'échantillon 112
3.17 Echantillon de GaAs dopé de type n avec dépot de ZnO de 180 nm obtenu par la méthode de déposition 1) ; courbes de réflectivité transitoire en pompe et sonde rouge et pompe rouge et sonde bleu pour ce même type d'échantillon. Illustration d'une excitation et d'une détection volumique dans le cas de l'utilisation de faisceaux rouges en pompe et en sonde ; détection sur les 15 premiers nanomètres en utilisant un faisceau de sonde bleu à 389 nm. 113
3.18 Echantillon (2) de GaAs dopé de type n avec dépôt de ZnO obtenu par la méthode de déposition 2) ; pompe rouge et sonde bleue 114

3.19 Echantillon de GaAs dopé de type n avec dépot de ZnO obtenu par la méthode de déposition 1) ; pompe rouge et sonde bleu ; différentes puissances d'excitation ; excitation à 800 nm et détection à 400 nm : on remarque la polarité négative de l'impulsion acoustique de $7ps$ en détectant à $400nm$. 114
3.20 Echantillon de GaAs $LD\ Cr$ avec dépot de ZnO obtenu par la méthode de déposition 2 ; signal expérimental obtenu en configuration de pompe rouge et de sonde bleu ; observation d'oscillations Brillouin dans le ZnO à environ 70 GHz (mode longitudinal L) 115
3.21 Echantillon de GaAs [100] avec un dépôt de 500 nm de SiO_2 ; visualisation de trois impulsions acoustiques pour une même fluence d'excitation à des temps différents ; pompe rouge (108,8 mW et 796 nm) et sonde bleu (11,5 mW et 398 nm) 116
3.22 Echantillon de GaAs [100] avec un dépôt de 200 nm de SiO_2 ; pompe rouge (puissance variable ; 795 nm)et sonde bleu (10 mW fixé ; 397 nm) 116
3.23 Impulsion acoustique générée et détectée dans un film métallique de nickel de 120nm d'épaisseur (d'après les travaux de [9]) 117
3.24 Récapitulatif des résultats expérimentaux en pompe rouge et sonde bleu, pour des échantillons de GaAs avec dépôts de SiO_2 et de ZnO. Visualisation de l'inversion de polarité des impulsions acoustiques détectées pour le GaAs avec dépôt de ZnO dopé n (courbes noire et rouge) 118
3.25 Simulation du champ de déformation acoustique dans l'échantillon GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm, à l'instant initial t = 0 ps ; profil fréquentiel brut (sans diffusion) ; longueur d'onde de pompe et de sonde à 730 nm 121
3.26 Simulation du signal de dérivée temporelle de la réflectivité transitoire $\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\Delta R}{R}(t)\right)$ en fonction du temps (courbe rouge) ; échantillon GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm ; détails de l'effet de marche à la date $t_1 = 30ps$ environ résultant de l'effet interférentiel (courbe noire) ; bruit dû à la discrétisation numérique 122
3.27 Extension spatiale et évolution temporelle de la déformation acoustique $\eta(z,t)$ pour le GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 280 nm . . 125

3.28 (a) : Simulation de la réflectivité transitoire et impact de la modification du coefficient photo-élastique du GaAs : $39 + 44,5i$ à 400 nm (3,1 eV ; simulation du haut) et $19,7 + 5,6i$ à 390 nm (3,18 eV ; simulation du bas) [83] ; coefficient photo-élastique du ZnO fixé à 1 ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n à dépôt de ZnO de 180 nm ; impact du changement de coefficient photo-élastique du GaAs sur la forme de courbe simulée. (b) : comparaison expérience/simulation 126

3.29 Contributions interférométriques "pures" pour deux épaisseurs de ZnO déposées différentes : 180 nm et 280 nm ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n+ ;effet interférométrique plus marquée en amplitude pour 280 nm que 180 nm d'épaisseur de ZnO déposé 127

3.30 Corrélation entre le rognage (empirique) du domaine du front de déformation acoustique $\eta(z, t = 0ps)$ à t = 0 ps et de contenu fréquentiel haute fréquence et la disparition progressive de la singularité du spectre temporel de réflectivité transitoire simulé ; colorations des simulations correspondantes d'un graphe à l'autre 128

3.31 Simulation de la partie réelle de la réflectivité transitoire ($\frac{\Delta R}{R} \propto 2 \times \Re e\left(\left\{\frac{\partial k_2'}{\partial \eta} + i\frac{\partial k_2''}{\partial \eta}\right\} \cdot \frac{1}{l_{pen}} \cdot \left\{1 - e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t} - i\omega_B t \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}\right\}\right)$) en fonction de deux types de coefficients photo-élastiques de GaAs : 1) correspondant à $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 19,7 + 5,6i \quad 390nm$ et 2) correspond à $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 39 + 44,5i \quad 400nm$ . . . 133

4.1 Situation générale et existence du phénomène de *pinning* ; cas d'un semiconducteur de type p ; description des champs électrique E_D et $E_{bif/P}$ . . . 138

4.2 **(a)** : Oscillations Brillouin mode longitudinal à 50 GHz ; échantillon de GaAs [111] non dopé ; pompe bleu (395 nm de puissance variant) et sonde rouge (790 nm et $\approx 7mW$) ; **(b)** : Pompe bleu et sonde rouge ; échantillon GaAs [111] non dopé et échantillon de GaAs [100] LD Cr à faible taux de dopage ; évolution de l'amplitude des oscillations Brillouin en fonction de la fluence du faisceau de pompe bleu ; normalisation de la pente de la droite relative au GaAs [100] LD Cr à la pente du domaine linéaire relative au GaAs [111] ; **(c)** : Oscillations Brillouin mode longitudinal à 50 GHz ; échantillon de GaAs [111] dopé Zn de type p ; pompe bleu (395 nm de puissance de $5\mu W$ à $2002\mu W$) et sonde rouge (790 nm et $\approx 7mW$ fixée) ; **(d)** : Comparatif de l'évolution des amplitudes des oscillations Brillouin en fonction de la fluence de pompe bleu utilisée. Pompe bleu ($395nm$)et sonde rouge ($790nm$) ; échantillon GaAs [111] non dopé ($10^{13}ent.cm^{-3}$) et GaAs [111] dopé Zn de type p ($10^{18}ent.cm^{-3}$). Visualisation d'un point de raccord 140

4.3 Echantillon de GaAs [111] dopé Zn de type p et GaAs [100] dopé de type n+. Etude de la réponse réflectométrique en fonction de la face exposée aux faisceaux laser de pompe bleu ($395nm$) et de sonde rouge ($790nm$) et en fonction de la fluence de pompe bleu. Effet de saturation pour les faces *dites* 1 et 2. Résultats bruts sans normalisation de pente pour le GaAs [100] dopé de type n+ 142

4.4 Comparatif entre GaAs [111] dopé Zn de type p (faces 1 et 2) et GaAs [111] dopé Zn de type p avec dépôt de ZnO (points noirs). Effet de saturation non visible dans le cas de l'échantillon de GaAs [111] dopé de type p *avec dépôt de ZnO* 143

4.5 Signaux de réflectivité transitoire ; échantillon de GaAs [111] Te P/P poli double face de type n ; pompe bleu (395 nm) et sonde rouge (790 nm et 7,5 mW environ) ; encart : conditionnement standardisé du wafer de GaAs [111] Te avant ouverture et identification normalisée des faces A et B . . . 144

4.6 Signaux de réflectivité transitoire ; échantillon de GaAs [111] Te P/P poli double face de type n ; pompe et sonde rouge (790 nm) ; sonde fixée à 7,5 mW environ ; encart : signaux présentés relatif à la face A et comparaison avec la face B du même échantillon dans les mêmes conditions expérimentales (pompe et sonde rouge) 145

4.7 Evolution des amplitudes des oscillations Brillouin en fonction de la fluence d'excitation optique du faisceau de pompe : pompe bleu ($395nm$) et sonde rouge (*790 nm* et environ *7 mW*) ; échantillon de GaAs (411) de type SI (*semi-insulating*) ; dérivée du signal du signal de réflectométrie transitoire présenté à droite. Existence d'une modulation 146
4.8 Non linéarité dans la zone de basse fluence et reprise d'un comportement linéaire au dessus d'un seuil de fluence pour le GaAs (411) non dopé (*semi-insulating*). Ondes de mode QT : visualisation de la saturation ; pas de reprise d'un comportement linéaire après la zone entre 0 et $10\mu J.cm^{-1}$. Visualisation d'un effet piézo-électrique pour des modes différents : QL et QT (modes Quasi-Longitudinaux et Quasi-Transverses) 146
4.9 Tableau : valeurs du champ de raccord $E_{raccord}$ obtenu par égalité (*hypothèse*) des régimes linéaire et non linéaire pour les différents échantillons . 151
4.10 Distribution de charge Q(z) en fonction de la profondeur z 152
4.11 Distribution linéaire du champ de reconstruction (*build in field*) ; modélisation de type linéaire 153
4.12 Champ électrique de Dember ; visualisation de la séparation des charges sous l'effet du laser de pompe ; cas où il existe un film déposé en surface du substrat de GaAs 154
4.13 Distribution linéaire du champ de reconstruction (*build in field*) et du champ de polarisation E'(z,t) écrantant 164
4.14 Longueurs caractéristiques prises en compte ; longueur de diffusion l_{dif} ; longueur où existe le champ E_{bif} noté l_{bif} et ξ profondeur de pénétration optique 166
4.15 Evolution dynamique avant création d'une densité assimilée comme constante entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$, ceci après diffusion 167
4.16 Modélisation linéaire du profil spatial de champ de reconstruction E_{bif} entre la surface et $z = l_{bif}$ 168
4.17 Approximation du champ de reconstruction E_{bif} 169
4.18 Distribution spatiale des électrons et des trous dans la tranche de profondeur entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$ 171
4.19 Champ électrique quasi-constant dans l'approximation $p_E \times l_{bif} >> 1$ . . . 173

6.1 Temps de relaxation caractéristiques en fonction de l'énergie ϵ(eV) ; données tirées de [42] 181
6.2 Description du changement de repère 181

6.3 Simulation sans fixation de phase relative entre modes q. Régime multimode à phase aléatoire (tiré de [115]) 184
6.4 Simulation avec fixation de phase relative entre modes q. Situation de verrouillage de modes (tiré de [115]) 185
6.5 Loi de distribution gaussienne centrée sur la valeur de pulsation ω_0, de largeur $\delta\omega_0$, contenant une infinité de modes superposés dont l'amplitude suit une loi de distribution gaussienne 186

Remerciements

Je remercie tout d'abord mes encadrants, **Pr. V.E. Gusev** et **Pr. P. Ruello**, pour m'avoir proposé ce sujet de recherche soutenu par le projet ANR GHzOCPETs (*Giga Hertz Optically-Controlled Piezo-Electrical Transducers*) et avoir guidé le présent travail.

Par ailleurs, c'est un très grand honneur pour moi que **Pr. N. Del Fatti**, Professeur au sein de l'Université Claude Bernard Lyon I, et **Dr. Arnaud Devos**, Chargé de Recherche au CNRS/IEMN, aient acceptés d'être les rapporteurs du présent travail. Je remercie en outre **Dr. Emmanuel Peronne**, Chargé de Recherche au CNRS, et chercheur à l'INSP [1], d'avoir accepté de figurer parmi les membres du Jury, ainsi que **Pr. Bernard Castagnède** pour avoir bien voulu accepter de présider ce même Jury. Il s'agit de personnalités spécialistes et reconnues dans le domaine scientifique auquel est rattaché le présent travail, et il est manifeste que leur présence parmi les membres du Jury est très gratifiante.

Par ailleurs, je souhaite remercier l'ensemble des personnels (scientifiques, techniques et administratifs) du Laboratoire de Physique de l'Etat Condensée (LPEC/UMR 6087/CNRS/Université du Maine), et de la Faculté des Sciences du Mans, pour leur trés grande disponibilité, leurs innombrables aides à tous les niveaux et dans leurs domaines de compétences respectifs, sans lesquels le présent travail n'aurait pas pu aboutir, tout particulièrement les membres de l'Equipe de Dynamique Photo-induite dans la Matière Condensée : **Dr. Denis Mounier**, laseriste et opticien talentueux, **Dr. Gwenaelle Vaudel**, Ingénieure de Recherche au CNRS, pour son aide et sa dextérité en salle de mesure, **Pr. Jean Marc Breteau**, pour son expérience et ses conseils, **Dr. Thomas Pézeril**, Chargé de Recherche au CNRS, pour sa maitrise poussée des systémes et ses idées novatrices, **Dr. Nikolay Chigarev**, Ingénieur d'Etude, pour ses critiques constructives, **Mathieu Edely**, Ingénieur d'Etude et Personne Compétente en Radioprotection, pour la maitrise et la fiabilité de ses processus de fabrication de dépôts de films minces, et enfin **Pr. Alain Bulou**, pour son expertise affirmée des mesures en spectroscopie Raman.

Un travail de thèse étant l'occasion de rencontres, je souhaite remercier **Pr. A.A. Kolomenskii**, de l'Université TAMU du Texas et **Dr. A. Lomonosov** de l'Université de

1. *Institut des Nano-Sciences de Paris*

Heidelberg en Allemagne, qui, en tant que professeurs invités m'ont permis de découvrir de nouvelles méthodologies de travail. Un remerciement très fort sera de même adressé à **Karine Blary**, Ingénieure d'Etude à l'IEMN (UMR 8520/CNRS/UVHC/ISEN/Université de Lille 1), pour ses élaborations d'échantillons et son apport d'expertise sur ces questions.

Il ne saurait être oublié l'aide apportée par l'ensemble des personnels de l'ENSIM (*Ecole Nationale Supérieure d'Ingénieurs du Mans*), au sein duquel les salles de mesure optique sont hébergées, et notamment **Julien Nicolas** Assistant Ingénieur mécanicien usinage, et **Daniel Pugliese**, Assistant Ingénieur en charge des réalisations en électroniques et support d'échantillons. Il est aussi à remercier **Francis Chavanon**, Ingénieur d'Etude et informaticien au LPEC, et **Jean-Michel Cahier**, informaticien et responsable réseau à l'ENSIM, pour leurs interventions garantissant fiabilité quant aux postes informatiques de saisies ou de travail. Un remerciement appuyé sera également à adresser à **Pierre-Yves Steunou**, Ingénieur de Recherche, et intervenant en modules de formation en informatique de l'Ecole Doctorale, et **Thomas Lavergne**, doctorant au sein du LAUM/UMR 6613/CNRS/Université du Maine pour leur aide précieuse relative à l'utilisation des logiciels, et plus particulièrement du logiciel LaTeX. Par ailleurs, concernant les aspects technologiques et techniques, il ne saurait être oublié **Gilles Ripault**, Assistant Ingénieur ACMO au service de Physique de la Faculté des Sciences et au LPEC pour les multiples et indispensables usinages de précision liés à un travail de recherche utilisant des moyens optiques, et ainsi que **Agnés Gourbil**, Assistant Ingénieur chimiste au CNRS, pour tous les conseils prodigués. La conduite au jour le jour du présent projet de recherche n'aurait pu avoir lieu sans le soutien administratif et logistique du secrétariat tenu impeccablement par Madame **Jeannette Le Moine**, secrétaire-comptable au LPEC, et sans la maitrise de taches de gestion assurées par Madame **Annie Charron**, gestionnaire-comptable au LPEC, toutes deux expertes en résolution des problémes insolubles.

En dernier lieu, il est à remercier **Pr. Alain Bulou** et **Dr. Jean Marc Grenèche**, Directeur de Recherche au CNRS, tous deux directeurs successifs de l'unité UMR 6087, pour leur éclairages sur le fonctionnement interne de structures telles que la Faculté ou le CNRS, ainsi que **Pr. Jean-François Tassin** et **Pr. Jean-Yves Buzaré** (Vice Président du Conseil Scientifique de l'Université du Maine) pour leurs conseils relatifs aux liens entre les collectivités territoriales et le monde de la Recherche, lors de mes présences à la Région Pays de la Loire en tant que représentant des Doctorants au sein du CCRRDT[2].

Que tous ceux qui ont donc contribués de près ou de loin à ce présent travail en soient ainsi vivement remerciés.

2. Comité Consultatif Régional de la Recherche et du Développement Technologique

Introduction

L'irradiation de composés est un vaste domaine scientifique permettant l'étude de processus photochimiques (réactions chimiques photo induites, polymérisations, changements stéréochimiques : de conformation, etc. ...) et photophysiques (processus radiatifs, thermiques, et électroniques, entre autres).

Parmi ces axes de recherche, l'emploi de techniques optiques ultra-rapides (via l'utilisation de laser femto-secondes) correspond à la mise en oeuvre d'un outil d'analyse extrêmement efficace et puissant pour l'étude de processus aussi divers que l'excitation de molécules isolées ou en solution, la relaxation d'états vibrationnels dans les gaz, les réorganisations dans les liquides [3], dans les solides (nanostructurés, entre autres...), la caractérisation de couches minces (films déposés, etc...).

Au sein des différentes problématiques liées à l'interaction laser ultrabref/matière, une des thématiques fondamentales étudiées consiste à décrire les mécanismes de génération de phonons acoustiques cohérents. Ce domaine s'appelle parfois l'acoustique picoseconde.

L'acoustique picoseconde consiste en l'utilisation et l'analyse de différents mécanismes de génération de phonons acoustiques très hautes fréquences par voie optique. Le champ d'application de cette méthode est extrêmement large et recouvre des domaines aussi divers que variés tels que : l'étude des adhésions aux temps courts, la détection et la caractérisation de couches minces (en dépôt ou interstitielles [1] [2]) pour la micro-électronique, le contrôle non destructif de nanostructures...

L'évolution de la technologie laser a permis peu à peu de nombreuses avancées scientifiques, ceci depuis les années 1960. En 1963, l'expérience de White et al. marque les débuts de l'utilisation de sources lasers pour exciter et détecter des ondes acoustiques. Le développement des sources impulsionnelles (décennie 1980-1990), notamment via l'exploitation de sources Ti :saphir [3], a alors engendré des avancées majeures.

En 1985, Wiesenfeld et al. [11] et Thomsen et al. [9, 13] démontrent la possibilité de générer et détecter, grâce à ces sources femtosecondes (ou picoseconde, en 1988, [29]) de faibles signaux acoustiques photo-induits. Il s'agit d'une des expériences pionnières dans

3. Le temps de réorganisation dans le solvant eau est de l'ordre de la picoseconde

le domaine.

Il se confirme depuis l'intérêt d'utiliser des lasers impulsionnels pour établir différentes cinétiques ultra-rapides par suivi de la transmittivité transitoire (ou de la réflectivité transitoire) [9, 12]. Le haut contenu fréquentiel de ces impulsions courtes a permis de générer et d'observer des paquets d'ondes acoustiques très hautes fréquences [9, 16, 21, 22, 10]. Cette méthode a de même été utilisée pour l'étude de transitions de phases photo-induites par excitations de populations de phonons à des niveaux élevés [14, 15], de phonons optiques [7, 23, 24, 25, 26, 8], ou portant sur l'atténuation acoustique [22] dans des films minces (mesures des coefficients d'atténuation) [19, 20], ou pour l'étude de composés divers et variés [7, 30, 31]. On a de même accès à des mesures de cinétiques de relaxation électronique par collision e^-/e^- ou e^-/ph [4, 5, 6], qui ont d'ailleurs été les premières cinétiques ultrarapides étudiées. D'un point de vue applicatif, des travaux ont montré l'opportunité d'utiliser ces paquets d'ondes acoustiques très localisées dans l'espace pour l'analyse de propriétés élastiques de matériaux, ceci avec la résolution nanométrique [27] (études d'édifices sub-micrométriques [35], de composés multicouches [18], ou de vibrations de nanoparticules [17] par exemple). Même si la réflectivité X permet d'accéder à des propriétés physiques (épaisseur, densité électronique,...) à des échelles sub-nanométriques [28], la force et la spécificité de l'acoustique picoseconde demeure sa capacité à permettre l'évaluation, en plus des vitesses dans des couches de films minces, d'épaisseurs nanométriques [9, 16], d'où l'intérêt jamais démenti de cette technique [17].

La présente étude s'intéresse aux mécanismes de photo-génération de phonons acoustiques dans le semi-conducteur GaAs. Il s'agit d'une étude visant à rechercher et établir les processus de photo-génération et photo-détection des modes de vibrations cohérents excités au sein de la matière, ceci en dessous du seuil d'ablation du matériau. L'enjeu de l'étude réside dans la recherche des facteurs permettant de générer des phonons acoustiques cohérents à des fréquences de plus en plus hautes et selon des mécanismes efficaces et contrôlables.

L'obtention des hautes fréquences peut se faire via la prise en compte de facteurs géométriques ; on peut citer l'utilisation de super-réseaux : structures géométriques de période T_{SL} de répétition du motif géométrique de base du super-réseau. Dans ce cas, il est possible d'observer des modes de fréquence $f_a \propto (1/T_{SL})$ [36]. L'épaisseur d du film mince métallique servant de transducteur thermo-élastique [9] peut être de même un paramètre clef : on a alors $f_a \propto (1/d)$. Ce mécanisme de génération par utilisation d'une contrainte thermoélastique demeure très répandu.

L'accès au contenu fréquentiel élevé peut se faire également par contrôle de la dynamique de recombinaison électronique : $f_a \propto (1/\tau_R$ où τ_R est le temps de recombinaison). Mais

la compréhension complète et le contrôle de ce mécanisme peut s'avérer difficile car les propriétés des semi-conducteurs sont parfois complexes à cerner, notamment considérant des aspects liés à la détection des phonons, sur lesquels nous discuterons de nouveaux résultats.

Le mécanisme de génération de phonons acoustiques par effet piézo-électrique s'avère par ailleurs une voie d'accès aux hautes fréquences prometteuse [100]. Malgré de très nombreux travaux suggérant l'efficacité du processus [88, 57, 100, 101], aucune étude détaillée et démonstrative relative à ce mécanisme dans le GaAs n'a cependant été proposée. La possibilité d'effectuer une piézo-photo-génération dans le GaAs est ainsi explorée dans ce manuscrit, et notamment, il est présenté une étude détaillée montrant l'efficacité de cet effet piézo-électrique pour photo-générer des phonons.

Le manuscrit sera organisé comme suit : dans un premier temps, nous présenterons les différents mécanismes de photo-génération et de photo-détection de phonons acoustiques, en détaillant des aspects phénomélogiques et des aspects plus mathématiques. Puis nous rappellerons au lecteur les outils de l'acoustique picoseconde actuelle, où les moyens optiques ultrarapides utilisés sont présentés (chapitre 2). Le chapitre 3 permettra de présenter des résultats liés à la dynamique électronique du plasma électron-trou dans le GaAs [100]. Finalement, en chapitre 4, il sera exposé les résultats relatifs à la piézo-génération de phonons acoustiques photo-induits au sein du matériau. Puis nous conclurons sur notre étude et donnerons quelques perspectives.

Chapitre 1

Descriptions des phénomènes photo-induits dans les semiconducteurs

"Le timbre, c'est la couleur du son"

Helmholtz, 1870

En 1880, Alexander Graham Bell expose le principe de son invention (le photophone) à l'AAAS (*American Association for Advancement of Science*). La même année, il reçoit avec son collègue Sumner Tainter le prix Volta, décerné par l'Institut de France pour ses recherches et ce dispositif. Une présentation de ce système à l'Observatoire de Meudon impulse une collaboration avec Mercadier, un chercheur français, qui effectuera par la suite de nombreuses recherches dans le domaine de l'interaction lumière-matière et les liens avec l'acoustique. Sans le savoir, les expériences de Bell sont à la base de la photo-acoustique, qui permettra la caractérisation de corps opaques quelques quatre-vingt ans plus tard. La démarche de Bell repose sur une étude systématique de l'interaction entre la lumière blanche, ou une radiation spectrale isolée, et des corps simples et composés, sous trois états (solides, liquides et gazeux). Graham Bell expose principalement deux dispositifs : le photophone [1] et le spectrophone.

Le photophone (dont le schéma de fonctionnement est donné en figure **1.1**) permet de transmettre de l'information via un faisceau lumineux sur 200m. Trés succintement, la voix du personnage A fait vibrer un premier miroir qui réfléchit la lumière blanche en provenance directe du soleil, et la renvoie vers le dispositif tenu quelques 200m plus loin par le personnage B. Ce dispositif se présente sous la forme d'un cornet (figures **1.2** et **1.3**) renfermant un miroir parabolique qui renvoie et focalise les faisceaux de lumière blanche

1. Conservation de prototypes au *National Museum of American History/Smithonian Institution*, à Washington D.C., et au *Conservatoire National des Arts et Métiers*, à Paris

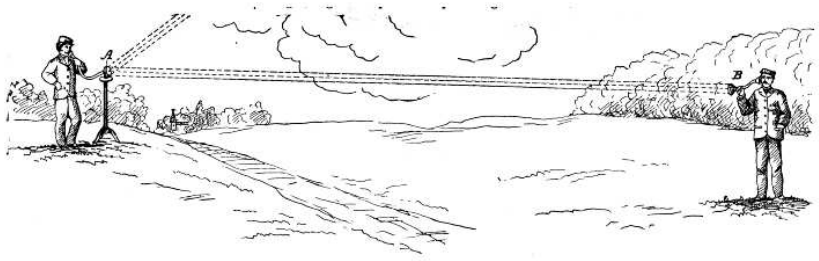


FIGURE 1.1 – Photophone radiatif de Bell (Octobre 1880) : modulation du signal optique par le personnage en A et détection acoustique par le personnage en B : illustration historique tirée de [37]

sur un cube de cristal de sélénium, centré dans l'axe de la paraboloïde. L'intensité de la lumière étant modulée par le personnage situé en A, le sélénium reçoit également une fluence modulée et peut générer un signal électrique reproduisant le son de la voix. L'idée d'une activation d'un cristal de sélénium fût tout d'abord évoquée le 3 Juin 1878 par un certain J.F.W., chercheur non identifié, qui publia des éléments de réflexion dans la revue *Nature* du 13 Juillet 1878. Le 23 Septembre 1880, Bell réaffirme le choix du sélénium au *Boston Meeting* de l'*American Association*, et détaille alors les valeurs de résistance du cristal en fonction de la fluence [2].

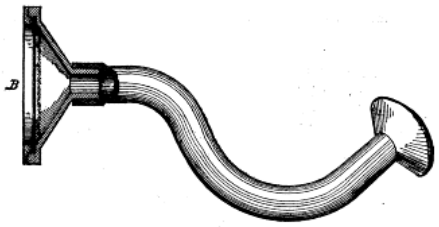


FIGURE 1.2 – Cornet de détection des sons émis par le cristal photo actif : illustration historique tirée de [37] ; cornet contenant le miroir parabolique de focalisation sur le cristal de sélénium contenu dans une armature de support conductrice en platine

Le spectrophone fût également présenté par Graham Bell, qui l'utilisa pour l'étude de divers solides (laine rouge, soie verte, caoutchouc durci), liquides (sulfate d'ammonium : $(NH_4^+; SO_4^{2-})$; sulfate de cuivre : $(Cu^{2+}; SO_4^{2-})$) et gazeux (vapeurs d'iode $I_2(g)$, peroxyde d'azote). Ce dispositif est décrit en figure **1.4** ; un disque percé en rotation (placé en **(1a)**) permet de moduler le faisceau de lumière blanche incidente (faisceaux intermittents de fréquence $f_a \approx 500Hz$). La fente d'entrée **(1b)** permet d'affiner spatialement le faisceau de

2. *Lecture Nature* pages 500-503 : mesures à 300Ω dans le noir et 155Ω à la lumière et affirmation du choix du cadre en platine pour tenir le cube de sélénium

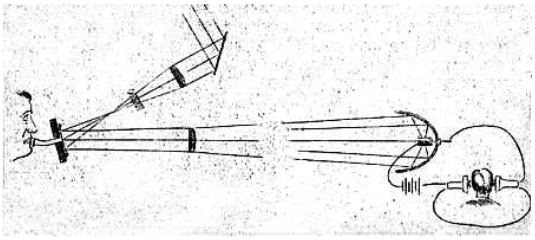


FIGURE 1.3 – Esquisse de Bell et Sumner daté de 1880 ; miroir de réception parabolique et support en platine

lumière blanche ; il est ensuite envoyé sur un prisme (en sulfure de carbone, d'indice $1,63$) permettant de sélectionner la longueur d'onde voulue pour l'expérience. Cette radiation est envoyée dans le tube **(3)** qui renferme un diaphragme et deux lentilles de focalisation ; l'échantillon étudié est placé au foyer de ce système. **(4)** permet de régler la focalisation, et la détection acoustique s'effectue via le cornet **(5)**.

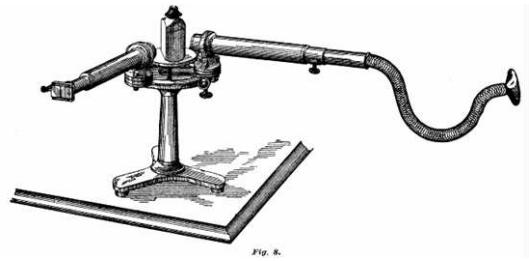


FIGURE 1.4 – Spectrophone présenté le 16 Avril 1881 à la Société de Physique de Washington par Graham Bell et Sumner Tainter ; illustration historique tirée de [37]

Par ce dispositif, Bell démontre en 1881 que l'effet photo-acoustique dans le cristal de sélénium était dépendant de l'absorption du paquet d'onde lumineuse, et que l'intensité acoustique mesurée *in-fine* dépendait fortement de cette absorption. Il tente aussi de comprendre pourquoi la couleur et l'état (gazeux, ...etc.) sont les paramètres ayant le plus d'influence sur l'intensité des sons émis. Il s'agit donc d'une étude de la réponse sonore des échantillons soumis à un éclairement (spectralement déterminé), par recueil et détection des ondes de pression (voyageant dans le tube, désigné par **(4)** en figure **1.4**), produite par absorption, échauffement, et expansion thermique du corps irradié.

Si, dans ces expériences historiques, la lumière blanche du soleil fut utilisée, l'idée d'exciter des ondes acoustiques dans la matière au moyen de faisceaux lumineux fut reprise par la suite, en remplaçant le faisceau de lumière blanche par un faisceau laser.

L'utilisation des lasers pour exciter et détecter des ondes acoustiques remontent au début des années 1960 [38]. Les expériences pionnières d'opto-acoustique proprement dites

ont été menées dans les années 1980 avec des laser à rubis où l'excitation d'impulsions acoustiques de durées caractéristiques de l'ordre de la microseconde furent obtenues par effet thermo-élastique [9]. Si, dans un premier temps, des impulsions lasers excitatrices d'une durée allant de nanoseconde à la microseconde sont utilisées, l'idée d'employer des impulsions lasers sub-picosecondes pour exciter des impulsions acoustiques très courtes apparut rapidement, avec notamment l'avènement des oscillateurs titane saphire femtoseconde.

Les lasers femtosecondes sont des sources de lumière permettant l'étude de la réponse linéaire, et non linéaire, d'atomes, de molécules, de milieux de phase condensée, dans des matières dites molles (pâtes et gels), ou encore de phase liquide. L'interaction laser matière en présence d'impulsion laser femtoseconde de haute puissance a d'ailleurs fourni des résultats inattendus : génération de plasma électroniques photo induits jusqu'à des températures électroniques de l'ordre du keV par exemple, etc [39].

Dans le cadre de la présente étude, nous nous sommes concentrés sur le domaine de l'opto-acoustique ultrarapide qui étudie la génération et la détection de phonons acoustiques haute fréquence. Les processus de génération mis en jeu reposent sur l'absorption de l'énergie lumineuse et en sa conversion énergétique en vibrations de réseau ou onde acoustique.

Les caractéristiques des vibrations acoustiques (phonons acoustiques) ainsi générées sont multiples et dépendent de nombreux facteurs que nous allons expliciter dans le cadre de cette étude. Avant cela, et afin de fixer des ordres de grandeurs, il est important de dégager quelques spécificités et avantages de l'utilisation des sources femtosecondes. Tout d'abord la génération des phonons acoustiques par une impulsion lumineuse conduit à un spectre limité en fréquence par le spectre de ladite impulsion. Ainsi dans le cas d'impulsions lasers de durée $\tau_L \approx 100fs$, l'accès à des fréquences allant jusqu'à 10 THz (donc couvrant tout le spectre acoustique) est potentiellement envisageable. Dés lors que des phonons acoustiques hautes fréquences sont en jeu, nous voyons que pour une fréquence acoustique de $f_a \approx 1THz$ et une vitesse acoustique de l'ordre de $5000m.s^{-1}$, par exemple, on trouvera une longueur d'onde acoustique caractéristique telle que :

$$L_a \approx \frac{C_a}{f_a} \equiv \frac{5000}{10^{12}} \approx 5nm \tag{1.1}$$

Cette valeur de longueur d'onde est donc tout à fait compatible avec l'idée de diagnostics de nanostructures.

Les modes d'excitation optique de ces impulsions acoustiques ultracourtes sont variés ; ils peuvent agir de manière destructive (par ablation de matière suite à un chauffage

d'une cible solide par le faisceau laser), ou non destructive. On utilise dans les deux cas l'interaction opto-acoustique et on génère des paquets cohérents de phonons acoustiques.

Nous commencerons par une description globale et macroscopique des phénomènes et par décrire l'équation du Principe Fondamental de la Dynamique appliquée au cas de la génération de phonons acoustiques dans la matière. Puis nous détaillerons l'origine microscopique des différentes voies d'accès à la génération de ces phonons par divers mécanismes (contraintes thermoélastiques, de déformation de potentiel, piézo-électrique, par électro-striction). Il sera détaillé les différentes relations mathématiques conduisant entre autres à l'établissement du spectre de phonons, et il sera analysé l'impact de facteurs influençant ces spectres (par exemple, en examinant le cas du temps de recombinaison volumique, noté τ_R, et le cas du coefficient de diffusion ambipolaire des porteurs de charge, noté D_{eh}). Puis, pour finir, les processus liées à la mesure, et plus particulièrement liés à la détection optique seront explicités.

1.1 Description du champ de déformation acoustique photo-induit : description globale

1.1.1 Effet macroscopique de l'irradiation laser de pompe

Lorsqu'une impulsion laser interagit avec le matériau, le nuage électronique est tout d'abord perturbé (excité). Avant cette interaction laser-matière, il est possible de représenter le matériau au repos par le système schématisé en figure **1.5**. On y trouve les sites cationiques et les électrons associés.

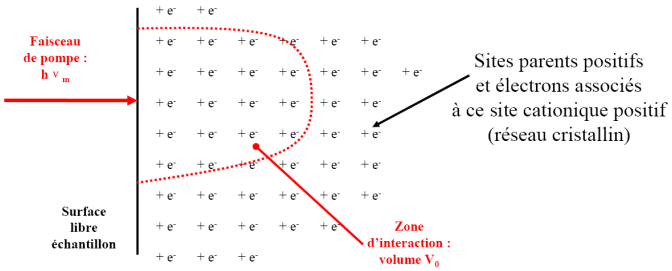


FIGURE 1.5 – Situation macroscopique du matériau à l'équilibre avant l'irradiation laser ; volume d'interaction V_0 ; sites e^- et h^+ au repos dans la maille cristalline

Dès que les électrons sont excités, il s'ensuit un *déplacement électronique* (figure **1.6**) et une modification de la distribution spatiale des charges. Cette distribution électronique hors équilibre, qui évolue dans le temps selon des dynamiques très variables propres à

chaque matériau, va forcer les cations à modifier leur position, et par la même, va modifier la "pression interne" du solide, et conduire à l'augmentation du nombre de phonons. L'excitation du sous-réseau cationique via ces couplages électrons-phonons se traduit donc par l'apparition d'une contrainte qualifiée de photo-induite. Selon la nature du matériau et du plasma électronique photo-excité, les propriétés spatiales et spectrales de cette contrainte seront très variables, comme nous le verrons plus loin.

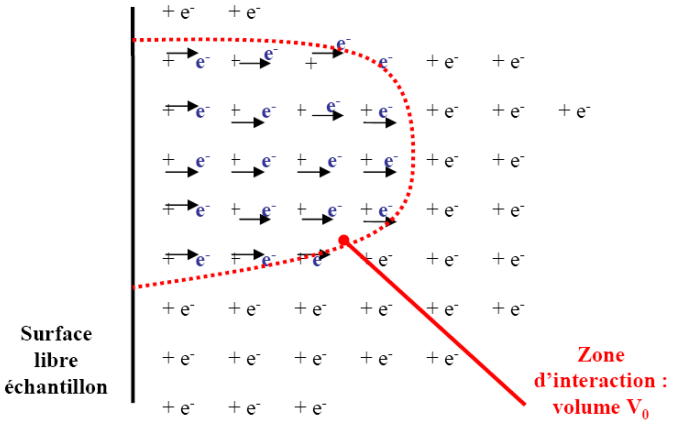


FIGURE 1.6 – Déplacements électroniques locaux dans le volume d'interaction macroscopique V_0 défini par le pointillé rouge

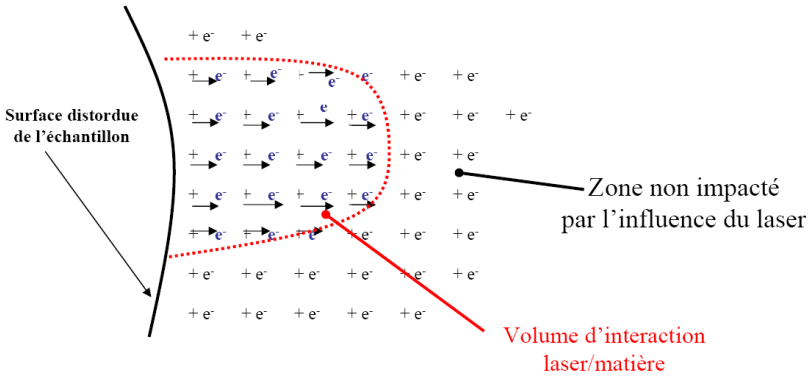


FIGURE 1.7 – Apparition d'une contraction au niveau macroscopique et d'une force volumique, dûe à l'apparition d'un gradient de contraintes. Distortion géométrique de surface

Ce qu'il est important de souligner à ce stade est que compte tenu de l'existence d'une surface libre, ou d'interfaces (cas des systèmes multicouches), et de l'existence d'une absorption bien souvent inhomogène de la lumière excitatrice dans le solide, la contrainte photo-induite présente un gradient dans le matériau photo-excité (figure **1.6**). Selon le Principe Fondamental de la Dynamique rappelé ci-dessous, le gradient donnera alors na-

turellement naissance à une force [3] qui s'appliquera sur chaque cation, produisant un déplacement cohérent du réseau nommé onde acoustique (figure **1.7**). La seconde loi de Newton (Principe fondamental de la dynamique) s'écrit comme donné en **(1.2)**, ceci dans le référentiel de l'échantillon, doté d'axes ortho-normés, l'axe z étant celui de la profondeur.

$$\rho.\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}(z,t) - \rho.C_a^2.\frac{\partial^2 u}{\partial z^2}(z,t) = \frac{\partial \sigma}{\partial z}(z,t) \tag{1.2}$$

où σ représente la contrainte globale, dont l'origine microscopique est multiple :

$$\sigma = \sigma_{th} + \sigma_{eh} + \sigma_{elec} + \sigma_{piezo} \tag{1.3}$$

Les contraintes thermo-élastiques σ_{th}, de déformation de potentiel σ_{eh}, d'électrostriction σ_{elec} et piézo-électrique σ_{piezo} seront définies dans les paragraphes suivants au moyen des expressions **(1.26)**, **(1.44)**, **(1.84)** et **(1.58)**.

On se focalisera donc plus particulièrement sur les mécanismes de génération thermoélastique, par voie de déformation de potentiel, piézo électrique et électrostrictive. Il faut bien noter que d'autres contraintes, qui ne sont pas mentionnées dans le présent travail, existent (magnétostrictives, etc...).

1.2 Effet thermo-élastique dans les semi-conducteurs : origine microscopique (Pression phononique)

L'effet thermoélastique est un phénomène lié à la dilatation thermique consécutive au chauffage du cristal induit par l'absorption d'une énergie lumineuse par le matériau.

1.2.1 Production de phonons incohérents et thermalisation électron-phonon de l'électron photo-induit

L'apparition d'une contrainte élastique se fait suite aux différentes séquences microscopiques décrites auparavant. L'interaction laser matière conduit à un apport d'énergie aux électrons du réseau cristallin présent dans le volume d'interaction V_0 (figure **1.6**) [4] et promotion vers un état d'énergie plus élevé situé en bande de conduction (figure **1.8**), et formation simultanée d'un trou (h^+) en bande de valence. Il s'agit d'une création de

3. Cette force est définie par $F_i = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j}$
4. Les photons du faisceau de pompe cèdent leur énergie au réseau

paires électron-trou [49] au sein du matériau soumis à l'irradiation. On parlera de gaz d'électron photo-excité au niveau macroscopique pour *tout* le volume d'interaction V_0.

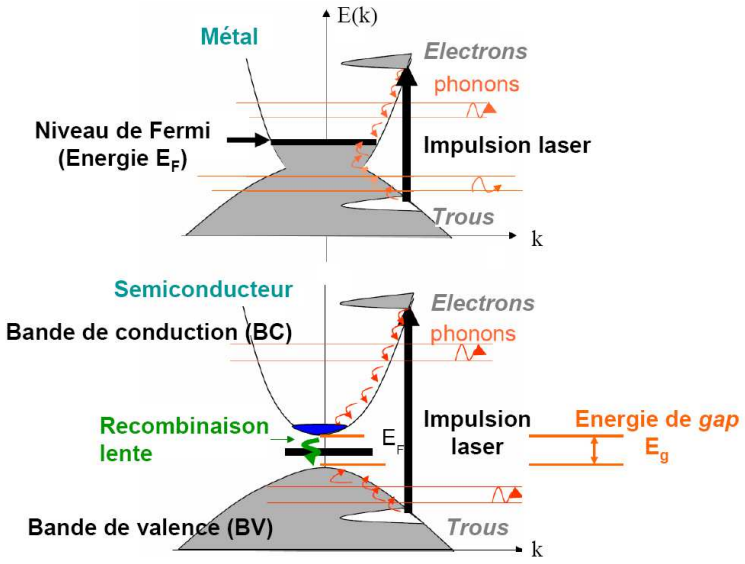


FIGURE 1.8 – Schéma de bandes typique d'un semi conducteur et d'un métal ; diagrammes de niveau d'énergie E(k) avec présentation des bandes de conduction (BC) et de valence (BV). Un diagramme plus précis montrerait plusieurs branches s d'énergie dans la bande de conduction. La flèche verte correspond à la recombinaison radiative lente (1 ns à 1 μs, sauf pour certains matériaux : LT-GaAs par exemple) et émission de photon $h\nu_{em}$ (ν_{em} est la fréquence du photon émis). Les sauts d'énergie lors de la thermalisation par collision $e^-|e^-$ et $e^-|ph$ vers le fond des vallées sont quantifiés (*flèches courbes rouges*). Existence d'une densité de porteurs de charge dans le fond de la bande de conduction en état métastable [51] : zone bleue *en bas de bande de conduction* sur la figure décrivant les semi-conducteurs

Par la suite, entre le temps zéro où l'électron est photo-excité et 1 ps environ [42], les électrons thermalisent vers le fond[5] des vallées de la bande de conduction par collisions électron-électron (e^-/e^-) puis électron-phonon (e^-/ph)[6]. La figure **1.8** décrit cette avalanche (sur cette figure, E_g est l'énergie de *gap*, c'est-à-dire l'intervalle en énergie (eV) séparant la bande de conduction (BC) de la bande de valence (BV)). Il s'agit d'une relaxation des électrons chauds vers le bas de la bande de conduction. Il s'en suit une

5. Thermalisation intrabande et transfert d'énergie des électrons vers le réseau environnant

6. Les temps de collision électron-électron et électron-phonon sont tels que $\tau_{e^-/e^-} \approx 10^{-15}s << \tau_{e^-/ph} \approx 10$ à $100fs \approx 10^{-13}s$. Le temps de couplage électron-phonon est évalué via le modèle de Drude. L'ordre de grandeur du temps de refroidissement par processus électron-électron est donné quant à lui par $\frac{d_{h^+h^+}}{V_F} \approx \frac{10^{-10}}{10^5} \equiv 10^{-15}s$, la distance intercationique $d_{h^+h^+}$ étant prise à environ $10^{-10}m$, et la vitesse de Fermi (cas du semi-conducteur) étant prise à $10^5 m.s^{-1}$ [45]

production de phonons optiques et/ou acoustiques, par échange d'énergie et de quantité de mouvement, ceci lors des retombées successives (descentes échelonnées et quantifiées vers le bas de la bande de conduction). Il s'agit de l'effet thermo-élastique. On génère alors des phonons très hautes fréquences incohérents (par collisions $e^-|e^-$, $ph|e^-$ et $ph|ph$), et *in-fine* des phonons acoustiques. Dans le cas des semi-conducteurs, l'énergie relâchée par ces électrons au réseau vaut, dans cette approche, $h\nu_{pompe} - E_g$, lorsque l'électron photo-excité a relaxé au maximum (vers un niveau d'énergie E très proche de la valeur de E_g) et se trouve en fond de vallée dans la bande de conduction. Cette énergie transférée au réseau sous forme de vibrations correspond en d'autres termes à une augmentation locale ultra-rapide de la température. Comme tout réseau est intrinsèquement anharmonique, cette élévation de température, consécutive à une forte augmentation de la population de phonons, provoque une dilatation du matériau, et donc une modification de pression interne ; c'est la contrainte thermoélastique. Ce processus est bien plus rapide ($\approx 100fs$ après le temps zéro d'arrivée du photon optique $h\nu_{pompe}$ sur le matériau) que les processus de diffusion thermique "classique". Les trous relaxent aussi, de manière concommittente, vers le maximum de la bande de valence et contribuent aussi au chauffage. Il existe par la suite un phénomène de recombinaison (radiatif ou non-radiatif) qui se déroule sur un intervalle de temps variable d'un matériau à l'autre, et qui doit ou pas être pris en compte selon la valeur de la fréquence caractéristique du phénomène comparée à celle des phonons acoustiques cohérents étudiés.

1.2.2 Description thermodynamique et microscopique de la contrainte thermoélastique

La variation de pression interne liée à une modification de la population de phonons dans un cristal anharmonique peut être décrite par les équations de la thermodynamique. De façon simple dans un premier temps, on a l'expression de la dilatation thermique :

$$\beta = \frac{1}{3B} \times \left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V \tag{1.4}$$

Aussi, toute variation de température d'un cristal conduira ce dernier à subir une variation de pression décrite par $\Delta P = 3B\beta \times \Delta T$ (équivalent à une contrainte $\sigma_{th} = -3B\beta \times \Delta T$). Cette contrainte, comme nous le voyons, repose sur l'expression du coefficient de dilatation thermique β, empreinte de l'anharmonicité du cristal. Une seconde approche, liée à des critères plus microscopiques, permet également de retrouver une seconde expression de cette contrainte thermo-élastique σ_{th}.

Le premier principe de la thermodynamique (appliqué à un *ensemble canonique*) s'écrit, en considérant un système fermé ($dn_i = 0$) et une absence de potentiel chimique :

$$dU = T.dS - P.dV \tag{1.5}$$

On introduit la fonction d'état thermodynamique d'énergie libre F, en utilisant la pression P, le volume V, la température thermodynamique T et l'entropie S par

$$F = U - TS \tag{1.6}$$

En utilisant l'expression **(1.5)** et en différenciant **(1.6)**, on trouve que $dF = -P.dV - S.dT$. En terme de différentielles, en utilisant les variables principales du volume V et de la température thermodynamique T, on peut alors écrire :

$$P = -\left(\frac{\partial F}{\partial V}\right)_T \tag{1.7}$$

Le second principe de la thermodynamique s'écrit, par utilisation de l'opérateur $-\frac{\partial}{\partial V}\big|_T$:

$$T \cdot \left(\frac{\partial S}{\partial T}\right)_V = \left(\frac{\partial U}{\partial T}\right)_V \tag{1.8}$$

ce qui induit donc, par intégration :

$$S = \int_0^S dS' = \int_0^T \frac{1}{T'} \cdot \left(\frac{\partial U}{\partial T'}\right)_V \cdot dT' \tag{1.9}$$

ceci considérant la fonction thermodynamique d'énergie interne $U(T', V)$. Cette fonction est définie [43] par l'expression **(1.10)**, pour un mode de vibration de vecteur d'onde $\vec{k}$, en bande d'énergie s [7] :

$$U = U^{eq} + \frac{1}{2}\sum_{\vec{k},s} \hbar\omega_s\left(\vec{k}\right) + \sum_{\vec{k},s}\left(\frac{\hbar\omega_s(\vec{k})}{e^{\beta'\hbar\omega_s(\vec{k})} - 1}\right) \tag{1.10}$$

avec $\beta' = (kT)^{-1}$ facteur de Boltzman et k la constante de Boltzman.

Considérant **(1.7)**, **(1.10)**, la définition de la fonction F donnée en **(1.6)**, et en posant $n_s(\vec{k})$ comme valeur de la densité de phonons, c'est-à-dire :

$$n_S\left(\vec{k}\right) = \left(e^{\beta'\hbar\omega_S(\vec{k})} - 1\right)^{-1} \tag{1.11}$$

7. Par utilisation de l'approximation harmonique pour la description de l'énergie interne d'un matériau isolant

on trouve :

$$P = -\frac{\partial}{\partial V}\left\{ U^{eq} + \frac{1}{2}\sum_{\vec{k},S}\hbar\omega_S(\vec{k}) + \sum_{\vec{k},S} n_S(\vec{k})\cdot\hbar\omega_S(\vec{k}) - T\int^T \frac{1}{T'}\left(\frac{\partial U}{\partial T'}\right)_V dT' \right\}_T \tag{1.12}$$

La pression P, définie en **(1.12)**, est assimilable à une fonction composée de A et de $B(T)$ donnée en **(1.13)** :

$$P \equiv A + B(T) \tag{1.13}$$

ceci, en posant :

$$\begin{cases} A = -\frac{\partial}{\partial V}\left\{ U^{eq} + \frac{1}{2}\sum\limits_{\vec{k},S}\hbar\omega_S(\vec{k}) \right\} \\ B(T) = -\frac{\partial}{\partial V}\left\{ \sum\limits_{\vec{k},S} n_S(\vec{k})\cdot\hbar\omega_S(\vec{k}) - T\int^T \frac{1}{T'}\left(\frac{\partial U}{\partial T'}\right)_V dT' \right\} \end{cases} \tag{1.14}$$

ce qui se réécrit par le calcul [43] en [8] :

$$P = -\frac{\partial}{\partial V}\left\{ U^{eq} + \frac{1}{2}\sum_{\vec{k},S}\hbar\omega(\vec{k}) \right\} - \frac{\partial}{\partial V}\left\{\hbar\omega_S(\vec{k})\right\} \times n_S(\vec{k}) \tag{1.15}$$

D'après la définition du coefficient $\beta = \frac{1}{3B}\cdot\left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V$, on trouve :

$$\beta = \frac{1}{3B}\cdot\frac{\partial}{\partial T}\left\{A + B(T)\right\}_V \equiv \frac{1}{3B}\cdot\frac{\partial B}{\partial T}(T) \tag{1.16}$$

A étant une expression mathématique ne dépendant pas de la variable T, et l'indice V signifiant une intégration à V constant.

On trouve alors :

$$\beta = -\frac{1}{3B}\cdot\sum_{\vec{k},S}\frac{\partial}{\partial V}\left(\hbar\omega_S(\vec{k})\right)\cdot\frac{\partial}{\partial T}\left(n_S(\vec{k})\right) \tag{1.17}$$

En utilisant la définition du facteur de Gruneisen [52] associé à chaque mode de vibration, et qui est donnée par :

$$\gamma_{\vec{k},S} = -\frac{V}{\omega_S(\vec{k})}\cdot\frac{\partial\omega_S}{\partial V}(\vec{k}) \tag{1.18}$$

8. On introduit le changement de variable de T' en $x = \frac{\hbar\omega_S(\vec{k})}{T'}$, en intégrant par parties

en exprimant le coefficient de Gruneisen, grandeur adimensionnelle [9], par :

$$\gamma = \frac{\sum\limits_{\vec{k},S}\left(\gamma_{\vec{k},S} \times C_{V_S}(\vec{k})\right)}{\sum\limits_{\vec{k},S}\left(C_{V_s}(\vec{k})\right)} \tag{1.19}$$

et en explicitant la chaleur spécifique volumique C_V, donnée en $J.m^{-3}.K^{-1}$, par :

$$C_V = \sum_{\vec{k},S}\left(\frac{\hbar\omega_s(\vec{k})}{V} \times \frac{\partial}{\partial T} n_S(\vec{k})\right) \tag{1.20}$$

où $n_S(\vec{k})$ représentant l'expression de la densité de phonons et V étant le volume.
Les expressions **(1.12)**, **(1.18)**, **(1.19)** et **(1.20)** induisent :

$$\beta = -\frac{1}{3B} \times (-\gamma C_V) \tag{1.21}$$

d'où l'égalité :

$$\frac{1}{3B} \times \gamma C_V = \frac{1}{3B} \times \left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V \tag{1.22}$$

d'où :

$$\gamma C_V = \left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V \tag{1.23}$$

ce qui donne :

$$dP = \gamma C_V \cdot dT \tag{1.24}$$

et par intégration, on a l'expression de la pression interne :

$$\Delta P = \gamma C_V \Delta T \tag{1.25}$$

ce qui donne l'expression de la contrainte thermo-élastique σ_{th} sous les deux formes [10] :

$$\sigma_{th} = -\gamma C_V \Delta T_L = -3B\beta \cdot \Delta T_L \equiv -3B\beta \cdot \Delta T \tag{1.26}$$

qui est l'expression de la contrainte thermo-élastique [11].

L'élévation de température ΔT donnée par l'expression **(1.26)** correspond ici à l'élévation de température du réseau.

9. Il s'agit de la moyenne pondérée des $\gamma_{\vec{k},S}$

10. On utilise la convention de signe négatif pour la définition de la contrainte thermo-élastique σ_{th}

11. L'effet de chauffage se traduit aussi par l'expression tensorielle plus générale : $\sigma_{th}^{ij} = C_{ijkl} \times \eta_{kl} \equiv C_{ijkl} \times \beta_{kl} \times \Delta T$; il s'agit juste d'une réécriture de l'expression **(1.26)**

1.2.3 Volume d'interaction, profondeur caractéristique de dépôt d'énergie et durée d'impulsion acoustique

Avant d'estimer l'élévation de température induite par l'absorption de l'énergie lumineuse, il est important dans un premier temps de définir le volume où ladite énergie est déposée. En première approche, le volume peut être défini comme :

$$V_0 \equiv \xi \times \pi \times \left(\frac{\Phi}{2}\right)^2 \tag{1.27}$$

où $\xi \equiv \frac{1}{\alpha}$ est la profondeur de pénétration optique, qui est définie comme l'inverse du coefficient d'absorption optique α, Φ le diamètre de la tache laser.

La situation que nous considèrerons est donc celle décrite trés schématiquement en figure **1.9**.

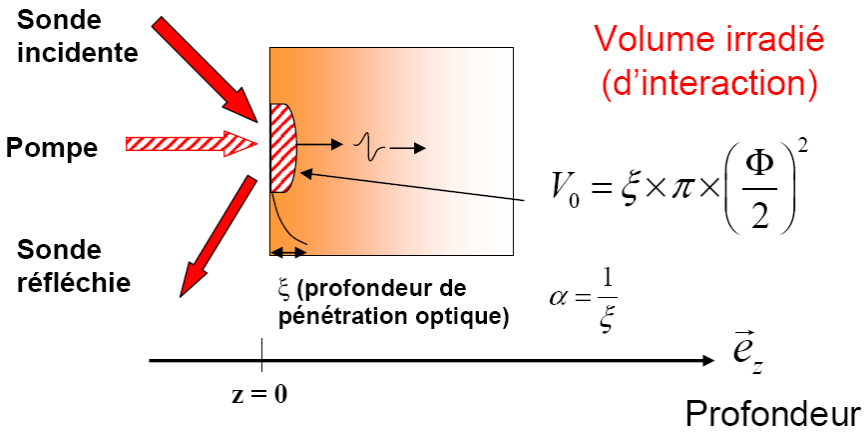


FIGURE 1.9 – Cristal semi-infini excité par une impulsion laser. Description du volume d'interaction V_0 déterminé par la taille Φ du spot irradiant et la profondeur de pénétration optique ξ.

Le chauffage est produit dans une région proche de la surface sur une profondeur l. Cette profondeur l peut prendre trois valeurs selon 3 situations communément rencontrées, à savoir :

$$l = \left\{\xi\ ,\ l_{dif}\ ,\ l_b\right\} \tag{1.28}$$

où ξ est la profondeur de pénétration optique, l_{dif} une longueur caractéristique liée à la diffusion des porteurs de charges photo-excités, et l_b une longueur liée à l'existence d'un éventuel régime balistique des porteurs photo-excités.

Outre le volume d'interaction, cette grandeur caractéristique l est très importante pour estimer la fréquence caractéristique des phonons cohérents acoustiques générés ; en effet, la durée caractéristique de l'impulsion acoustique induite sera définie par :

$$\tau_a^{th} \approx \frac{l}{C_a} \tag{1.29}$$

où C_a est la vitesse du son (voir la figure **1.10**).

En termes d'ordre de grandeurs, la distance caractéristique liée à un phénomène de diffusion est donnée par $l_{dif} \cong \sqrt{D_e \times \tau_{er}}$, où $D_e = 3,3 \times 10^{-4} m^2.s^{-1}$ et τ_{er} le temps d'échange de l'énergie entre le réseau cristallin et les électrons ($\tau_{er} \approx 2ps$ [6]), ce qui donne $l_{dif} \cong \sqrt{3,3 \times 10^{-4} \times 2 \times 10^{-12}} \approx 25nm$. La distance caractéristique liée à un phénomène balistique est quant à elle donnée par l_b, qui est définie par $l_b \cong V_F \times \tau_{ee}$ où V_F est la vitesse de Fermi des électrons dans les semi-conducteurs [12], et τ_{ee} le temps d'échange d'énergie entre électrons.

La durée $\frac{l}{C_a}$ aura donc une valeur bien différente selon que l_{dif}, ou l_b ou ξ prédomine au sein de la matière lors du processus d'interaction avec le laser incident. Ainsi ξ ne pourra pas être pris comme longueur caractéristique *exclusive* pour décrire la profondeur d'interaction.

1.2.4 Energie déposée et élévation de température

L'impulsion laser de largeur à mi-hauteur entre 100 et 150 fs, d'énergie 1 nJ par impulsion, excite des électrons (photo-excitation). La fraction de l'énergie incidente absorbée (énergie du photon du faisceau de pompe $h\nu_{pompe}$) est quantifiée par le coefficient d'absorption α, comme il a été vu en (1.2.3).

Le laser incident sera supposé délivrer des impulsions lumineuses d'énergie Q par impulsion (en $J.pulse^{-1}$) [9]. La profondeur de pénétration optique ξ sera considérée plus petite que l'épaisseur globale disponible de substrat. Les dimensions latérales du spot irradiant (aire A du spot laser irradiant) sont supposées être plus grandes que ξ, ce que résume la condition d'inégalité **(1.30)** :

$$\sqrt{A} >> \xi \tag{1.30}$$

On se place dès lors dans une configuration à une dimension, hypothèse valable dans la plupart des cas traités usuellement. On pourra ainsi utiliser l'hypothèse de l'onde acoustique plane, ceci sur des distances de propagation plus courtes que la longueur de dif-

12. $V_F \cong 10^6 m.s^{-1}$ pour les métaux et $V_F = 10^5 m.s^{-1}$ dans les semi-conducteurs typiquement

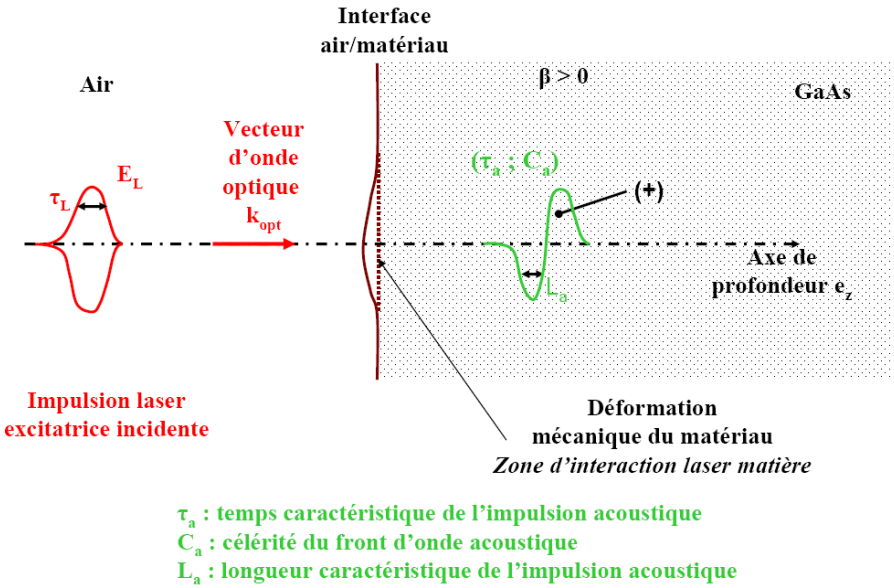


FIGURE 1.10 – Création d'une impulsion acoustique bipolaire cohérente suite à l'irradiation laser (d'énergie E_L ; de temps à mi-hauteur τ_L)), considérant un coefficient d'expansion linéaire thermique β >0. Effet photothermique. Absorption. Chauffage ultrarapide

fraction acoustique. L'énergie totale déposée par unité de volume (en $J.m^{-3}$) vaut alors [9] :

$$W(z) = (1-R).\frac{Q}{A.\xi}.e^{-\frac{z}{\xi}}.\aleph(t) \tag{1.31}$$

où R est le module du coefficient de réflexion optique (pour les métaux : 0,7 ≤ R ≤ 1 [9]). ℵ(t) est la fonction de Heaviside qui traduit un chauffage instantané (marche de chauffage instantané et persistant) :

$$\aleph(t) = \{0 \; si \; t < 0 \, ; \, 1 \; si \; t > 0 \} \tag{1.32}$$

n étant l'indice de réfraction du matériau (parties réelles n et imaginaires κ), et n_0 =1 celui de l'air au dessus de l'échantillon, on a alors :

$$R = r \cdot r^* \tag{1.33}$$

avec

$$r = \frac{(n-1)+i\kappa}{(n+1)+i\kappa} \tag{1.34}$$

ce qui implique, en utilisant **(1.33)** et **(1.34)** :

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2} \tag{1.35}$$

C_V étant la chaleur volumique spécifique en $J.m^{-3}.K^{-1}$, on aura l'expression (en K) de l'élévation de température ΔT(z,t) :

$$\Delta T(z,t) = \frac{1}{C_V} \times W(z,t) \tag{1.36}$$

En considérant que la norme $|\aleph(t) \cdot e^{-\alpha z}| = 1$, l'élévation de température instantanée du réseau cristallin ΔT est ainsi donnée en première approximation [9] par :

$$Max(\Delta T) = \frac{Q}{A.\xi.C_V} \tag{1.37}$$

On peut comparer à ce stade les propriétés différentes affichées par GaAs et un métal type Al pour lesquels Q prendra une expression différente. Pour ce faire, on utilisera les formules suivantes, où N est la densité de porteurs de charges photo-induites [13] :

$$\begin{cases} \Delta T_{Al} \equiv N \times \frac{h\nu}{C_V} \\ \Delta T_{GaAs} \equiv N \times \frac{(h\nu - E_g)}{C_V} \end{cases} \tag{1.38}$$

Si les coefficients C_V sont du même ordre de grandeur (1,9 J.m^{-3}.K^{-1} pour Al et 1,75 J.m^{-3}.K^{-1} pour GaAs), on observera la faible expansion thermique de GaAs par rapport à Al (0,5 $\times 10^{-5}$ K^{-1} contre 2,3 $\times 10^{-5}$ K^{-1} pour Al). Les profondeurs de pénétration optique typiques pour une radiation rouge à 800 nm sont de $\xi^{Al} \approx 15nm$ pour l'aluminium et de 800 nm pour GaAs. Les radiations lasers pénètrent donc peu dans le métal. Ce paramètre est donc celui qui contrôle ΔT, d'après l'expression **(1.37)**. Pour finir, le paramètre de Gruneisen est en moyenne 2,7 fois plus grand pour Al que pour GaAs. Numériquement, pour un diamètre de spot de l'ordre de 10 μm, une profondeur de pénétration optique de l'ordre de 15 ou 800 nm selon le type de matériau (Al ou GaAs) et une énergie Q de l'ordre de 0,1 nJ par impulsion, on peut estimer des valeurs d'élévation de température ΔT du réseau cristallin soumis à cette élévation de température, en utilisant **(1.37)**. Les ordres de grandeurs de ces estimations pourront être rapprochés de ceux donnés dans l'étude en acoustique picoseconde relative au nickel et au chrome, mené par Saito et al. [46]. Le tableau donné en figure **1.11** permet d'effectuer des comparaisons de propriétés physiques, ceci en ne tenant pas compte de la diffusion de la chaleur [14] :

13. Ces formules tiennent compte des énergies réellement mises en jeu

14. L'aluminium est chauffé sur une longueur beaucoup plus importante que celle de la profondeur de pénétration ξ de $\approx 15nm$, mais sur $l_{dif} >> \xi$ [47]

Paramètre considéré :	Al	GaAs
C_V ($J.m^{-3}.K^{-1}$)	$1,9 \times 10^6$	$1,75 \times 10^6$
γ_L	2,16	0,8
Module d'Young E (GPa)	64	75
Profondeur de pénétration optique ξ à 800 nm	15 nm	800 nm
Élévation de temperature du réseau	30 K	~ 0,3 K

FIGURE 1.11 – Tableau de comparaison des propriétés physiques d'un métal type (Al) et de GaAs et calculs de l'élévation de température ΔT typique. Les valeurs ne prennent pas en compte la diffusion de la chaleur [47] [48]. Ces élévations de températures sont celles correspondantes à un instant $\tau \approx 1ps$ après que le nuage électronique a relaxé. Des coefficients de réflexion ont été pris en compte pour le calcul de ΔT.

1.2.5 Température du réseau cristallin (Modèle photothermique)

Il a été calculé dans le tableau de la figure **1.11** des ordres de grandeurs de l'élévation de température photo-induite, mais en réalité, ce processus de chauffage est un processus dynamique. L'évolution temporelle de la température du réseau cristallin [49] est donnée après la relaxation intra-bande (dés que $T_e = T_l$ [15]) par l'expression **(1.39)** :

$$\frac{\partial T}{\partial t}(z,t) = D_{th} \times \frac{\partial^2 T}{\partial z^2}(z,t) + \frac{E_g}{C_L} \times \frac{1}{\tau_R} \times N_e(z,t) + \frac{(1-R)}{C_V} \times \frac{(h\upsilon_L - E_g)}{E_g} \times I_L \times f(t) \times e^{-\alpha z} \tag{1.39}$$

avec la condition :

$$\left.\frac{\partial T}{\partial z}(z,t)\right|_{z=0} = 0 \tag{1.40}$$

Le premier terme de l'expression **(1.39)** est un terme de diffusion thermique, D_{th} étant le coefficient de diffusion thermique, le second est un terme relatif à la recombinaison non radiative des électrons et des trous (le temps de recombinaison valant τ_R), et le troisième terme correspond au chauffage du réseau après relaxation et/ou recombinaison des porteurs de charges photo-excités, I_L étant une intensité laser [16].

15. T_l est la température du réseau cristallin et T_e la température électronique

16. Dans le cadre de l'étude de GaAs, le second terme est absent : $\frac{E_g}{C_L} \times \frac{1}{\tau_R} \times N_e(z,t) \equiv 0$, car les porteurs ont un temps de vie supérieur à $1ns$, ce qui rend la contribution de ce terme négligeable pour les échelles de temps étudiées

1.3 Déformation de potentiel (Pression électronique)

1.3.1 Description du phénomène

Il s'agit d'un mécanisme de génération autre que celui émanant du chauffage ultrarapide, et qui traduit directement l'effet provoqué par l'irradiation laser sur la dynamique de structure électronique. Ce type de contrainte peut exister sans recourir à un chauffage du sous-réseau cationique.

Conceptuellement cette forme de contrainte peut être décrite par l'illustration **1.12**, qui donne un aperçu du lien direct entre modification microscopique d'une distribution électronique sous l'effet d'une impulsion laser et un effet macroscopique de contraction ou de dilatation (mécanique, acoustique) dans le matériau. Il s'agit d'une illustration purement schématique utilisant le modèle des orbitales moléculaires. On rappellera ici que l'orbitale (1s) a une symétrie sphérique et que les orbitales (2p) ont une symétrie axiale et deux lobes (+/−). En cas de remplissage d'une orbitale rentrant en jeu dans une liaison antiliante, on provoque une distorsion de la liaison dûe à la promotion de cet électron) [17]). Dans le cas où l'orbitale accueillant l'électron photo-excité est liante, alors le matériau se contracte.

Ce modéle explique ainsi qualitativement et très schématiquement comment la promotion d'un électron par excitation photonique d'une orbitale à une autre peut engendrer une modification macroscopique de structure.

1.3.2 Expression mathématique

L'existence d'une distribution hors équilibre induit donc une contrainte de déformation de potentiel définie **[9]** de façon formelle selon **(1.41)** :

$$\sigma_{eh}^{ij} = \sum_{\vec{k}} \frac{\partial E}{\partial \eta_{ij}}(k) \times \delta n_e(\vec{k}) \tag{1.41}$$

où η_{ij} le tenseur de déformation mécanique, δn_e la variation d'électrons photo-induits sur le niveau s d'énergie $E(k)$ et $\frac{\partial E}{\partial \eta_{ij}}(k)$ le coefficient de couplage de déformation de potentiel associé au niveau $E(k)$; on aura une expression similaire pour les trous [18] :

17. On définit une intégrale de recouvrement dont la valeur est liée à la distribution électronique dans des orbitales à lobe dit négatif ou positif

18. La contrainte de déformation de potentiel se réécrit aussi considérant les facteurs de Gruneisen [52]. On a tout d'abord : $\sigma_{eh}^{ij} = \sum_{\vec{k}} \left(\frac{\partial E}{\partial \eta_{ij}}(k) \right) \times \delta n_e(\vec{k})$ qui donne en utilisant ces facteurs en :

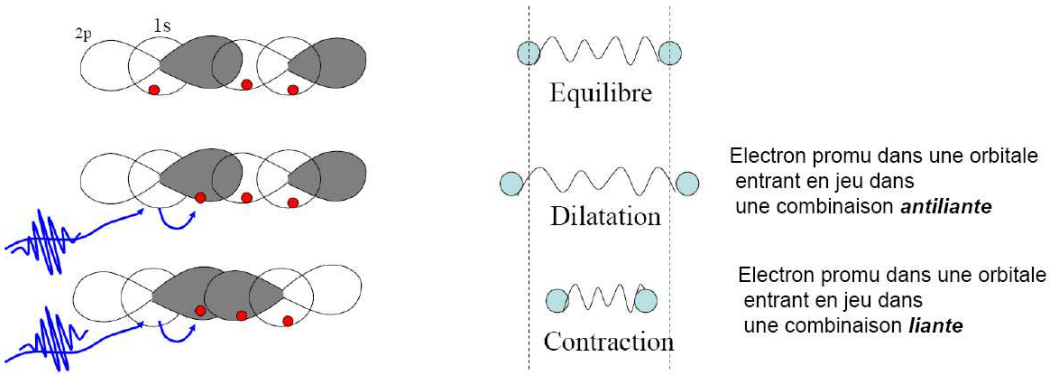


FIGURE 1.12 – Utilisation du modèle des orbitales moléculaires pour illustrer la contrainte de déformation de potentiel, les points rouges symbolisent des électrons situés dans les différentes orbitales. Selon que l'électron est promu en orbitale donnant une combinaison liante avec une autre orbitale (***schématisation du bas***) ou donnant une combinaison antiliante avec une seconde orbitale (***schéma du milieu***), la liaison, donc la structure sera déstabilisée (dilatation) ou confortée (contraction -recouvrement de lobes positifs grisés- et raccourcissement de la longueur inter-atomique

$$\sigma_{eh}^{ij} = \sum_{\vec{k}} \frac{\partial E}{\partial \eta_{ij}}(k) \times \delta n_h(\vec{k}) \tag{1.42}$$

Il faut bien voir que cette contrainte apparait dès lors qu'un plasma de porteurs de charges est généré par le laser. Il a été vu dans la partie précédente (1.2) relative à l'effet thermo-élastique, que les électrons (trous), lorsqu'ils relaxent (relaxation intrabande) vers des niveaux d'énergie plus bas (jusqu'au bas de la bande de conduction), cèdent de l'énergie via une émission de phonons. La contrainte de déformation de potentiel existe tout au long de ces processus de relaxation électronique puisque les électrons, lors de ces "retombées successives" (figures **1.13** et **1.8**), restent, lors de ces passages sur des paliers successifs, dans des états *métastables* successifs. Temporellement, cette contrainte de déformation

---

$$\gamma_k^{el} = \frac{1}{E(k)} \times \left(\frac{\partial E}{\partial \eta}(k) \right) \equiv \frac{\partial LnE}{\partial \eta}(k)$$

$$\gamma_q^{ph} = \frac{1}{\omega_q} \times \frac{\partial \omega_q}{\partial \eta}$$

on trouve donc une expression un peu différente de la contrainte de déformation de potentiel :

$$\sigma_{eh}^{ij} = \sum_{\vec{k}} E(k) \times \gamma_k^e \times \delta n_e(\vec{k})$$

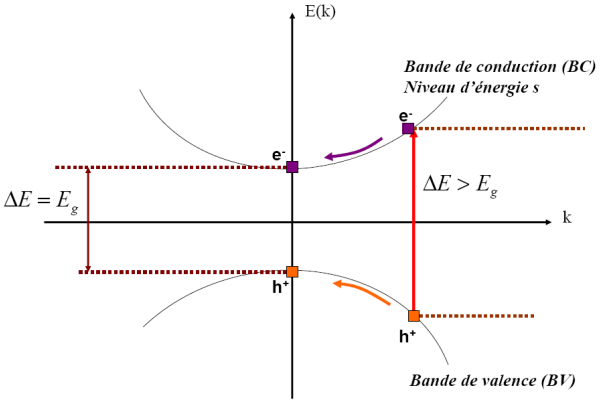


FIGURE 1.13 – Diagrammes E(k) d'un semi-conducteur à gap direct avec présentation des bandes de conduction (BC) et de valence (BV) et d'un niveau d'énergie décrit par (k, s) (il en existe de multiples). $\Delta E > E_g$ correspond à une irradiation au dessus de la valeur de l'énergie de gap E_g.

de potentiel apparait donc avant celle de l'effet thermo-élastique. Dans les faits, et d'une manière générale pour les semi-conducteurs, les processus intrabandes ($e^-|e^-$ et $e^-|ph$) étant trés rapides ($\leq 100fs$), il est considéré le plus souvent que l'état métastable des porteurs qui contribue de façon majoritaire à la génération d'ondes acoustiques est celui où les électrons [*resp.* et les trous] résident en bas de bande de conduction [*resp.* en haut de bande de valence]. Dans ce cas alors l'expression donnée en **(1.41)** se réduit, considérant sa forme non tensorielle, à l'expression donnée en **(1.43) [9]** :

$$\sigma_{eh}^{ij} = \sum_{\vec{k}} \frac{\partial E_g}{\partial \eta_{ij}} \times \delta n_e(\vec{k}) \equiv -B \times \frac{\partial E_g}{\partial P} \times \delta_{ij} \times \delta n_e \tag{1.43}$$

où P est la pression thermodynamique, où E_g est l'énergie de gap, et où la variation de densité de porteurs de charges photo-induites δn_e est égale à la densité des électrons photo-excités N_e ($\delta n_e \equiv N_e$), où $\delta_{ij} = \left\{0 \ si \ i \neq j, 1 \ si \ i = j\right\}$ est le symbole de Kronecker.

L'expression **(1.43)** est alors équivalente à **(1.44)** :

$$\sigma_{eh} = -B \times N_e \times \left(\frac{\partial E_g}{\partial P}\right) \tag{1.44}$$

En introduisant la constante d_{eh} dite de déformation de potentiel **[9]**, on trouve une expression équivalente à **(1.44)**, reliant la cause (existence d'une distribution en état *métastable* en bas de bande de conduction BC) à un effet (existence d'une contrainte) :

$$\sigma_{eh} = -d_{eh} \times N_e \tag{1.45}$$

Selon le semi-conducteur considéré, le coefficient d_{eh} peut être positif ou négatif; ceci différencie clairement ce type de contrainte de la contrainte thermo-élastique par exemple.

1.3.3 Ratio σ_{eh} / σ_{th} en zone de Brillouin centrale en fonction de différents paramètres

En centre de zone de Brillouin, le rapport des normes σ_{eh} / σ_{th} est similaire en termes de valeurs numériques pour trois composés types Si, GaAs et As_2Te_3. La seule différence est que l'on a σ_{eh} / σ_{th} positif seulement pour GaAs à la différence des deux autres composés, où σ_{eh} / σ_{th} est négatif (Si et As_2Te_3). Le rapport traduisant la prédominance d'un mécanisme sur l'autre dépend aussi de la longueur d'onde de pompage optique [9] [49]. Pour calculer ce rapport, on réécrit l'expression **(1.26)** en **(1.46)** :

$$\sigma_{th} = -3B\beta\frac{(E - E_g)}{C_V} \tag{1.46}$$

Utilisant cette expression **(1.46)** et **(1.44)**, on trouve le rapport de la contribution liée à la contrainte de déformation de potentiel sur la contribution liée à la contrainte thermo-élastique.

$$\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}} = \left(\frac{C_V}{3\beta}\right) \cdot \left(\frac{\partial E_g}{\partial P}\right) \cdot \left(\frac{1}{E - E_g}\right) \tag{1.47}$$

On aura, en effectuant l'application numérique :

$$\left(\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}}\right)_{GaAs} \approx 70 \ si \ \lambda_{pompage} \approx 800nm \tag{1.48}$$

$$\left(\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}}\right)_{GaAs} \approx 6 \ si \ \lambda_{pompage} \approx 400nm \tag{1.49}$$

On remarque donc que dans le cas de ce calcul illustratif pour un gap direct, pour le GaAs, on a $\sigma_{eh} >> \sigma_{th}$. Cette prédiction théorique sera illustrée et confirmée dans le chapitre 3, chapitre dans lequel des expériences originales seront présentées. L'expression **(1.47)** fait apparaitre le terme $\frac{\partial E_g}{\partial P}$ qui dépend de la vallée où se déroule la transition interbande. Il existe en effet trois vallées en bande de conduction dans le cas de GaAs et le coefficient $\frac{\partial E_g}{\partial P}$ [19] dépend de la vallée considérée pour la transition optique à prendre

19. L'énergie de gap dépend de la température [53], et notamment à basse température, les gap sont considérés comme plus "résonants", par des vallées plus "*piquées*" et plus "*étroites*" qu'à température ambiante

en compte (valeur de 9 x 10^{-11} eV.Pa^{-1} en vallée Γ du GaAs par exemple). On utilisera ainsi des valeurs différentes ($\left(\frac{\partial E_g^\Gamma}{\partial P}\right)$, $\left(\frac{\partial E_g^L}{\partial P}\right)$, etc.) selon la vallée considérée[20].

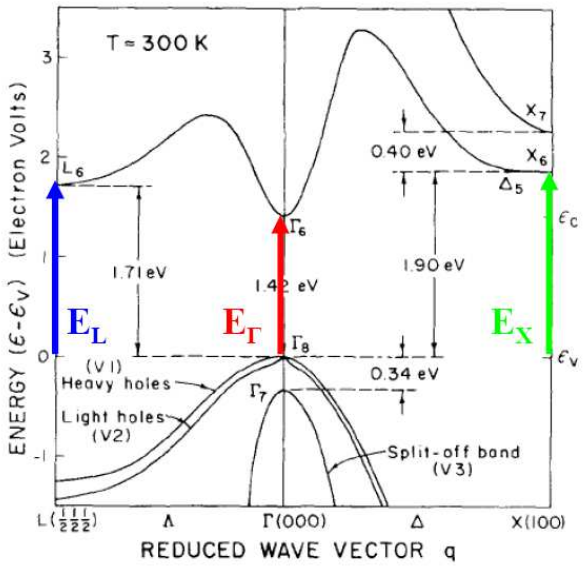


FIGURE 1.14 – Diagramme de bande de GaAs tiré de [41] ; diagramme $E(k)$ montrant l'existence de 3 vallées (L, Γ et X) pour la bande de conduction. Les propriétés optiques de GaAs varient fortement avec la longueur d'onde (donc de l'énergie E) de la radiation excitatrice. On a ici le gap direct E_Γ, et les deux autres transitions entre la bande de valence (VB) et les différentes vallées de la bande de conduction (CB), [41]

1.3.4 Dynamique des porteurs de charges

Nous avons vu en (1.3.2) que la contrainte de déformation de potentiel, dans le cas des semi-conducteurs dépend de la densité N_e. Compte tenu de la dynamique des porteurs de charge (existence de la diffusion, du transport balistique, ...), il faut aussi exprimer le fait que la densité de porteurs photo-excités soit fonction de z et de t. Nous allons dans ce court paragraphe développer des éléments permettant d'établir l'expression gouvernant la dynamique de la densité de porteurs (donnée en **(1.56)**).

La figure **1.15** montre la situation avant diffusion [21] ; on y retrouve la zone photo-excitée avant diffusion éventuelle (empreinte brute de la profondeur de pénétration optique ξ présentée en figure **1.9** et contenant la distribution de population électronique hors équilibre immédiatement après le temps zéro de la photo-excitation). A cause de la diffusion, le

20. On notera, pour information, que $\left(\frac{\partial E_g}{\partial P}\right)$ est habituellement un coefficient positif (exemple des verres chalcogénures)

21. On utilise la condition limite $\vec{j}(z=0,t) = \vec{0}$ en $z = 0$ sur le profil après diffusion

profil de distribution est modifié et on a une zone plus large contenant les porteurs de charges, et en corrélation avec cet élargissement de profil, un contenu fréquentiel plus bas que celui pouvant être obtenu avec l'empreinte fréquentielle brute issue de la profondeur de pénétration optique ξ, ceci tout de suite après l'irradiation laser et avant tout phénomène ultérieur (balistique, diffusif, etc...) [54].

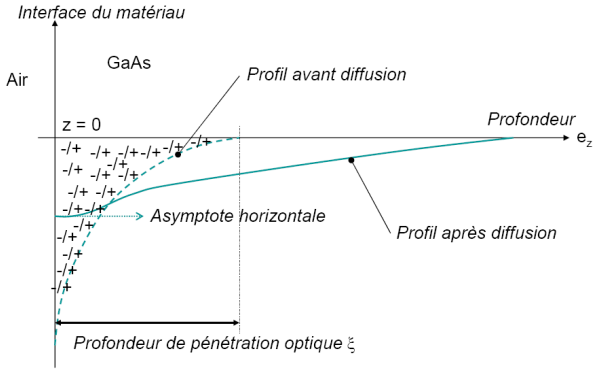


FIGURE 1.15 – Diffusion et impact de la diffusion sur le profil du champ de déformation photo-induit ; profondeur de pénétration à $t = 0$ ps ; asymptote horizontale

De manière similaire à la situation où nous nous sommes intéressés à la profondeur où se produit le chauffage du cristal après absorption d'une impulsion lumineuse femtoseconde, l'extension spatiale du plasma électron-trou hors équilibre va influencer en effet le contenu fréquentiel des ondes acoustiques photo-induites. Similairement à l'expression **(1.29)**, la fréquence caractéristique des ondes acoustiques photo-induites via le processus de déformation de potentiel sera définie par :

$$f \equiv \frac{C_a}{l} \tag{1.50}$$

où l correspond à l'extension du plasma e^-/h^+ dans le réseau cristallin du semi-conducteur, et où C_a est la vitesse longitudinale du son dans le matériau. Dans le cas des semi-conducteurs, l est principalement déterminée par les propriétés de diffusion du plasma électron-trou. Les variations spatio-temporelles de la concentration $N_e(z,t)$ en plasma obéissent à des équations que nous allons présenter dans ce qui suit.

Si *Recombinaison* désigne un terme de recombinaison, et si *Source* représente un terme de source (cas le plus général), $\mathbf{j}$ le vecteur densité de flux, D_{eh} le coefficient de diffusion ambipolaire [49] des porteurs de charge défini par l'équation **(1.51)** :

$$D_{eh} = \frac{1}{\mu_e + \mu_h} \times (\mu_e D_h + \mu_h D_e) \tag{1.51}$$

alors N_e, densité de porteurs photoexcités respecte l'équation de continuité :

$$div(\vec{j}) + \frac{\partial N_e}{\partial t} = Source + Recombinaison \tag{1.52}$$

La loi de Fick indique par ailleurs que :

$$\vec{j} = -D_{eh} \times \vec{Grad}\, N_e \tag{1.53}$$

On obtient l'équation typique gouvernant la densité de porteurs de charges photo-induites électroniques :

$$-div(D_{eh} \times \vec{Grad}\, N_e) + \frac{\partial N_e}{\partial t} = Source + Recombinaison \tag{1.54}$$

qui est équivalente à :

$$-D \times \Delta N_e + \frac{\partial N_e}{\partial t} = Source + Recombinaison \tag{1.55}$$

Soit :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t}(z,t) = D_{eh} \times \frac{\partial^2 N_e}{\partial z^2}(z,t) - \frac{1}{\tau_R} \times N_e(z,t) + \frac{(1-R)}{h\upsilon_L} \times I_L \times f(t) \times e^{-az} \tag{1.56}$$

où τ_R est un temps de recombinaison du plasma électron trou [55]. Le premier terme du membre de droite de **(1.56)** est relatif à la diffusion des paires électrons-trous, le second relatif à la recombinaison du plasma, et le troisième terme est un terme de source dû à l'irradiation laser [50]. $h\nu_L$ est l'énergie du photon de pompe, f(t) le profil temporel d'intensité du laser, e^{-az} la décroissance d'intensité dûe à la pénétration optique dans le matériau.

En plus des équations précédentes, il faut ajouter celles liées aux conditions aux limites. Pour un système semi-infini, les phénomènes à l'interface (en $z = 0$), considérant une vitesse de recombinaison surfacique S nulle et le gradient de densité $\frac{\partial N}{\partial z}$, sont modélisables à tout instant par :

$$D_{eh} \times \frac{\partial N}{\partial z}(t, z = 0) = 0 \tag{1.57}$$

La concentration en porteurs de charges photo-excités N_e, utilisée dans les relations de dynamique spatio-temporelle **(1.56)**, diminue par recombinaison de charges (électron-trou). Elle peut être augmentée par une variation de la fluence excitatrice du faisceau de pompe (si l'intensité du champ optique est augmentée). La présence de dopant dans le matériau conditionne de même le temps de recombinaison des électrons et des trous. Dans le cas où la densité de porteurs photo induits N_e est très supérieure à la densité de

dopants N_d, l'effet des dopants sera alors de faible impact. Différentes situations existent et il faut examiner au cas par cas les configurations expérimentales et dégager les hypothèses simplificatrices nécessaires.

1.4 Contrainte piézo-électrique

En 1880, Pierre et Jacques Curie établissent que "certains cristaux, (...) soumis à une pression, dans des directions particulières, voient apparaître des charges positives et négatives sur certaines portions de leur surface. Ces charges sont proportionnelles à la pression et disparaissent quand la pression cesse". Il s'agit de l'effet piézo-électrique direct : la pression extérieure polarise la matière, selon un processus réversible.

La piézo-électricité par effet inverse fut prédite en 1881 par Lord Kelvin, et vérifié expérimentalement par Pierre et Jacques Curie en 1887 ; Duhem, Pockels et Voigt (en 1894) établissent le formalisme relatif à la piézo-électricité , puis ce dernier pose les définitions en 1910 de 20 classes cristallines et de la constante de piézo-électricité [22].

La contrainte piézo-électrique est créée dans les systèmes non-centrosymétriques [23], quand il existe un champ, qui peut être appliqué (via un dispositif externe : électrodes déposées ou autres) ou en créant un transitoire de champ électrique (excitation optique et écrantage de E_{bif}).

1.4.1 Définition de la contrainte

On définit la contrainte piézo-électrique σ_{jk}^{piezo} [56] par l'écriture tensorielle suivante :

$$\sigma_{jk}^{piezo} = e_{ijk} \times E_i \tag{1.58}$$

e_{ijk} est le module de piézo-électricité et E_i les composantes du champ électrique. Le signe de e_{ijk} est fixé par une convention d'orientation : l'axe $< 111 >$ est orienté positivement en partant de l'atome de type métallique vers le premier voisin non-métallique du motif [24] ; c'est cette convention arbitraire qui permet d'orienter positivement l'axe $< 111 >$ de l'atome de Ga vers l'atome de As, et donc de fixer le signe de e_{ijk}.

Le tenseur de piézo-électricité est symétrique en j et en k :

$$e_{ijk} = e_{ikj} \tag{1.59}$$

22. *Lehrbuch der Kristallphysik*, Woldemar Voigt, publié en 1928, B. G. Teubner (Leipzig, Berlin), traitant du quartz, du topaze, et de la tourmaline

23. par application du principe de Curie

24. GaAs : cas de matériau binaire à structure ZnS blende

C'est un tenseur de rang 3 dont les coefficient s'expriment en $C.m^{-2}$.

e_{ijk} se réécrit en une forme matricielle (forme tensorielle réduite [25]) $e_{i\alpha}$, dont les composantes sont constituées de 3 lignes et de 6 colonnes : on a $i \in \{1,2,3\}$ et $\alpha \in \{1,...,6\}$. On aura alors, si $\alpha = \{j;k\}$:

$$\sigma_{\alpha}^{piezo} = e_{i\alpha} \times E_i \tag{1.60}$$

Le tenseur piézo-inverse réduit $e_{i\alpha}$ s'exprime de la manière la plus générale [26] par la notation matricielle à deux indices suivantes :

$$e_{i\alpha} = \begin{pmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{13} & e_{14} & e_{15} & e_{16} \\ e_{21} & e_{22} & e_{23} & e_{24} & e_{25} & e_{26} \\ e_{31} & e_{32} & e_{33} & e_{34} & e_{35} & e_{36} \end{pmatrix} \tag{1.61}$$

Il est possible, considérant la classe de symétrie cristalline du composé de réduire le nombre de composantes de cette matrice donnée en **(1.61)**, qui décrit le cas le plus général.

1.4.2 Réduction du tenseur piézo-inverse par utilisation de la classe de symétrie -43m

L'unité cubique élémentaire cristallographique du GaAs est donnée en figure **1.16**. Il s'agit d'une structure cubique face centrée avec un atome situé en coordonnées (0,0,0) et un second premier atome voisin différent localisé en (1/4 , 1/4 , 1/4) dans le repère orthonormé direct constitué des trois axes liés aux directions principales cristallographiques $< hkl >$: $< 100 >$ (axe $\vec{e}_1$), $< 010 >$ (axe $\vec{e}_2$) et $< 001 >$ (axe $\vec{e}_3$). Le motif de base [27] sera tétraédrique : un site tétraédrique sera rempli par un atome et les sommets du tétraédre seront constituées de 4 atomes, de nature différente de celui disposé en centre de tétrèdre, et participant à part égales à 4 motifs voisins.

On effectue une réduction du tenseur réduit donné en **(1.61)** par utilisation des propriétés de la classe de symétrie cristalline du cristal considéré, c'est-à-dire GaAs, qui

25. On utilise les notations de Voigt, qui explicite :

$$\begin{cases} 11 \rightarrow 1 \\ 22 \rightarrow 2 \\ 33 \rightarrow 3 \end{cases} \quad et \quad \begin{cases} 32 ou 23 \rightarrow 4 \\ 31 ou 13 \rightarrow 5 \\ 21 ou 12 \rightarrow 6 \end{cases}$$

26. dans le repère constitué des trois axes pris dans les trois directions principales cristallographiques $< 100 >$, $< 010 >$ et $< 001 >$

27. présent dans l'unité cubique élémentaire présentée en figure **1.16**

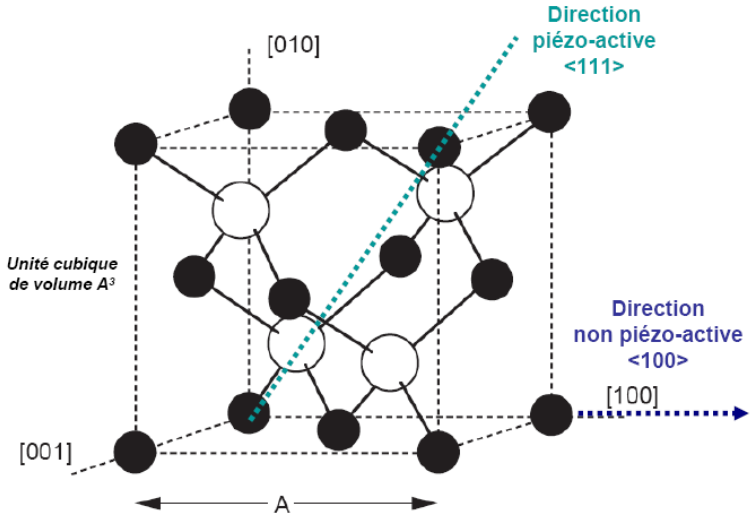


FIGURE 1.16 – Unité cubique élémentaire de GaAs de volume A^3 quatre fois plus grand que la maille primitive cubique usuelle tiré de [41] ; structure de type *cubique sphalérite* ou *zinc blende* ; composition par deux sous réseaux cubiques faces centrés (CFC) décalés l'un par rapport à l'autre d'une distance valant la moitié de la diagonale d'un des cubes CFC ; paramètre de maille : $0,565nm$

appartient au groupe ponctuel cubique ne possédant pas de centres de symétrie et désigné (-43m). Un groupe ponctuel contient les opérations de symétrie qui laissent invariantes la morphologie du cristal et ses propriétés physiques. En utilisant un repère de transformation orthonormé (figure **1.18**), puis le principe de Neumann, et enfin les notations de Voigt, on peut *in-fine* écrire la matrice représentative du tenseur par :

$$e_{i\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{36} \end{pmatrix} \tag{1.62}$$

Les coefficients étant égaux entre eux, on aura alors $e_{14} = e_{25} = e_{36}$:

$$e_{i\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} \end{pmatrix} \tag{1.63}$$

Cette expression permet d'introduire un certain nombre de simplifications dans les calculs tensoriels relatives au cas du GaAs.

Dans les matériaux piézo-électriques, la photo-génération de phonon peut être accomplie si on réussit à générer un transitoire de champ électrique. Ce transitoire de champ électrique peut avoir différentes origines, soient liées à l'écrantage d'un champ pré-existant

(de reconstruction : *built in field*), appliqué extérieurement, ou lié à la séparation spatiale de charges présentant des coefficients de diffusion différents (champ de Dember). Nous allons ici présenter différentes situations, qui en fonction des symétries cristallines et des champs électriques existants, permettent selon la théorie de générer, ou non, des ondes acoustiques de différents types (L,T).

1.4.3 Situation physique en l'absence de champs électriques imposés artificiellement au système

On considérera la situation physique décrite par la figure **1.17**, où figurent les faisceaux de pompe et de sonde, et il sera utilisé le repère local donné par la figure **1.18** ; où $\vec{e}_3$ désigne la coordonnée de profondeur.

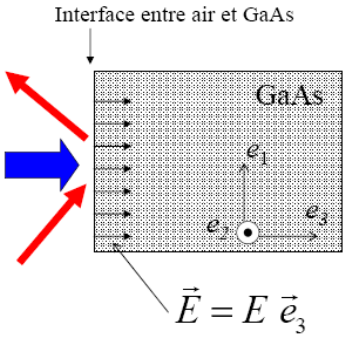


FIGURE 1.17 – Situation physique avec faisceaux de pompe et de sonde ; orientation du champ E interne à l'échantillon

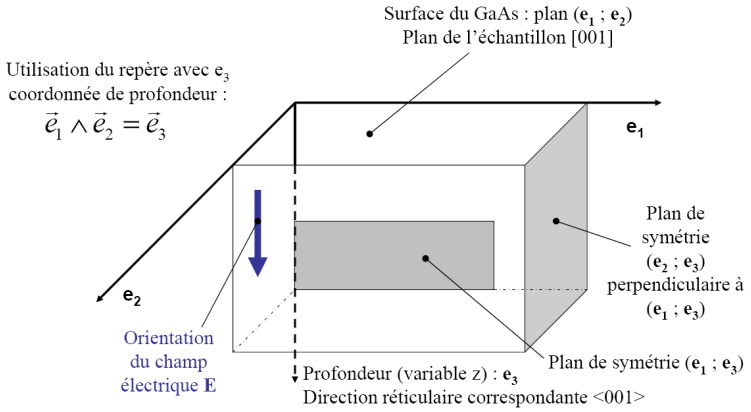


FIGURE 1.18 – Description géométrique de l'échantillon ; description du repère cristallographique ; axes du repère

En l'absence de champ externe appliqué au système ou d'irradiation laser, on ne consi-

dèrera seulement le champ électrique de reconstruction de surface (E_{bif}) comme existant dans la matière et décrit par **(1.64)**. En présence d'une irradiation laser, on considèrera un champ E_{bif} écranté (champ électrique transitoire total considéré alors : E_3) par le champ induit par le faisceau optique :

$$\vec{E}(M) = E_3 \cdot \vec{e}_3 \tag{1.64}$$

où $\vec{e}_3$ correspond à l'axe normal à la surface et dirigée vers le fond du substrat de GaAs, et M un point repéré par ses coordonnées géométriques. Donc, on aura $i = 3$ et la seule composante ligne utilisée sera celle correspondant à la coordonnée dite de profondeur z. On a alors :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad \begin{matrix} \vec{e}_1 \\ \vec{e}_2 \\ \vec{e}_3 \end{matrix} \tag{1.65}$$

En considérant donc $\vec{E} = E_3 \cdot \vec{e}_3$, donc la valeur d'indice $i = 3$, et en utilisant le tenseur réduit $e_{i\alpha}$, on a :

$$\sigma_\alpha = e_{i\alpha} \cdot E_i \;\; \Rightarrow \;\; \sigma_\alpha = e_{3\alpha} \cdot E_3 \tag{1.66}$$

Le produit tensoriel donne donc :

$$\sigma_6 \equiv e_{36} \cdot E_3 \tag{1.67}$$

D'où l'expression de la déformation pour $j = 6$ seule composante de la déformation non nulle, ceci en utilisant les notations de Voigt [28] :

$$\sigma_6 = e_{14} \cdot E_3 \equiv \sigma_{12} = \sigma_{21} \tag{1.68}$$

Les composantes σ_{12} et σ_{21} sont donc générées au sein du cristal. Mais elles ne peuvent causer un mouvement, car ce mouvement nécessite un gradient des quantitées σ_{12} et σ_{21}. L'équation d'onde est donnée par :

$$\rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} - C_{jkip} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_p} = \frac{\partial \sigma_{jk}^{piezo}}{\partial x_k} \tag{1.69}$$

Dans le cas du GaAs [100], σ_{12} peut potentiellement induire un mouvement de réseau le long de l'axe $\vec{e}_1$, mais l'expression du gradient est cependant nulle, dans cette direction :

28. et le fait que $e_{36} = e_{14}$ pour le groupe de symétrie (-43m)

$$\frac{\partial \sigma_{12}}{\partial x_2} = e_{14}\frac{\partial E_3}{\partial x_2} = 0 \tag{1.70}$$

car, on a $\frac{\partial E_3}{\partial x_2} = 0$. Toujours considérant un cristal de GaAs [100], σ_{21} peut de même potentiellement induire un mouvement de réseau selon $\vec{e}_2$, mais le gradient est aussi nul, d'où :

$$\frac{\partial \sigma_{21}}{\partial x_1} = e_{14}\frac{\partial E_3}{\partial x_1} = 0 \tag{1.71}$$

car, on a $\frac{\partial E_3}{\partial x_1} = 0$.

En conséquence de **(1.71)** et de **(1.70)**, il ne peut y avoir de génération ni d'ondes longitudinales, ni d'ondes transverses par excitation piézo-électrique inverse lié à l'écrantage du champ (de reconstruction de surface E_{bif} ou de Dember E_D).

1.4.4 Situation physique considérée en présence d'un champ électrique appliqué externe imposé au système

On montre en revanche que si l'on applique un champ électrique externe E_a selon la direction $\vec{e}_1$ décrite en figure **1.18**, on peut théoriquement générer une contrainte et un déplacement acoustique transverse T. En effet, très succintement, on a un champ électrique global composé de deux termes, comme l'explicite **(1.72)** :

$$\vec{E}(M) = E_{bif}(M)\vec{e}_3 + \vec{E}_a = E_3\vec{e}_3 + E_a\vec{e}_1 \tag{1.72}$$

donc, un vecteur décrivant le champ total explicité par :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_a \\ 0 \\ E_3 \end{pmatrix} \quad \begin{matrix} \vec{e}_1 \\ \vec{e}_2 \\ \vec{e}_3 \end{matrix} \tag{1.73}$$

où $\vec{e}_1$ est un des deux vecteurs colinéaires à la surface de l'échantillon et $\vec{e}_3$ est le vecteur permettant de repérer la profondeur dans le substrat. L'expression **(1.72)** implique, en utilisant la matrice piézo-inverse donnée en **(1.62)**, ceci pour le GaAs en symétrie -43m :

$$\sigma_\alpha = e_{i\alpha} \cdot E_i = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14}E_a & 0 & e_{36}E_3 \end{pmatrix} \tag{1.74}$$

On remarque alors l'existence de deux composantes, selon les indices $j = 4$ et $j = 6$. On aura donc les composantes précisées en **(1.75)**, dans le cas où un champ électrique externe est appliqué selon la composante $\vec{e}_1$:

$$\begin{cases} \sigma_4 = e_{14} \cdot E_1 = \sigma_{32} = \sigma_{23} \\ \sigma_6 = e_{36} \cdot E_3 = \sigma_{12} = \sigma_{21} \end{cases} \tag{1.75}$$

Considérant l'expression **(1.75)**, l'existence d'un champ électrique appliqué selon $\vec{e}_1$ induit des contraintes additionnelles σ_{32} et σ_{23} ; ces contraintes peuvent induire un mouvement du réseau, s'il existe un caractère d'inhomogénéité, c'est-à-dire s'il existe un gradient de σ_{32} pouvant générer un déplacement du réseau cristallin selon l'axe $\vec{e}_3$. Or :

$$\frac{\partial \sigma_{32}}{\partial x_2} = e_{14} \frac{\partial E_1}{\partial x_2} \neq 0 \tag{1.76}$$

Il est donc envisageable de générer un mouvement selon $\vec{e}_3$. De même, le gradient de la contrainte σ_{23} peut générer un mouvement du réseau le long de $\vec{e}_2$, car :

$$\frac{\partial \sigma_{23}}{\partial x_3} = e_{14} \frac{\partial E_1}{\partial x_3} \neq 0 \tag{1.77}$$

Il est posible de générer un mouvement selon $\vec{e}_2$, si le champ externe appliqué $\vec{E}_a$ varie avec la distance à la surface, c'est-à-dire si $\frac{\partial \vec{E}_a}{\partial x_3} \neq 0$.

Il y alors possiblité de générer une onde transverse (mode T) propageant selon la direction $\vec{e}_3$.

Cette étude par application d'un champ extérieur sur un système a été menée en 1994 avec succès par Telenkov et al. [57] en générant des ondes transverses dans un cristal de CdS *de classe de symétrie différente cependant de GaAs : classe de symétrie 6mm* [56], sur lequel deux électrodes de 1 cm de largeur avaient été déposées et entre lesquelles une différence de potentiel était appliquée. Il s'agissait néammoins d'une étude réalisée avec des impulsions de 10 ns à mi-hauteur de pulse. Un des challenges actuel est de générer optiquement par ce type de contrainte piézo-électrique, mais à des échelles de temps picosecondes.

1.4.5 Situation physique considérée en l'absence de champ électrique appliqué externe au système, dans la direction cristallographique $< 111 >$

L'équation **(1.69)** est valide dans tous les sytèmes de coordonnées ; la relation **(1.58)** est également valide en tout repère. On aura donc, en utilisant ces deux équations :

$$\rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} - C_{jkip} \frac{\partial u_k}{\partial x_i \partial x_p} = e_{ijk}^{piezo} \frac{\partial E_i}{\partial x_k} \tag{1.78}$$

Si l'on a seulement le champ électrique de reconstruction $\vec{E}_{bif}$ qui existe selon $\vec{e}_3$, c'est-à-dire si $i = 3$, on aura $\vec{E} = E_3\vec{e}_3$, ce qui donne :

$$e_{ijk}^{piezo}\frac{\partial E_i}{\partial x_k} = e_{3jk}\frac{\partial E_3}{\partial x_k} \tag{1.79}$$

Si le champ de reconstruction $E_3\vec{e}_3$ est homogène le long de la surface, alors $\frac{\partial E_3}{\partial x_2} = \frac{\partial E_3}{\partial x_1} = 0$. On aura seulement :

$$\frac{\partial E_3}{\partial x_3} \neq 0 \tag{1.80}$$

Il vient alors :

$$e_{ijk}^{piezo}\frac{\partial E_i}{\partial x_k} = e_{3j3}\frac{\partial E_3}{\partial x_3} \tag{1.81}$$

Par transformation du tenseur de piézo-électricité inverse défini par l'expression **(1.58)**, selon un système de coordonnées où l'axe de profondeur $\vec{e}_3$ du repère local coïncide avec la direction cristallographique <111>, il est montré selon ce nouveau repère que :

$$e_{333} = e_{33} \neq 0 \tag{1.82}$$

L'annexe **6.3** détaille le calcul relatif à ce changement des composantes du tenseur de piézo-électricité e_{ijk} lors du changement de repère, par passage d'un repère où l'axe $\vec{e}_3$ est colinéaire à l'axe cristallographique principale <001> à un repère où $\vec{e}_3$ est colinéaire à l'axe cristallographique secondaire <111>.

En conséquence de l'expression **(1.82)**, la piézo-génération des ondes acoustiques longitudinales selon cet axe (qui correspond alors à la direction <111>), est possible, par écrantage photo-induit du champ de reconstruction E_{bif}, ou par écrantage de E_D.

En bilan de ces calculs, on affirmera que GaAs [100] n'est pas piézo-actif, considérant un champ de reconstruction $\vec{E}$ dirigé selon $\vec{e}_3$, champ électrique qui sera défini plus loin dans cette étude [29]. De même, en effectuant des calculs similaires, on trouve que le GaAs [111] est piézo-actif. Les inhomogénéités (existence ou non de gradients de champ) conditionnent la possibilité de générer des ondes.

Cette contrainte sera tout particulièrement utilisée pour décrire les phénomènes piézo-électriques dans le GaAs [111], ce qui sera traité en chapitre 4.

29. Dans cette direction [100], si le champ est parallèle à la surface (par exemple $\vec{E} = E_1\vec{e}_1$), on s'attend a-priori à observer des modes piézo-acoustiques transverses, mais, si le champ est normal à la surface, la génération est inexistante. Un dispositif externe (électrodes) peut rendre -en théorie- envisageable la génération de phonons dans le GaAs [100]

1.5 Contrainte d'électrostriction

Ce type de contrainte est le reflet du gradient de la densité d'énergie volumique ($\frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_r E^2$) liée au champ électrique E de l'onde lumineuse, où ϵ_r est la permittivité diélectrique du matériau et ϵ_0 la permittivité diélectrique dans le vide. La force $\vec{F}_S$ correspondante à la contrainte définie en **(1.88)**, et détaillée par [50], possède une norme valant :

$$\left\|\vec{F}_S\right\| \cong \left\|G\vec{r}ad(\rho \cdot (\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}) \cdot E^2)\right\| \tag{1.83}$$

L'électro-striction est un effet dit de *second ordre*[30], considérant un *produit* de composante de champ électrique dans l'expression mathématique de la contrainte σ_{elec} (donnée en **(1.84)**), a-contrario de l'effet piézo-électrique qui est considéré comme un effet de *premier ordre* (linéarité à E et absence de produit de champ E dans l'expression de σ_{piezo}, voir l'expression **(1.58)**). L'électro-striction est une propriété des diélectriques due à l'existence de *domaines dits électriques* répartis aléatoirement dans ces matériaux. S'il existe un effet piézo-électrique inverse et direct, pour l'effet électrostrictif, une contrainte mécanique externe au matériau appliquée (traction de l'échantillon, ou déformation par torsion) ne pourra cependant pas créer de variation de polarité électrique. Cet effet est par ailleurs une voie de génération d'hypersons dans des cristaux optiquement transparents [58]. La contrainte mécanique induite par électrostriction est provoquée par la distortion de polarisation du réseau. On montre [60] par l'expression de la contrainte donnée en **(1.84)**, que celle-ci s'écrit en fonction des polarisations électriques P_k et P_l du milieu considéré selon la forme bilinéaire positive donnée par g_{ij}, qui traduit le couplage entre champs de polarisation électriques.

$$\begin{cases} \sigma_{ij}^{elec} = -g_{ij} \\ g_{ij} = q_{ijkl} \cdot P_k \cdot P_l \end{cases} \tag{1.84}$$

où q_{ijkl} est le tenseur d'électrostriction, symétrique en i et en j.

L'effet électrostrictif existe pour tous les diélectriques [61] [62], à la différence de l'effet piézo-électrique présent seulement dans les composés non-centro-symétrique. Ceci est du au fait que pour toutes les classes de symétrie de cristaux, il existe des composantes non nulles pour le tenseur q_{ijkl} donné en **(1.84)**. La plupart des descriptions phénomélogiques est rendue possible par l'utilisation des termes d'ordre le plus bas donnés en **(1.84)**. Dans des configurations de polarisation du matériau inhomogène, on inclut des termes à

30. comme l'effet Kerr optique où des termes d'ordre deux apparaissent dans le développement de la polarisation du milieu : $\vec{P} \equiv \varepsilon_0\chi_e^{(1)}\vec{E} + \varepsilon_0\chi_e^{(2)}\vec{E}^2 + ...$

gradient de polarisation, traduisant ces inhomogénéités locales [60] de cette polarisation, laissant apparaitre des tenseurs r_{ijkl} et s_{ijklmn} supplémentaires :

$$g_{ij} = q_{ijkl} \cdot P_k \cdot P_l + r_{ijkl} \cdot \frac{\partial P_k}{\partial x_l} + s_{ijklmn} \cdot \frac{\partial P_k}{\partial x_l} \cdot \frac{\partial P_m}{\partial x_n} + ... \tag{1.85}$$

L'expression mathématique donnée en **(1.84)** de la contrainte d'électrostriction peut être développée [63] en faisant apparaitre les champs D_k et D_l puis E_m et E_n. On écrit ainsi que **(1.84)** se réécrit en **(1.86)**, en utilisant le tenseur photo-élastique p_{klji} :

$$\sigma_{ij} \equiv \frac{1}{8\pi} \cdot p_{klji} \cdot D_k \cdot D_l \tag{1.86}$$

qui se développe [58] en **(1.87)** :

$$\sigma_{ij}^{elec} = \frac{1}{8\pi} \cdot p_{klji} \cdot \varepsilon_{km} \cdot \varepsilon_{\ln} \cdot E_m \cdot E_n \tag{1.87}$$

où ε_{km} est le tenseur diélectrique.

Essayons de comparer les ordres de grandeurs relatifs des effets électrostrictifs et des effets de déformation de potentiel pour le GaAs. On approxime pour les besoins de ce calcul d'ordre de grandeur **(1.87)** en **(1.88)**. $|\bar{p}|$ correspond à la valeur moyenne temporelle du tenseur photo-élastique [58] [64] :

$$\sigma_{elec} \approx \frac{1}{8\pi} . n^4 . |\bar{p}| . \left\langle E^2 \right\rangle \tag{1.88}$$

Effectuons une estimation numérique de **(1.88)**. Dans le cas de GaAs, on a n $\approx$ 3,6 à 800 nm ; on prendra (modélisation) : $\tau_L \approx 100fs$, $I_0^{'} \approx 1$ mJ.cm^{-2}, et $|\bar{p}| \approx 0,1$ (d'après [58]) :

$$\left\langle E^2 \right\rangle \approx \frac{4\pi I_0}{n.c} \times \frac{4n}{(1+n)^2} \approx 8 \times 10^5 SI \tag{1.89}$$

La contrainte générée par électrostriction [23] [26] est ainsi en réalité faible en ordre de grandeur par comparaison à la contrainte générée par déformation de potentiel (voir l'expression (1.47)) dans le cas de GaAs, on trouve en effet :

$$\sigma_{elec} \approx 6 \times 10^5 N.m^{-2} \left\langle \left\langle \sigma_{eh} \approx 10^7 N.m^{-2} \right. \right. \tag{1.90}$$

Ayant détaillé différentes voies de génération de phonons par différents types de contraintes, nous allons maintenant expliciter les spectres de phonons acoustiques photo-excités, selon divers cas de figures physiques.

1.6 Spectre des phonons acoustiques photo-excités dans le cas d'un mécanisme de déformation de potentiel prédominant, avec recombinaison volumique du plasma

Dans cette partie, les expressions générales relatives à la contrainte σ et à la déformation acoustique $\eta(z,t)$ sont données. Les hypothèses recevables permettant d'établir l'expression du spectre de $\eta(z,t)$ sont décrites et listées dans cette partie. L'expression du déplacement $u(z,t)$ sera donné et la forme $\tilde{\eta}(\omega,p)$, où p est le paramètre de Laplace, et ω la pulsation, sera donnée. L'impact de deux facteurs physiques (τ_R et D_{eh}) sur le spectre en amplitude de $\eta(z,t)$ sera donné via des représentations graphiques basées sur les formules théoriques obtenues précédemment. Si les expressions générales de $\eta(z,t)$ et de $\sigma(z,t)$ sont utilisées et appliquées au cas de la contrainte de déformation de potentiel (expressions communément admises), elles seront également mises en oeuvre pour décrire la contrainte piézo-électrique, type de contrainte dont les développements théoriques sont relativement moins bien affirmés et établis. Ces expressions relatives à la piézo-électricité seront donc données en chapitre 4.

1.6.1 Expression du spectre de déformation acoustique

Le spectre de déformation, de contrainte, ou de déplacement lié à l'existence de phonons se propageant dans le matériau s'exprime par plusieurs formes mathématiques, selon les hypothèses physiques retenues. Dans ce qui suit, on va établir le spectre de phonons acoustiques cohérents considérant le cas d'un phénomène de déformation de potentiel prédominant, avec existence d'une recombinaison volumique (électron-trous), et en l'absence de recombinaison de surface.

Plusieurs hypothèses sont retenues :

- Absence de sources thermoélastiques (σ_{th} négligeable)
- Absence de recombinaison de surface ($\frac{\partial N}{\partial z}(z=0,t)=0$)
- Déformation de potentiel considéré comme phénomène prédominant (σ_{eh} prédominant)
- Existence d'une recombinaison volumique de charges
- Système physique considéré comme semi-infini et sans dépôt sur le substrat de GaAs (coordonnée de profondeur z seule considérée comme pertinente)

On rappelle en **(1.91)** les équations de base utilisées dans la suite :

$$\left\{\begin{array}{c} \rho\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}(z,t) - \rho C_a^2 \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}(z,t) = \frac{\partial \sigma}{\partial z}(z,t) \\ \frac{\partial N}{\partial t}(z,t) = D_{eh}\frac{\partial^2 N}{\partial z^2}(z,t) - \frac{1}{\tau_R}\cdot N(z,t) + \alpha \cdot \frac{(1-R)}{h\nu_L}\cdot I_L \cdot f(t)\cdot e^{-\alpha z} \\ \frac{\partial N}{\partial z}(0,t) = 0 \end{array}\right. \tag{1.91}$$

On utilise les transformations de Fourier et de Laplace, les conditions limites, les processus d'intégration par la méthode des résidus et les conditions physiques sur les ondes (conditions physiques acceptables ou non : par exemple, absences d'ondes se propageant des profondeurs du matériau vers la surface du substrat...etc.).

La transformation de Fourier permettra la réécriture de $u(z,t)$ en la forme $\tilde{u}(\omega,z)$ selon **(1.92)** :

$$\left\{\begin{array}{c} u(z,t) \rightarrow \tilde{u}(\omega,z) \\ \tilde{u}(\omega,z) = \int\limits_{-\infty}^{+\infty} u(z,t)\cdot e^{i\omega t}\cdot dt \end{array}\right. \tag{1.92}$$

On utilise aussi la transformation de Laplace de paramètre p qui est définie, pour une fonction quelconque g, par :

$$\left\{\begin{array}{c} \tilde{g}(\omega,z) \rightarrow \hat{g}(\omega,p) \\ \hat{g}(\omega,p) = \int\limits_{0}^{+\infty} \tilde{g}(\omega,z)\cdot e^{-pz}\cdot dz \end{array}\right. \tag{1.93}$$

Par transformation de Fourier de **(1.2)**, on trouve :

$$-\omega^2\cdot\tilde{u}(z,t) - C_a^2\cdot\frac{\partial^2\tilde{u}}{\partial z^2}(z,t) = \frac{1}{\rho}\frac{\partial\tilde{\sigma}}{\partial z}(z,t) \tag{1.94}$$

Par modification de l'équation du mouvement donnée en **(1.2)** par transformée de Laplace, on a :

$$\begin{array}{l} \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2 \times \hat{u}(\omega,p) - \frac{\partial\tilde{u}}{\partial z}(\omega,z=0) - p\cdot\tilde{u}(\omega,z=0) + p^2\cdot\hat{u}(\omega,p) = ... \\ \quad ... = -\frac{1}{\rho C_a^2}\cdot\{-\tilde{\sigma}(\omega,z=0) + p\cdot\hat{\sigma}(\omega,p)\} \end{array} \tag{1.95}$$

La déformation et la contrainte étant nulle à l'interface en $(z=0)$, on a :

$$\left[\hat{\sigma}(\omega,0) + \rho C_a^2\cdot\frac{\partial\tilde{u}}{\partial z}(\omega,0)\right] = 0 \tag{1.96}$$

Cette condition limite **(1.96)** induit donc l'expression :

$$\hat{u}(\omega,p) = \frac{1}{\left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2 + p^2} \times \left\{p\cdot\tilde{u}(\omega,z=0) + \frac{1}{\rho C_a^2}\times(-p\cdot\hat{\sigma}(\omega,p))\right\} \tag{1.97}$$

qui se réécrit en **(1.98)** :

$$\hat{u}(\omega,p) \equiv \frac{1}{\left(p+\frac{i\omega}{C_a}\right)\left(p-\frac{i\omega}{C_a}\right)} \times 2\hat{\eta}(\omega,p) \tag{1.98}$$

L'utilisation d'une transformée de Laplace inverse ($L^{-1}\{\hat{u}(\omega,p)\} = \tilde{u}(\omega,z)$) permet alors de trouver :

$$\tilde{u}(\omega,z) = \frac{1}{2i\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\left(p+\frac{i\omega}{C_a}\right)\left(p-\frac{i\omega}{C_a}\right)} \times 2\hat{\eta}(\omega,p) \times e^{pz}dp \tag{1.99}$$

ce qui induit donc, loin de la région de génération, considérant la valeur $p = \frac{i\omega}{C_a}$ et les deux poles $+/-p$:

$$\tilde{u}(\omega,z) = \frac{2\hat{\eta}(\omega,-\frac{i\omega}{C_a})}{-2i\frac{\omega}{C_a}} \times e^{-\frac{i\omega}{C_a}\cdot z} + \frac{2\hat{\eta}(\omega,\frac{i\omega}{C_a})}{2i\frac{\omega}{C_a}} \times e^{\frac{i\omega}{C_a}\cdot z} \tag{1.100}$$

Considérant $u(z,t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{u}(\omega,z)\cdot e^{-i\omega t}\cdot d\omega$, on peut donc passer de l'espace (ω,z) au domaine spatio-temporel (z,t) :

$$u(z,t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\eta(\omega,i\frac{\omega}{C_a})\cdot e^{-i\omega\left(t-\frac{z}{C_a}\right)}}{i\frac{\omega}{C_a}}d\omega - \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\eta(\omega,-i\frac{\omega}{C_a})\cdot e^{-i\omega\left(t+\frac{z}{C_a}\right)}}{i\frac{\omega}{C_a}}d\omega \tag{1.101}$$

Si $z \to \infty$, alors le second terme de **(1.101)** vaut zéro, car physiquement, on se situe hors de la zone d'interaction entre le laser et le milieu (pénétration optique), et aucune onde acoustique ne se propage des profondeurs du substrat vers la surface, d'où :

En utilisant la condition sur $\hat{\eta}(\omega,-p)$, on a :

$$\hat{\eta}(\omega,-\frac{i\omega}{C_a}) = 0 \tag{1.102}$$

qui implique donc :

$$-i\frac{\omega}{C_a} \times \tilde{u}(\omega,0) + \frac{1}{\rho C_a^2} \times \left\{-\left(-i\frac{\omega}{C_a}\right)\cdot\hat{\sigma}(\omega,-\frac{i\omega}{C_a})\right\} = 0 \tag{1.103}$$

Cette formule **(1.103)** est réutilisable avec **(1.100)** pour donner :

$$\hat{\eta}(\omega,i\frac{\omega}{C_a}) = -\frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \times \left\{\hat{\sigma}(\omega,i\frac{\omega}{C_a}) - \hat{\sigma}(\omega,-i\frac{\omega}{C_a})\right\} \tag{1.104}$$

où $\hat{\sigma}(\omega,p)$ est la transformée de Laplace de la contrainte quelle que soit l'origine de cette contrainte $\sigma(z,t)$. Le spectre de déplacement acoustique est alors défini par :

$$\tilde{u}(\omega) = \frac{1}{2\rho C_a^2} \cdot \left\{ \hat{\sigma}\left(\omega, i\frac{\omega}{C_a}\right) - \hat{\sigma}\left(\omega, -i\frac{\omega}{C_a}\right) \right\} \tag{1.105}$$

Cette expression **(1.105)** est de même valable quelle que soit l'origine de la contrainte.

Considérant ces calculs, il est possible maintenant d'examiner plus précisément le cas où le phénomène de déformation est prédominant avec existence d'une recombinaison volumique, en l'absence de recombinaison surfacique dans le matériau.

On utilisera pour ce système les équations données en **(1.106)**, avec z axe de coordonnées, dirigé vers la profondeur du substrat de GaAs :

$$\begin{cases} \sigma_{eh} = d_{eh} \times N(z,t) \\ \tilde{u}(\omega) = \frac{1}{2\rho C_a^2} \cdot \left\{ \hat{\sigma}_{eh}(\omega, \frac{i\omega}{C_a}) - \hat{\sigma}_{eh}(\omega, -\frac{i\omega}{C_a}) \right\} \\ \frac{\partial N}{\partial t}(z,t) = D_{eh} \cdot \frac{\partial^2 N}{\partial z^2}(z,t) - \frac{1}{\tau_R} \cdot N(z,t) + W(z,t) \end{cases} \tag{1.106}$$

où :

$$W(z,t) = \alpha \times \frac{(1-R)}{h\nu_L} \times I_L \times e^{-\alpha z} \times f(t) \tag{1.107}$$

ceci en utilisant les notations compactes suivantes :

$$\begin{cases} \alpha = \alpha_{opt}^{pompe} \\ R = R^{pompe} \\ h\nu_L = h\nu_L^{pompe} \end{cases} \tag{1.108}$$

Les transformations de Fourier et de Laplace conduisent alors à :

$$-i\omega\hat{N}(\omega,p) = D_{eh} \cdot \left[-\frac{\partial \tilde{N}}{\partial z}(z=0,\omega) - p \cdot \tilde{N}(\omega,0) + p^2 \cdot \hat{N}(\omega,p) \right] - \frac{1}{\tau_R}\hat{N}(\omega,p) + \hat{W}(\omega,p) \tag{1.109}$$

avec la condition d'absence de gradients de concentration de charges à la surface $z = 0$:

$$\frac{\partial \tilde{N}}{\partial z}(z=0,\omega) = 0 \tag{1.110}$$

d'où l'expression de la contrainte de déformation de potentiel $\sigma_{eh}(z,t) = d_{eh} \cdot N(z,t)$ selon :

$$\hat{\sigma}_{eh}(\omega,p) = \frac{d_{eh}}{D_{eh} \cdot \left(p^2 - \left(\frac{\omega_R - \omega}{D_{eh}}\right)\right)} \times \left\{ p \cdot D_{eh} \cdot \tilde{N}(0,\omega) - \hat{W}(p,\omega) \right\} \tag{1.111}$$

ceci avec :

$$p_{DR}^2 = \left(\frac{\omega_R - \omega}{D_{eh}}\right) \tag{1.112}$$

et avec :

$$\omega_R \equiv \frac{1}{\tau_R} \tag{1.113}$$

ce qui donne :

$$\hat{\sigma}_{eh}(\omega, p) = \frac{d_{eh}}{D_{eh} \cdot (p^2 - p_{DR}^2)} \times \left\{ p \cdot D_{eh} \cdot \tilde{N}(0, \omega) - \hat{W}(p, \omega) \right\} \tag{1.114}$$

Par application de la transformée de Laplace inverse, on obtient $\tilde{N}(\omega, z)$, donnée par **(1.115)** :

$$\tilde{N}(\omega, z) = \frac{\left(p\tilde{N}(\omega, 0) - \frac{\hat{W}}{D_{eh}}\right)}{(p^2 - p_{DR}^2)} = \frac{2\hat{\eta}(\omega, p)}{(p^2 - p_{DR}^2)} \tag{1.115}$$

induit donc :

$$\tilde{N}(\omega, z) = \frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{2 \cdot \hat{\eta}(\omega, p)}{(p + p_{DR})(p - p_{DR})} \cdot e^{pz} \cdot dp \tag{1.116}$$

$$\tilde{N}(\omega, z) = \frac{2 \cdot \hat{\eta}(\omega, p = -p_{DR})}{-2p_{DR}} \cdot e^{-p_{DR} \cdot z} + \frac{2 \cdot \hat{\eta}(\omega, p = p_{DR})}{2p_{DR}} \cdot e^{+p_{DR} \cdot z} \tag{1.117}$$

Considérant la condition sur la partie réelle de p_{DR}, $\Re e\{p_{DR}\} > 0$ et l'impossibilité d'avoir une onde de diffusion qui augmente si $z \to \infty$, on aura nécessairement :

$$\hat{\eta}(\omega, p = p_{DR}) \equiv 0 \tag{1.118}$$

Suite à cette annulation décrite en **(1.118)**, on a :

$$p_{DR} \cdot D_{eh} \cdot \tilde{N}(z = 0, \omega) - \hat{W}(\omega, p_{DR}) = 0 \tag{1.119}$$

d'où :

$$\tilde{N}(\omega, z = 0) = \frac{1}{p_{DR} \cdot D_{eh}} \times \hat{W}(\omega, p_{DR}) \tag{1.120}$$

ce qui permet d'obtenir :

$$\hat{N}(\omega, p) = \frac{1}{D_{eh} \cdot (p^2 - p_{DR}^2)} \times \left(\frac{p}{p_{DR}} \cdot \hat{W}(\omega, p_{DR}) - \hat{W}(\omega, p) \right) \tag{1.121}$$

et, par utilisation de **(1.114)**, il vient :

$$\hat{\sigma}_{eh}(\omega,p)=\frac{d_{eh}}{D_{eh}\cdot(p^2-p_{DR}^2)}\times\left\{\frac{p}{p_{DR}}\times\hat{W}(\omega,p_{DR})-\hat{W}(\omega,p)\right\} \tag{1.122}$$

On trouve en définitive :

$$\tilde{u}(\omega)=\frac{1}{2\rho C_a^2}\times\frac{d_{eh}}{D_{eh}\cdot\left(-\left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2-p_{DR}^2\right)}\times\left\{\frac{2i\frac{\omega}{C_a}}{p_{DR}}\times\hat{W}(\omega,p_{DR})-\hat{W}(\omega,+i\frac{\omega}{C_a})+\hat{W}(\omega,-i\frac{\omega}{C_a})\right\} \tag{1.123}$$

L'obtention d'une formulation complète est rendue possible en effectuant une transformation de Fourier/Laplace de $W(z,t)$:

$$W(z,t)=\alpha\times\frac{(1-R)}{h\nu_L}\times I_L\times f(t)\times e^{-\alpha z}\ \Leftrightarrow\ \hat{W}(\omega,p)=\alpha\cdot\frac{(1-R)}{h\nu_L}\cdot I_L\times\tilde{f}(\omega)\cdot\frac{\alpha}{\alpha+p} \tag{1.124}$$

En considérant l'expression de la déformation $\tilde{\eta}(\omega,z)=\frac{\partial\tilde{u}}{\partial z}(\omega,z)$, et en ne prenant que les termes utiles pour les calculs, on a donc :

$$\boxed{\begin{array}{l}\tilde{\eta}(\omega,p)\propto\frac{(1-R)\cdot d_{eh}}{h\nu_L\cdot\rho C_a^3}\times\frac{(-i\omega)^2\cdot m_{D_{eh}}\cdot\omega_{D_{eh}}}{\omega_{D_{eh}}(\omega_R-i\omega)+\omega^2}\times\ldots\\ \ldots\times\left[\frac{\omega_{D_{eh}}}{\omega^2+m_{D_{eh}}^2\cdot\omega_{D_{eh}}^2}+\frac{1}{\sqrt{\omega_R-i\omega}\cdot\left(m_{D_{eh}}\cdot\omega_{D_{eh}}^{1/2}+\sqrt{\omega_R-i\omega}\right)}\right]\end{array}} \tag{1.125}$$

ceci avec les notations suivantes :

$$\omega_{D_{eh}}=\frac{C_a^2}{D_{eh}}\ ^{31} \tag{1.126}$$

$$m_{D_{eh}}=\frac{\alpha D_{eh}}{C_a} \tag{1.127}$$

$$\omega_R=\frac{1}{\tau_R} \tag{1.128}$$

Dans ce qui suit, on évaluera l'impact de deux facteurs sur la contrainte photo-induite : impact d'une variation du temps de recombinaison τ_R et impact de la variation du coefficient de diffusion ambipolaire des porteurs de charges D_{eh}.

31. Il s'agit de la pulsation pour laquelle on passe d'un régime majoritairement gouverné par la diffusion du plasma à un régime majoritairement gouverné par la vitesse acoustique C_a ; on écrit pour obtenir ce seuil en pulsation donné en **(1.126)** que la longueur caractéristique liée à la diffusion est égale à la longueur caractéristique liée à la vitesse acoustique : $\sqrt{D_{eh}\times\tau}\equiv C_a\times\tau$

1.6.2 Cas d'un temps de recombinaison dans le plasma électron-trou (τ_R) variant

En se plaçant dans le cas où la contrainte de déformation de potentiel est prédominante sur la contrainte de thermoélasticité (cas où : $\sigma_{eh} >> \sigma_{th}$), l'impact de la valeur de τ_R sur le spectre de phonons acoustiques va être décrit [32]. Il a été vu que si l'on considére la contrainte de déformation de potentiel comme processus dominant les autres voies de génération de phonons dans le matériau, les facteurs physiques du plasma photo-induits sont considérés comme ceux qui influenceront le plus le spectre généré. Parmi ces facteurs, on considèrera l'absorption optique $\alpha^{-1}(\lambda) = \xi(\lambda)$, les variations de masses effectives (changement de valeur de masse effective entre les vallées L et Γ par exemple), et le temps de recombinaison des porteurs de charges (τ_R). Parmi l'ensemble des facteurs, nous choisirons de tester l'impact de α et de τ_R, puis de D_{eh} sur le spectre de phonons photo-induits, et nous les prendrons donc comme paramètres variant dans l'étude dont le résultat est présenté en figures **1.19** et **1.20**. La formule théorique utilisée est celle démontrée en **1.125** [21] [50] [65]. Tout d'abord, la figure **1.19** présente l'amplitude calculée du spectre acoustique en fonction de modification de paramètres liés au plasma photo-induit et au faisceau de pompe.

A $\tau_R = 1ns$ constant, si on localise l'énergie sur une profondeur d'irradiation faible (400 nm au lieu de 800 nm), c'est-à-dire si ξ diminue de $800nm$ à $15nm$, ce qui correspond à un coefficient α fort (on passe de $1,2 \times 10^6 m^{-1}$ à $5 \times 10^7 m^{-1}$), alors le spectre de phonons acoustiques est décalé vers les pulsations plus hautes que si l'on utilise une irradiation laser de pompe de 800 nm. Ceci s'explique qualitativement par une diminution de la longueur d'onde acoustique L_a caractéristique associée au champ de déformation, et donc une augmentation des fréquences f_a caractéristiques accessibles ($f_a \approx \alpha(800nm) \times C_a$). Par ailleurs, pour une même profondeur de pénétration optique (par exemple $\alpha(800nm) = 1,2 \times 10^6 m^{-1}$ en irradiation rouge), on trouvera que la diminution du temps de recombinaison volumique du plasma électron-trou (τ_R passant de $1ns$ à $2ps$), donc la diminution du temps de vie du plasma électron-trou provoque une diminution d'amplitude de la génération aux basses fréquences dans le spectre, et un très léger élargissement du spectre vers les hautes fréquences.

32. en plus de l'absorption optique

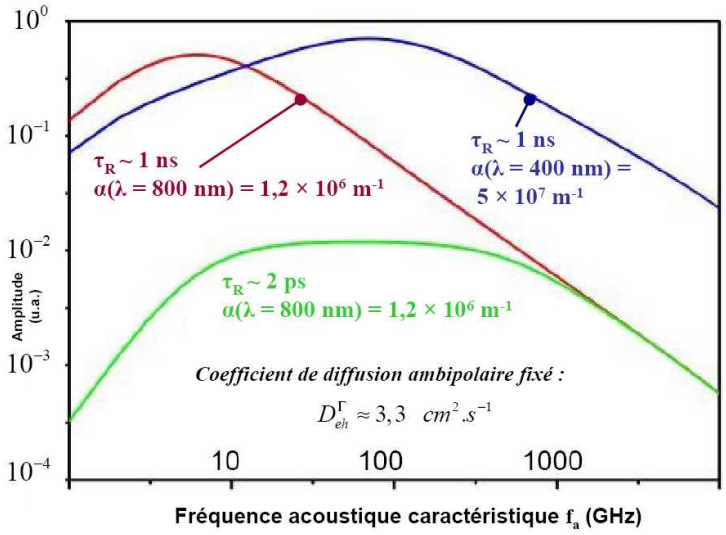


FIGURE 1.19 – Simulation du spectre de l'amplitude du champ de déformation ; impact de différentes variations de propriétés du plasma électron-trous sur l'amplitude du spectre de déformation photo-induit ; impact du changement de coefficient α et du temps de recombinaison τ_R, à valeur de D_{eh} fixée ($D_{eh}^{L} \approx D_{eh}^{\Gamma}$ considérée alors) ; simulation basée sur la formule **(1.125)**

1.6.3 Impact d'une variation de diffusion ambipolaire (D_{eh}) sur le spectre de phonons acoustiques photo-généré

Le coefficient de diffusion ambipolaire des porteurs de charges est un facteur impactant de manière claire le spectre d'amplitude de la déformation acoustique $\eta(f_a)$. Le résultat de cette étude est donné en figure **1.20**.

On constate à la vue de cette simulation que plus le coefficient D_{eh} diminue, plus la fréquence acoustique caractéristique f_a augmente. Ceci est cohérent avec le fait qu'une diffusion importante des porteurs de charges (coefficient D_{eh} élevé) induit une extension en profondeur de la zone où est générée la contrainte σ_{eh}, ce qui augmente la longueur d'onde acoustique λ_a et diminue la fréquence caractéristique f_a.

1.7 Processus de détection

1.7.1 Notion de coefficient photo-élastique

Cette grandeur physique est décrite au travers de plusieurs expressions tensorielles recouvrant de nombreuses formes (voir en annexe : **(6.1)** ; **(6.2)** ; **(6.3)** ; **(6.4)**), recouvrant

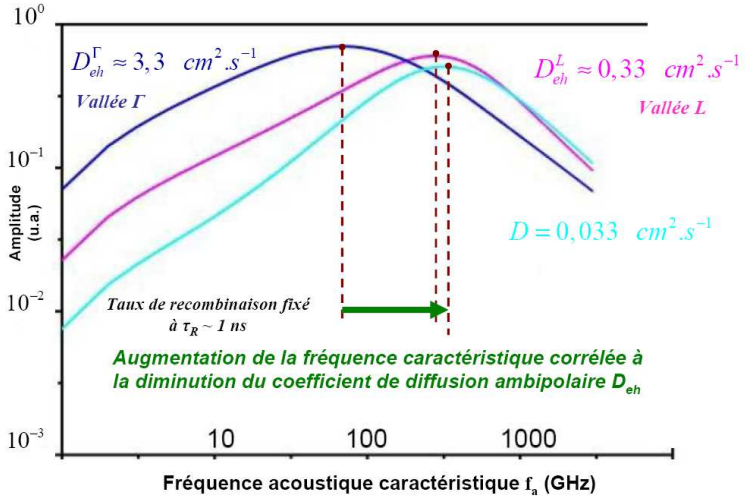


FIGURE 1.20 – Effet de la valeur du coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} sur le spectre des phonons acoustiques photo-induits simulé

tous la même notion physique de variation de la constante diélectrique ϵ du matériau. Si η(z,t) est la déformation et σ(z,t) la contrainte, on aura ainsi différentes expressions, toutes utilisables. Nous utiliserons dans le cadre de ce travail le terme $\frac{\partial n}{\partial \eta}$, où n est l'indice de réfraction et η la déformation acoustique.

1.7.2 Lien entre variation de permittivité diélectrique et processus de détection

Suite à l'excitation laser par le faisceau pompe, les parties réelles et imaginaires de la permittivité diélectrique $\tilde{\varepsilon}_r$ varient. Cette grandeur $\tilde{\varepsilon}_r$ est liée à l'indice de réfraction optique par $\tilde{\varepsilon}_r = (n + i\kappa)^2$, et on a ainsi des variations d'indice de réfraction :

– pour la partie réelle :

$$n(z,t) \rightarrow n(z,t) + \Delta n(z,t) \tag{1.129}$$

– pour la partie imaginaire :

$$\kappa(z,t) \rightarrow \kappa(z,t) + \Delta \kappa(z,t) \tag{1.130}$$

Les variations d'indice sont liées aux coefficients photo élastiques par les équations suivantes (différentielles), selon la variable z de profondeur :

– pour la partie réelle :

$$\Delta n(z,t) = \frac{\partial n}{\partial \eta} \times \Delta \eta(z,t) \tag{1.131}$$

– pour la partie imaginaire :

$$\Delta\kappa(z,t) = \frac{\partial\kappa}{\partial\eta} \times \Delta\eta(z,t) \tag{1.132}$$

Δn est de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-7} (en terme de variation d'indice photo-induite globale). La variation de réflectivité ΔR, provoquée par les variations d'indice Δn et $\Delta\kappa$, est liée aux coefficients photo-élastiques réels et imaginaires par la formule **(1.133)** :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\partial LnR}{\partial n} \cdot \Delta n + \frac{\partial LnR}{\partial \kappa} \cdot \Delta\kappa \tag{1.133}$$

En terme de variations de permittivités diélectriques, on aura une expression similaire, relative à ϵ_{r1} et ϵ_{r2}, et donnée par :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_{r1}} \times \Delta\varepsilon_{r1} + \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_{r2}} \times \Delta\varepsilon_{r2} \tag{1.134}$$

1.7.3 Solution générale du signal de réflectivité transitoire détecté

Cas général avec existence d'un film mince en dépôt sur le substrat

On considèrera ici le cas où un film mince d'épaisseur d est déposé en surface d'un substrat donné. z désigne la coordonnée de profondeur. La situation physique considérée est celle décrite en figure **1.21**, pour un système où un film mince d'épaisseur d a été déposé sur le substrat :

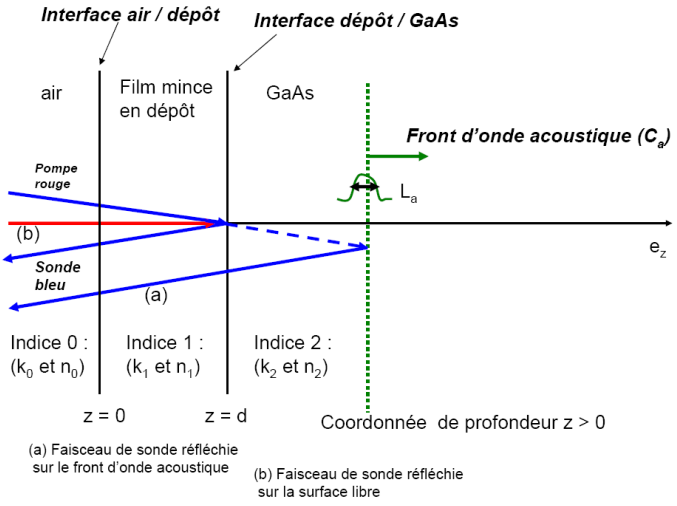


FIGURE 1.21 – Situation physique considérée : substrat avec film mince (d'épaisseur d) déposé en surface

La formule en réflectivité sera alors donnée par :

$$\frac{\Delta r}{r_0} \cong 1 + 2ik_0u(0) + 2i \cdot \frac{r_{12}\cdot(1-r_{01}^2)}{(r_{01}\cdot e^{-ik_1d}+r_{12}\cdot e^{ik_1d})(e^{-ik_1d}+r_{01}\cdot r_{12}\cdot e^{ik_1d})} \times ...$$

$$... \times \{ \ (k_1 \cdot \Delta d) + \tfrac{1}{4}[k_1 \cdot \int_0^d dz' \cdot \tfrac{\Delta\varepsilon_1}{\varepsilon_1} \cdot (r_{12} \cdot e^{2ik_1(d-z')} + 2 + \tfrac{1}{r_{12}} \cdot e^{-2ik_1(d-z')}) + ...$$

$$... + k_2 \cdot (\tfrac{1}{r_{12}} - r_{12}) \cdot \int_d^\infty dz' \cdot \tfrac{\Delta\varepsilon_2}{\varepsilon_2} \cdot e^{-2ik_2(d-z')} \ \} \tag{1.135}$$

Cette formule **(1.135)** a été établie par Gusev et al. [66]. L'épaisseur du film mince déposé en surface du substrat vaut d en l'absence des perturbations acoustiques. u(z,t) est un déplacement mécanique à la profondeur z, $u(0,t) = u_0$ le déplacement mécanique de la surface libre du matériau, $\eta(z,t) = \frac{\partial u(z,t)}{\partial z}$ une déformation acoustique longitudinale, r_{ij} les coefficients de réflexion optique aux interfaces, $\tilde{k}_1 = k_1^{'} + ik_1^{''}$ le vecteur d'onde complexe de la sonde optique laser (k_i avec $i = \{0,1,2\}$ dans l'air (0), le film (1), et le substrat (2)). Δd correspond à une variation de l'épaisseur d du film mince déposé.

On pourra réécrire **(1.135)** en introduisant la fonction de déformation η, et en se plaçant à la limite où les variations de réflectivité sont faibles devant la valeur de la réflectivité non perturbée $|\Delta r| << |r_0|$ (on rappelle ici que r_0 est le coefficient de réflexion en l'absence de tout pompage optique) :

$$\frac{\Delta r}{r_0} \cong 2ik_0u_0(t) + 2i \cdot \frac{r_{12}\cdot(1-r_{01}^2)}{(r_{01}\cdot e^{-ik_1d}+r_{12}\cdot e^{ik_1d})\cdot(e^{-ik_1d}+r_{01}\cdot r_{12}\cdot e^{ik_1d})} \times ...$$

$$... \times \{ \ (k_1 + \tfrac{\partial k_1}{\partial \eta}) \left(\int_0^d \eta(z,t).dz \right) + \tfrac{1}{2}\tfrac{\partial k_1}{\partial \eta} \left(\int_0^d \eta(z,t) \cdot (r_{12} \cdot e^{2ik_1\cdot(d-z)} + \tfrac{1}{r_{12}} \cdot e^{-2ik_1\cdot(d-z)}) \cdot dz \right) +$$

$$... + \tfrac{1}{2}\tfrac{\partial k_2}{\partial \eta}(\tfrac{1}{r_{12}} - r_{12}) \cdot \int_d^\infty \eta(z,t) \cdot e^{2ik_2(z-d)} dz \ \} \tag{1.136}$$

Le premier terme de **(1.136)** correspond à un phénomène de déplacement de surface, le second terme correspond à l'effet interféromètrique optique lié à l'existence de la couche mince transparente, le troisième terme correspond à un phénomène de couplage photo-élastique dans le film mince, et enfin, le quatrième terme correspond à un couplage photo-élastique dans le substrat. L'étude expérimentale proposée dans ce travail a été effectuée en réflectométrie transitoire ; on ne s'intéressera donc qu'à la partie réelle de l'expression **(1.136)**. On pourra considérer la situation où l'épaisseur de film est négligeable ou nulle,

c'est-à-dire le cas limite pour lequel on aura $d \to 0$. On va adapter l'écriture de l'expression **(1.136)** afin de rendre compte de cette situation, qui sera celle décrite en figure **1.22**, ceci en considérant des changements d'indice ((0) correspondant alors à l'air et (1) désignant alors le GaAs).

Cas limite : épaisseur de dépôt d tendant vers zéro

Nous détaillons ici la façon dont l'expression **(1.136)** se réécrit dans le cas où $d \to 0$, afin d'obtenir $\frac{\Delta r}{r_0}$ (domaine temporel).

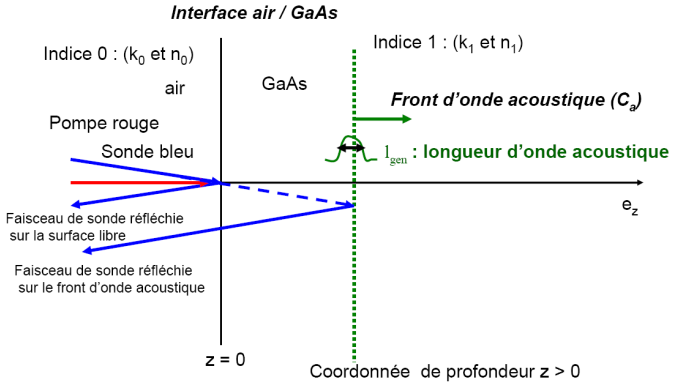


FIGURE 1.22 – Situation substrat environné d'air, sans aucune couche de dépôt en surface du substrat. Cas du substrat non recouvert

Si l'épaisseur d tend vers une épaisseur nulle ($d \to 0$), alors $r_{01} \to 0$. En introduisant les notations données en **(1.136)** et **(1.135)**, et en considérant [33] :

$$r_{02} \equiv \frac{(1-n)}{(1+n)} \tag{1.137}$$

$$1 - r_{02}^2 \equiv \frac{4n}{(1+n)^2} \tag{1.138}$$

$$\frac{1 - r_{02}^2}{r_{02}} \cong \frac{4n}{(1-n^2)} \tag{1.139}$$

On réécrit ainsi **(1.135)** en **(1.140)** :

$$\frac{\Delta r}{r_0} \cong 2ik_0u_0(0) + i \cdot \frac{4n}{(1-n^2)} \cdot \left(\frac{\partial k_2}{\partial \eta}\right) \cdot \int_0^\infty \frac{\partial u}{\partial z}(z,t) \cdot e^{2ik_2z}.dz \tag{1.140}$$

33. $r_{01} \to 0$; (0) est l'indice affecté à l'air ; (1) est l'indice désignant le GaAs ; on a $r_{12} \to r_{02}$; $n_0 \approx 1$ car on assimile l'air au vide

où k_0 est le nombre d'onde du faisceau optique dans l'air. k_2 est le nombre d'onde du faisceau optique dans le GaAs, ceci en considérant toujours que $\eta(z,t) = \frac{\partial u}{\partial z}(z,t)$. Le second terme de **(1.140)** a été obtenu dès 1986 par [9]. La formule (**(1.136)**) établie par Gusev et al. en 1996 englobe donc l'analyse de Thomsen et al. de 1986. Le premier terme est relatif aux changements de phase (au cas où l'absorption de la lumière de la sonde optique par le gaz environnant le solide étudié est négligeable, c'est-à-dire si la partie imaginaire suivante $k_0'' \to 0$) .

Cette équation **(1.140)** est cependant obtenue moyennant un certain nombre d'hypothèses que nous rappellerons ici :

1. Le champ électromagnétique est supposé interagir par une diffusion unique avec l'impulsion acoustique (hypothèse de la faible perturbation acoustique créée)
2. Il est supposé l'utilisation d'un faisceau en incidence normale (pour la lumière de sonde) à l'interface air/GaAs.
3. Les propriétés du substrat de GaAs sont supposées homogènes et linéaires en profondeur.
4. L'absorption dans l'air est négligée : k_0 est réel. n_0 indice de réfraction dans l'air pris à l'unité.

La partie réelle de l'expression de $\frac{\Delta r}{r_{01}}$ donnée en **(1.140)**, dans le cas où l'épaisseur d du film mince est négligeable, s'écrit selon **(1.141)** ; $\frac{\Delta R}{R}$ se calculant en prenant la partie réelle de $\frac{\Delta r}{r_0}$:

$$\frac{\Delta R}{R} = 2\Re e\left\{\frac{\Delta r}{r_0}\right\} = \frac{8n}{1-n^2} \times \Re e\left\{ i \cdot \frac{\partial k_2}{\partial \eta} \cdot \int_0^\infty \eta(z,t) \cdot e^{2ik_2 z} \cdot dz \right\} \tag{1.141}$$

On peut réécrire **(1.141)** en une forme plus compacte, incluant une transformée de Laplace de paramètre complexe $p = -2ik_2$:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{8n}{1-n^2} \times \Re e\left\{ i \cdot \frac{\partial k_2}{\partial \eta} \cdot \widehat{\eta}(t, p = -2ik_2) \right\} \tag{1.142}$$

Cette expression est d'ailleurs valable pour toutes les formes de signaux acoustiques générées par laser. Affinons la description des phénomènes liés à la détection.

Variation de la réflectivité transitoire causée par une impulsion acoustique se propageant depuis la surface (cas où $d \to 0$)

Le présent pragraphe développe une analyse en domaine fréquentiel (expression de $\Delta R(\omega)$). Le faisceau de pompe optique excite initialement des phonons acoustiques (figure

1.23) jusqu'à une profondeur caractéristique, c'est-à-dire une zone où a lieu la génération. Cette profondeur sera notée l. l_{gen} et τ_{gen}, temps caractéristique associé, dépendent de nombreux paramètres physiques et diffèrent selon les mécanismes de génération opto-acoustiques considérés.

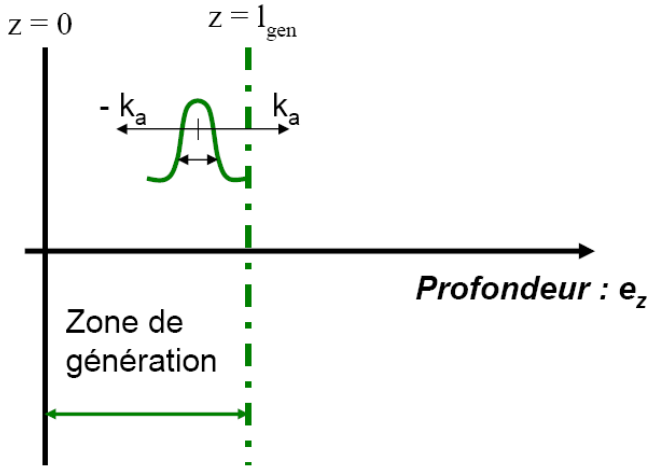


FIGURE 1.23 – Propagation des ondes acoustiques créées à l'interface air / GaAs ; z = 0 correspond à l'interface air/GaAs. L'axe z est pris positif vers la profondeur du substrat GaAs

L'onde acoustique générée (de longueur d'onde acoustique caractéristique l) se propage selon les deux directions (vers la gauche et vers la droite), ceci après un temps plus long que :

$$\tau = Max\left\{\frac{l}{C_a};\tau_{gen}\right\} \quad avec \quad l = \{l_{dif};\xi;l_{balist}\} \tag{1.143}$$

L'onde se propageant vers la gauche (sens des e_z négatif : on utilise alors le vecteur d'onde acoustique -k_a), est une onde qui sera nécessairement réfléchie, et pour le sens e_z positif, l'onde se propage vers la droite, donc vers l'infini (selon le vecteur d'onde acoustique $+k_a$).

On peut modéliser, après avoir défini la zone de génération de l'onde acoustique, la forme du champ de déformation en profondeur. Pour un temps $t \geq Max\left\{\frac{l_{gen}}{C_a};\tau_{gen}\right\}$, l'impulsion acoustique propageant dans le volume est modélisable par :

$$\eta(t-\frac{z}{C_a};z) = \eta(\tau,z) \tag{1.144}$$

$t - \frac{z}{C_a}$ caractérise le profil temporel de l'impulsion acoustique. z est la coordonnée d'espace décrivant les variations lentes de profil spatial causées par l'atténuation.

On rappelle alors que si f(z,τ), fonction définissant l'opérateur de transformée de Laplace, est une fonction remplissant aussi les conditions mathématiques adéquates pour effectuer une tranformation de Fourier, on aura :

$$\tilde{f}(\omega,z)=\int_{-\infty}^{+\infty} f(\tau,z)\cdot e^{i\omega\tau}\cdot d\tau \quad avec \quad f(\tau,z)=\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} f(\omega,z).e^{-i\omega\tau}\cdot d\omega \tag{1.145}$$

$\eta(t-\frac{z}{C_a};z)=\eta(\tau,z)$ se réécrit alors en :

$$\eta(z,t)=e^{-\alpha_a(\omega)\cdot z}\cdot\frac{1}{2\pi}\cdot\int_{-\infty}^{+\infty}\tilde{\eta}(\omega)\cdot e^{-i\omega\tau}\cdot d\omega \tag{1.146}$$

où le terme $\alpha_a(\omega)$ décrit le profil d'atténuation du son, et le terme $\frac{1}{2\pi}\cdot\int_{-\infty}^{+\infty}\tilde{\eta}(\omega)\cdot e^{-i\omega\tau}\cdot d\omega$ décrit le profil de déformation acoustique. $\alpha_a(\omega)$ est un coefficient d'atténuation dépendant de la pulsation ω (incluant absorption et diffusion). D'où le calcul, à partir de **(1.145)**, et par application d'une transformation de Laplace :

$$\eta(t,p=-2ik_1)=\int_0^{\infty} e^{-\alpha_a(\omega)\cdot z}\cdot\frac{1}{2\pi}\cdot\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{\eta}(\omega)\cdot e^{-i\omega\tau}\cdot d\omega\cdot e^{-pz}\cdot dz \tag{1.147}$$

Si $\tau=t-\frac{z}{C_a}$, alors $e^{-i\omega\tau}=e^{-i\omega t}\cdot e^{i\omega\frac{z}{C_a}}$, ce qui donne :

$$\hat{\eta}(t,p=-2ik_2)=\int_0^{\infty} e^{-\alpha_a(\omega)\cdot z}\cdot\frac{1}{2\pi}\cdot\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{\eta}(\omega,z)\cdot e^{-i\omega t}\cdot e^{\frac{i\omega z}{C_a}}\cdot e^{-pz}\cdot dz\cdot d\omega \tag{1.148}$$

d'où :

$$\int_0^{\infty} e^{-\alpha_a(\omega)\cdot z}e^{\frac{i\omega z}{C_a}}\cdot e^{-pz}\cdot dz=\frac{1}{p+\alpha_a(\omega)-i\frac{\omega}{C_a}} \tag{1.149}$$

on trouve donc :

$$\hat{\eta}(t,p=-2ik_2)=\frac{1}{2\pi}\cdot\left\{\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{\eta}(\omega)\cdot e^{-i\omega t}\cdot\left\{\frac{1}{-2ik_2+\alpha_a(\omega)-i\frac{\omega}{C_a}}\right\}d\omega\right\} \tag{1.150}$$

En introduisant le nombre d'onde optique complexe $k_2=k_2^{'}+ik_2^{''}$, on trouve in-fine :

$$\hat{\eta}(t, p = -2ik_2) = -\frac{C_a}{2\pi i} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\eta}(\omega) \cdot e^{-i\omega t}}{\omega + 2k_2 C_a + iC_a \cdot \alpha_a(\omega)} d\omega \quad avec \quad k_2 = k_2^{'} + ik_2^{''} \tag{1.151}$$

d'où, en regroupant les parties imaginaires et réelles, on a :

$$\hat{\eta}(t, p = -2ik_2) = -\frac{C_a}{2\pi i} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\eta}(\omega) \cdot e^{-i\omega t}}{\omega + 2k_2^{'} C_a + iC_a \cdot (\alpha_a(\omega) + 2k_2^{''})} d\omega \tag{1.152}$$

1.7.4 Phénomène de détection : approximations selon la prédominance de $k_2^{''}$ ou de $k_2^{'}$

Cas où $k_2^{''} << k_2^{'}$

Dans le substrat de GaAs, la radiation de sonde (λ_{sonde} = 790 nm typiquement à 1,57 eV) est très faiblement absorbée. Si $k_2^{''}$ est la partie imaginaire de l'indice optique, responsable de l'absorption, on aura alors :

$$k_2^{''} << k_2^{'} \tag{1.153}$$

On a en effet $k_2^{'} + ik_2^{''} = \frac{\omega_{sonde}}{C} \cdot (n_2^{'} + in_2^{''}) = \frac{2\pi}{\lambda_{sonde}} \cdot (n_2^{'} + in_2^{''})$, où ω_{sonde} est la pulsation de l'onde optique, C la célérité de la lumière dans le vide, λ_{sonde} la longueur d'onde de la lumière dans le vide. On trouve que $k_2^{''} << k_2^{'}$ car $n_2^{''} << n_2^{'}$.

On relie le coefficient d'absorption optique α_{sonde} à $k_2^{''}$ par la relation définissant le vecteur d'onde $k_2^{''}$: $\alpha_{sonde} = \alpha_{sonde} = 2k_2^{''} = \frac{4\pi}{\lambda_{sonde}} \cdot n_2^{''}$, ceci avec $\alpha_{sonde} = 1/\xi_{sonde}$ sachant que α_{sonde} = 750 nm environ pour la longueur d'onde de radiation de sonde utilisée.

$$\hat{\eta}(t, p) = -\frac{C_a}{2\pi i} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\tilde{\eta}(\omega) \cdot e^{-i\omega t}}{\omega + 2C_a k_2^{'} + iC_a \cdot (\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega))} \cdot d\omega \tag{1.154}$$

D'autre part, on considère que l'absorption acoustique et l'absorption optique réunies sont inférieures à $2k_2^{'}$. On traduit cela mathématiquement par :

$$2k_2^{''} = \alpha_{sonde} << k_2^{'} \tag{1.155}$$

et par la seconde expression :

$$\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega) << 2k_2^{'} \tag{1.156}$$

Physiquement, cela signifie que les termes liés à des phénomènes d'absorption sont inférieurs aux termes liés à la propagation. L'expression $\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega) << 2k_2^{'}$ signifie que la lumière et le son sont absorbés à des distances très importantes excédant λ_{opt}, longueur d'onde optique dans le GaAs.

L'intégration de $\hat{\eta}(t, p = -2ik_2)$ à tout instant, donne, en ne prenant en compte que le résidu (annulation du dénominateur fournissant les pôles) :

$$\omega + 2C_a k_2^{'} + iC_a \cdot (\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega)) = 0 \tag{1.157}$$

En introduisant $\omega_B = 2C_a k_2^{'}$, valeur correspondante à la pulsation Brillouin, on aura donc :

$$\omega + \omega_B + iC_a \cdot (\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega_B)) = 0 \tag{1.158}$$

soit,

$$\omega = -\omega_B - iC_a \cdot (\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega_B)) \tag{1.159}$$

ce qui donne donc :

$$\hat{\eta}(t, p = -2ik_2) = C_a \cdot \tilde{\eta}(\omega_B) \cdot e^{i\omega_B t - C_a \cdot (\alpha_{sonde} + \alpha_a(\omega_B))t} \tag{1.160}$$

Par conséquence de **(1.160)** et de **(1.140)**, on a la solution [34] :

$$\frac{\Delta R}{2R} = \frac{4n}{(1-n^2)} \cdot \Re e \left\{ i \cdot \frac{\partial k_2}{\partial \eta} C_a \cdot \tilde{\eta}(\omega_B) \cdot e^{i\omega_B t} \cdot e^{-C_a \cdot \alpha_{sonde} \cdot t} \cdot e^{-\alpha_a(\omega_B) \cdot C_a t} \right\} \tag{1.161}$$

d'où une expression de la réflectivité transitoire telle que :

$$\frac{\Delta R}{2R} \approx \frac{4n}{(1-n^2)} \cdot \Re e \left\{ i \cdot \frac{\partial k_2}{\partial \eta} \cdot \tilde{\eta}(\omega_B) \cdot e^{i\omega_B t} \right\} \cdot e^{-C_a \cdot (\alpha_{opt} + \alpha_a(\omega_B)) \cdot t} \tag{1.162}$$

La variation relative de réflectivité est donc composée d'un signal harmonique à la pulsation ω_B lentement décroissante dans le temps, considérant l'atténuation $\alpha_a(\omega)$. l'introduction des phases et des amplitudes du coefficient photo-élastique $\frac{\partial k_2}{\partial \eta}$ et de la fonction $\tilde{\eta}(\omega)$ prise en ω_B permet d'écrire :

$$\begin{cases} (\frac{\partial k_2}{\partial \eta}) = \left| \frac{\partial k_2}{\partial \eta} \right| \cdot e^{i\varphi_{k_2;\eta}} \\ \tilde{\eta} = |\tilde{\eta}| \cdot e^{i\varphi_\eta} \end{cases} \tag{1.163}$$

34. On notera que si l'on considère n comme étant complexe dans ce calcul, un terme de phase supplémentaire apparaît

où $\left|\frac{\partial k_2}{\partial \eta}\right|$ est la norme du coefficient photo-élastique et $|\tilde{\eta}|$ la norme de la déformation $\tilde{\eta}$. $\varphi_{k_2;\eta}$ est la phase liée au coefficient photo-élastique $\frac{\partial k_2}{\partial \eta}$. $e^{i\varphi_\eta}$ est la phase liée à la déformation $\tilde{\eta}$. On transforme donc **(1.162)** en utilisant les expressions avec phase données en **(1.163)** :

$$\frac{\Delta R}{2R} \approx \frac{4n}{(1-n^2)} \cdot \left|\frac{\partial k_2}{\partial \eta}\right| \cdot |\tilde{\eta}(\omega_B)| \cdot \Re e\left\{e^{i\pi/2} \cdot e^{i\varphi_\eta} \cdot e^{i\varphi_{k_2;\eta}} \cdot e^{i\omega_B t}\right\} \cdot e^{-C_a \cdot (\alpha_{sonde}+\alpha_a(\omega)) \cdot t} \quad (1.164)$$

ce qui donne :

$$\frac{\Delta R}{2R} \approx \frac{-4n}{(1-n^2)} \cdot \left|\frac{\partial k_2}{\partial \eta}\right| \cdot |\tilde{\eta}(\omega_B)| \cdot Sin(\varphi_\eta + \varphi_{k_2;\eta} + \omega_B t) \cdot e^{-C_a \cdot (\alpha_{opt}+\alpha_a(\omega)) \cdot t} \quad (1.165)$$

qui est une expression à rapprocher de :

$$\frac{\Delta R}{2R} \approx -\left|\frac{\Delta R}{2R}\right| \cdot Sin(\omega_B t + \varphi) \quad (1.166)$$

où $\left|\frac{\Delta R}{2R}\right|$ est une variation d'amplitude.

En définitive, en identifiant **(1.166)** à **(1.165)**, on trouve donc :

$$\begin{cases} \left|\frac{\Delta R}{2R}\right| = \frac{4n}{(1-n^2)} \cdot \left|\frac{\partial k_2}{\partial \eta}\right| \cdot |\tilde{\eta}(\omega_B)| \\ \varphi = \varphi_\eta + \varphi_{k_2;\eta} \end{cases} \quad (1.167)$$

Il est important que l'amplitude $\left|\frac{\Delta R}{2R}\right|$ ne dépende pas de φ_η ni de variations de $\varphi = \varphi_\eta + \varphi_{k_2;\eta}$ non plus. On en conclue que la variation de réflectivité transitoire $\frac{\Delta R}{2R}$ est proportionnelle à l'amplitude de la composante spectrale en $\omega = \omega_B$ du spectre acoustique. Les changements de phase ont uniquement pour origine les changements de phase de cette composante acoustique en $\omega = \omega_B$. Ainsi, l'évaluation de $\frac{\Delta R}{2R}$ permet de retrouver le spectre photo-généré à cette pulsation ω_B.

Cas où $k_2'' >> k_2'$

Il s'agit du second cas envisageable ; la détection s'effectue alors de manière large bande. Il sera montré dans la suite du manuscrit [35] que :

$$\frac{\Delta \tilde{r}}{r_0}(\omega) \propto \tilde{\eta}(\omega) \times \left\{\frac{1}{\omega + 2k_2' C_a + 2ik_2'' C_a}\right\} \quad (1.168)$$

où k_2' [resp. k_2''] est la partie réelle [resp. la partie imaginaire] du nombre d'onde associé à la sonde optique. Ainsi dans le cas limite où $k_2'' >> k_2'$, on aura :

35. voir en page 133

$$\left|\hat{S}(\omega)\right| \approx \left\{\omega^2 + \left(2ik_2''C_a\right)^2\right\}^{-1/2} \tag{1.169}$$

La détection est alors dite large bande, et l'on se donne comme définition de la largeur de bande de détection à mi-hauteur $\Delta\omega$:

$$\Delta\omega \equiv 2\sqrt{3}k_2''C_a \tag{1.170}$$

On voit que si k_2'' augmente alors la gamme de pulsation $\Delta\omega$ augmente aussi.

1.7.5 Seconde approche de la diffusion Brillouin : approche interféromètrique

On utilisera dans le cadre de ce travail le phénomène dit de diffusion Brillouin . Il s'agit d'un phénomène interférométrique entre un faisceau sonde réfléchi sur la surface libre de l'échantillon et la fraction du faisceau de sonde réfléchie sur le front d'onde acoustique progressant en volume. Ce phénomène d'interférence renseigne en pratique sur les vitesses longitudinales et transversales, les épaisseurs déposées sur les substrats, la durée des émissions de phonons acoustiques, ainsi que sur l'atténuation acoustique. Un signal caractéristique comporte une ligne de base, un pic électronique (traduisant la réponse du matériau aux temps très courts : création du plasma photo-induit), et un fond globalement décrit par une exponentielle décroissante. La conservation des moments est donnée en figure **1.24** et permet d'établir la relation très communément utilisée en réflectométrie (diffusion élastique).

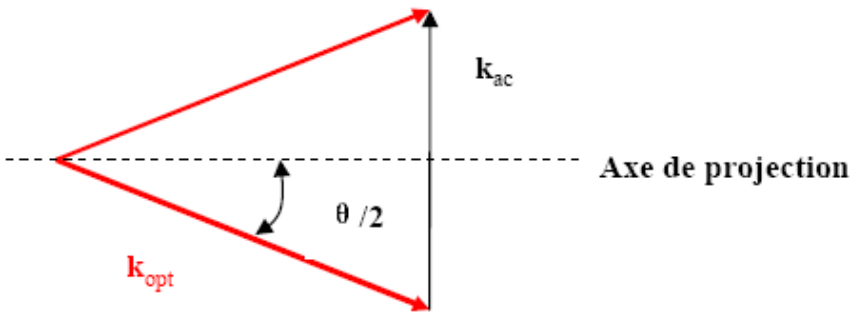


FIGURE 1.24 – Vecteurs d'ondes optiques et acoustique ; sommation et conservation des moments ; variation de la quantité de mouvement des photons par les phonons

Il vient donc (V_{ac} étant la vitesse du front d'onde acoustique) :

$$Sin(\frac{\theta}{2}) = (\frac{k_{ac}/2}{k_{opt}}) \tag{1.171}$$

soit :

$$k_{ac} = 2 \times k_{opt} \times Sin(\frac{\theta}{2}) \tag{1.172}$$

équivalent à :

$$k_{ac} = 2 \times \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} \times Sin(\frac{\theta}{2}) \tag{1.173}$$

En utilisant $\omega_{ac} = k_{ac} \times V_{ac} \;\; \Rightarrow \;\; k_{ac} = \frac{\omega_{ac}}{V_{ac}} = \frac{2\pi}{T} \times \frac{1}{V_{ac}}$, on obtient :

$$\frac{2\pi}{T} \times \frac{1}{V_{ac}} = 2 \times \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} \times Sin(\frac{\theta}{2}) \tag{1.174}$$

d'où, *in-fine*, l'expression de la période des oscillations Brillouin dans le milieu matériel, avec λ_0 longueur d'onde de la sonde optique :

$$T = \frac{\lambda_{opt}}{2 \cdot V_{ac} \cdot Sin(\frac{\theta}{2})} = \frac{\lambda_0}{2 \cdot nV_{ac} \cdot Sin(\frac{\theta}{2})} \tag{1.175}$$

En considérant les vecteurs d'onde optique des faisceaux de pompe et de sonde optique, et le vecteur d'onde acoustique, on a la situation physique décrite en figure **1.25**.

Le dispositif expérimental ayant permis d'effectuer les enregistrements expérimentaux est détaillé en chapitre 2 qui suit.

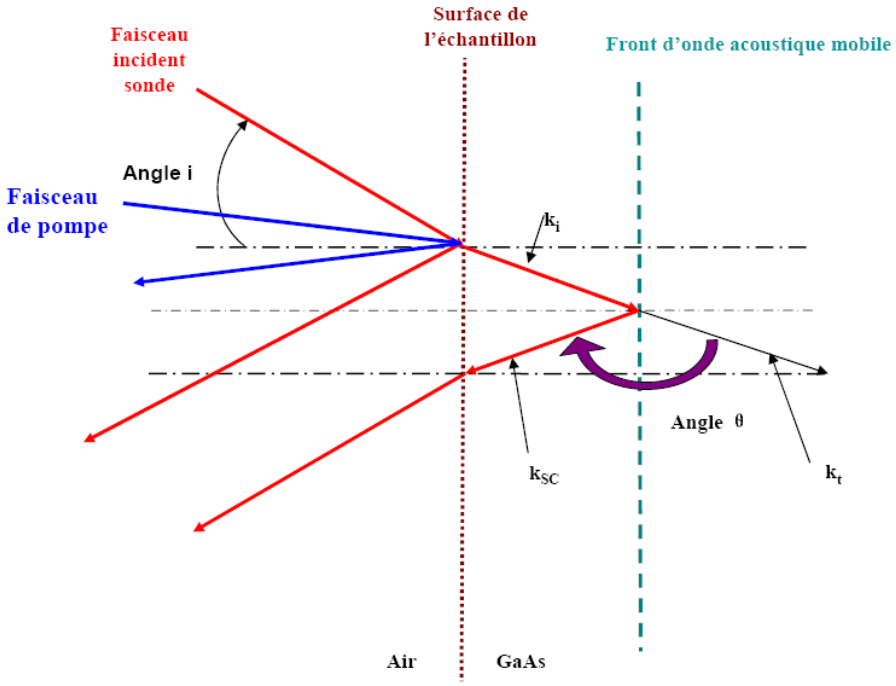


FIGURE 1.25 – Etude des oscillations Brillouin résolues en temps : interférence entre le faisceau de sonde réfléchi sur la surface de l'échantillon et le faisceau de sonde se réfléchissant sur la surface du front d'onde acoustique se propageant en volume

Chapitre 2

Techniques optiques expérimentales ultrarapides

"Cette analogie secrète entre la lumière et le son donne lieu de soupçonner que toutes les choses de la Nature ont des rapports cachés, que peut être on découvrira quelque jour."

Voltaire, 1738

On se situera dans le cadre de cette étude dans des domaines d'excitations ultrarapides (τ_L [1] $\approx 10^{-15}s$), reposant sur l'emploi de sources lasers pulsées femtosecondes. Les lasers impulsionnels [2] femtosecondes sont des sources de lumière permettant la génération d'hypersons cohérents ($f_a \geq 10$ GHz) et de phonons optiques cohérents très hautes fréquences. Les moyens optiques femtosecondes utilisés sont par ailleurs les seuls possibles en vue de détecter les phonons acoustiques et/ou optiques trés haute fréquence générés. La longueur d'onde utilisée pour le faisceau sonde et/ou pompe est en outre un paramètre important qui détermine la profondeur de pénétration optique $\xi(\lambda)$ de la lumière (ξ dépendant du matériau) à laquelle on produit et/ou on détecte ces phonons, comme il a été mentionné au chapitre 1.

2.1 Eléments du montage optique

On utilise un montage pompe sonde (méthode tout optique), dont le schéma de principe est donné dans la figure **2.1**. Les dynamiques photo-induites (électroniques, phononiques,

1. τ_L est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser utilisée en génération

2. Il faut noter que l'on peut atteindre des fréquences (hypersons) de l'ordre de $f_a \approx 100$ GHz, en utilisant le phénomène de Brillouin stimulé provoqué par un laser de type continu [67]

etc.) sont étudiées à travers des perturbations de propriétés optiques ($\Delta R(t)$). Il y a focalisation de la première impulsion (pompe déclenchant la dynamique) sur la surface du matériau, et focalisation de la seconde impulsion (sonde) au même point géométrique sur cette surface, mais avec un temps d'arrivée décalé linéairement par rapport au temps zéro d'arrivée de la première impulsion (pompe). Différents éléments technologiques, techniques ou d'optique sont utilisés en vue de la réalisation de ces expériences d'acoustique picosecondes. Nous allons détailler le montage utilisé [3].

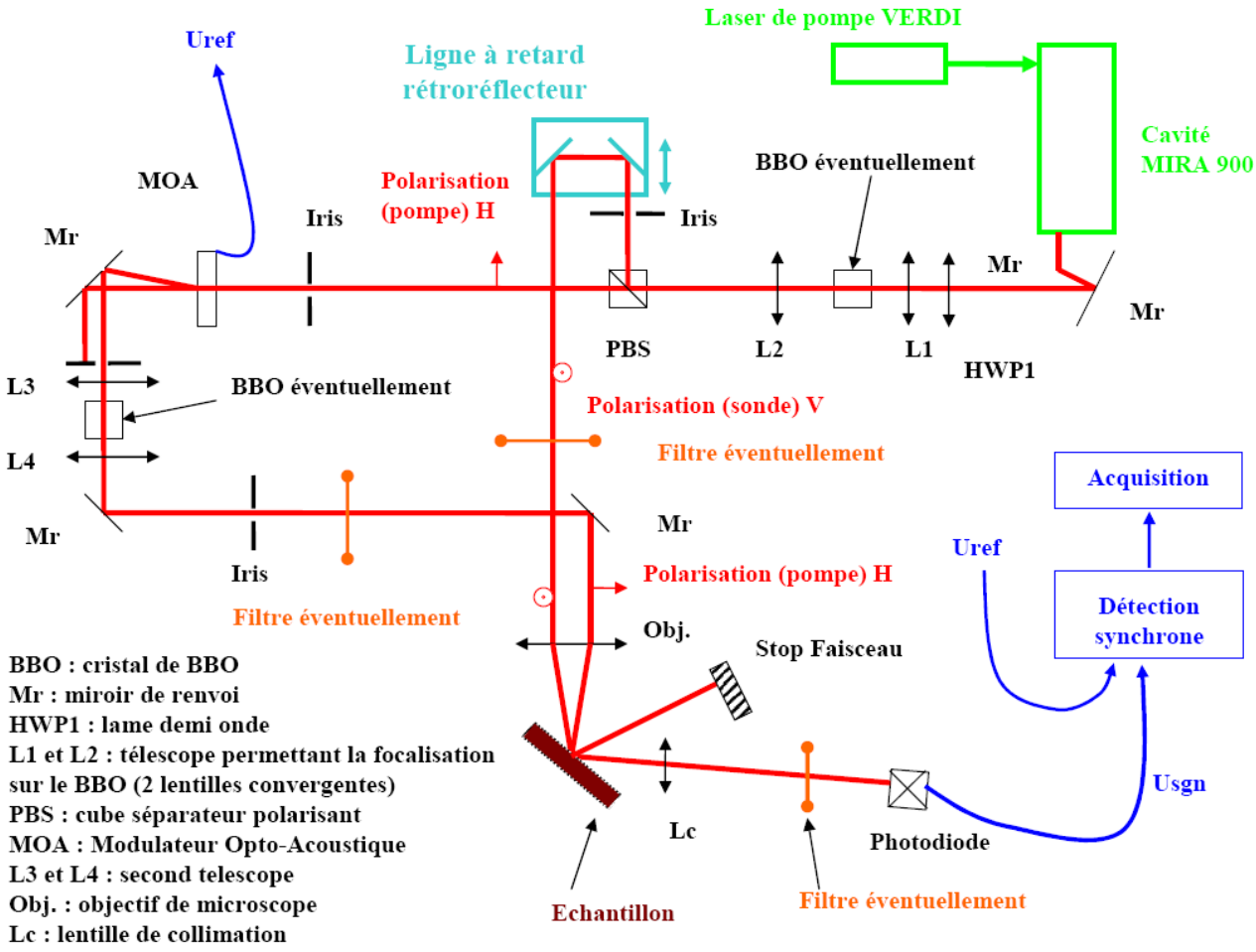


FIGURE 2.1 – Montage optique expérimental mis en place, d'autres possibilités ont pu être utilisées et existent [68, 70] ; les deux premiers miroirs de renvoi permettent de reprendre l'alignement laser en sortie de cavité

3. mise en place au LPEC en 2002

2.1.1 Laser continu de pompage VERDI

Il s'agit d'un laser solide pompé par diode émettant un faisceau continu (à une seule longueur d'onde) à 532 nm de puissance délivrable supérieure à 5 W (on travaillera usuellement à 5 W dans cette étude) de polarisation verticale et linéaire qui pompe la cavité produisant le peigne d'impulsions. La thermalisation de la pièce où se déroulent les expériences est primordiale, car la stabilité du pointé de ce laser de pompe qui pénètre dans la cavité est de l'ordre de 5 μ rad.$°C^{-1}$, si la température de la pièce où se situent les expériences se situe entre 25°C et 40°C. Un cordon ombilical (contenant une fibre optique) relie le boitier d'alimentation et de contrôle dans lequel se situe la diode, et permet de transmettre la lumière émise par cette diode vers un cristal de néodyme vanadate $Nd : YVO_4$ milieu à fort gain et contrôlé en température par un refroidisseur thermoélectrique. Ce système (décrit en figure **2.2**) comporte 2 miroirs de fond de cavité laser, dont un semi-transparent, 2 miroirs sous lesquels sont disposés deux fibres guidant la radiation de pompage injectée dans le système, un compensateur d'astigmatisme, un LBO (cristal doubleur) fonctionnant à 148°C et dont la température est maintenue à un niveau constant par un refroidisseur thermoélectrique, un étalon et une diode optique.

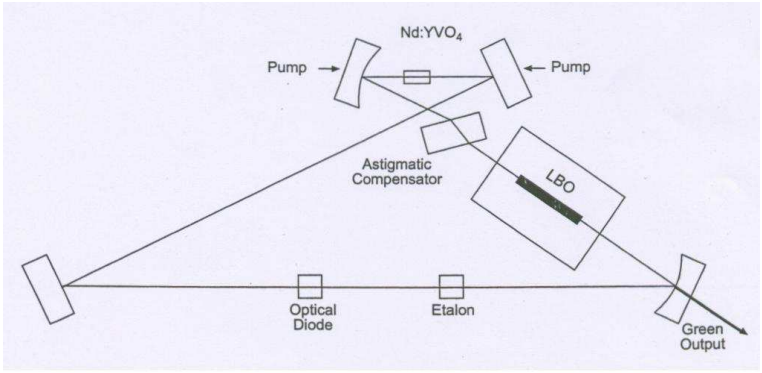


FIGURE 2.2 – Détail du laser de pompe VERDI V2. Pompage d'un cristal de YVO_4 par diode laser (noté "pump" sur ce schéma) via les 2 miroirs encadrant le cristal de YVO_4 (tiré de [69])

2.1.2 Source laser femtoseconde

Il s'agit d'une source laser commerciale Cohérent MIRA 900 à cristal (centré sur une plage d'utilisation à 800 nm) et refroidi par circulation d'eau à 20°C, fournissant des trains d'impulsions laser à un taux de répétition de 76 MHz et d'une largeur d'impulsion à mi-

hauteur de 150 fs en sortie de cavité [4]. La plage d'accordabilité (manuelle) s'étend de 700 à 900 nm. La cavité Mira 900 est pompée par le laser de type Verdi (décrit en section 2.1.2). La polarisation en sortie de cavité est horizontale (mode TEM_{00}). Il faut bien noter que si la largeur à mi-hauteur des impulsions en sortie de cavité est de l'ordre de 150 fs, elle sera plutôt de l'ordre de 200 fs avant interaction sur la surface de l'échantillon, considérant des élargissements temporels de l'impulsion par passage dans les optiques. L'énergie par impulsion est typiquement de l'ordre de 10 nJ en sortie de cavité, mais pas au niveau de l'échantillon, où cette valeur sera minorée. La figure **2.3** donne un enregistrement effectué au laboratoire des impulsions lasers disponibles.

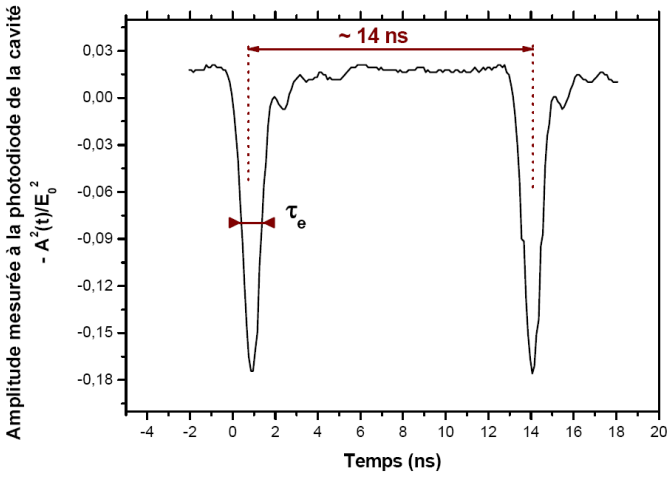


FIGURE 2.3 – Enregistrement d'un signal issu de la photodiode placé dans la cavité MIRA 900 ; τ_e est la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser ; existence d'un élargissement électronique de la diode rapide intracavité.

Le laser utilisé est à verrouillage de modes (*mode locking*). Plusieurs conditions sont nécessaires pour obtenir ce régime impulsionnel particulier (voir en annexe) ; le *self mode locking* existera si ces conditions de phase entre modes et de sélection de modes de cavité sont présentes.

2.1.3 Lame demi onde $\lambda/2$

Positionnée derrière les deux premiers miroirs de renvois Mr (figure **2.1** et désignée par *HWP1*), cette lame demi onde permet de choisir le ratio en puissance pompe et sonde disponible pour les expériences, en inclinant la polarisation rectiligne horizontale du faisceau sortant de la cavité. Le cube séparateur polarisant (PBS) assure la réflexion

4. A 800 nm, le maximum de puissance en sortie de bouche de cavité est usuellement de environ 830 mW dans les mesures présentés dans le présent travail

vers la ligne à retard de la composante polarisée verticalement et permet la transmission de la composante polarisée horizontalement vers le MOA, et donc permet de choisir un ratio d'intensité relative pompe/sonde (réglage de type *push-pull*).

2.1.4 Premier télescope

Le faisceau en sortie de cavité étant divergent naturellement, on recollimate le faisceau via le premier télescope composé de 2 lentilles convergentes en série, non accolées, et translatables l'une par rapport à l'autre pour optimiser la taille de spot en sortie de ce système. Un cristal de ß borate de baryum (*BBO*) est positionnable entre ces deux lentilles. Il s'agit de pouvoir effectuer du doublage de fréquence (*SHG : Second Harmonic Generation*), si besoin est.

2.1.5 Cube séparateur polarisant (*Polarised Beam Splitter : PBS*)

La composante du faisceau incidente à ce cube polarisée verticalement est réfléchie par la surface diagonale du PBS vers le retroréflecteur de la ligne à retard motorisée. La composante polarisée horizontalement est transmise par le PBS sans réflexion vers l'orifice d'entrée de la cellule acousto-optique AOM. L'utilisation conjointe de la lame demi onde $\lambda/2$ et du cube polarisant PBS permet ainsi une fixation des polarisations du faisceau sonde et du faisceau pompe formant un angle de $\pi/2$ entre elles.

2.1.6 Cellule acousto-optique (Modulateur Opto-Acoustique : MOA)

Cette cellule est constituée d'un cristal de dioxyde de tellure TeO_2 parcouru par un signal de fréquence porteuse 80 MHz, modulé en amplitude par une fonction choisie carrée de 750 kHz pour nos mesures (figure **2.4**). La tension déterminant l'amplitude crête à crête vaut 5 V (2,5 V de part et d'autre de la ligne zéro en amplitude). Le signal acoustique modulé agit comme un réseau de Bragg sur le faisceau incident à la cellule provenant du PBS et permet ainsi une diffraction par interaction élasto-optique au cœur du matériau TeO_2. Il y a alors production d'ordres successifs de diffraction k_0 et $k_{\pm 1}$, k_{+1} et k_{-1} représentant deux ordres de diffraction selon deux directions divergentes de $2\theta_D$ entre elles. θ_D est défini par la relation classique **(2.1)**, $v(TeO_2)= v = 4200m.s^{-1}$ étant la vitesse du son dans le TeO_2, n étant l'indice dans le TeO_2 à 800 nm, valant 2,2, et f étant

la fréquence de la porteuse acoustique modulée (80 MHz) supportant les formes carrées de la tension (choisie carrée).

$$\begin{cases} 2\hat{\theta}_D = (\theta_{k_0}; \theta_{k_{\pm 1}}) \\ Sin\theta_D = \frac{\lambda f}{2nv} \end{cases} \tag{2.1}$$

Une estimation de la divergence entre l'ordre 1 et l'ordre 0 permet de calculer la longueur à partir de l'AOM au bout de laquelle on peut raisonnablement séparer les deux ordres ; $2\theta_D \approx 0{,}4$ à $0{,}5°$ induit alors une longueur de l'ordre de 30 cm (à 800 nm).

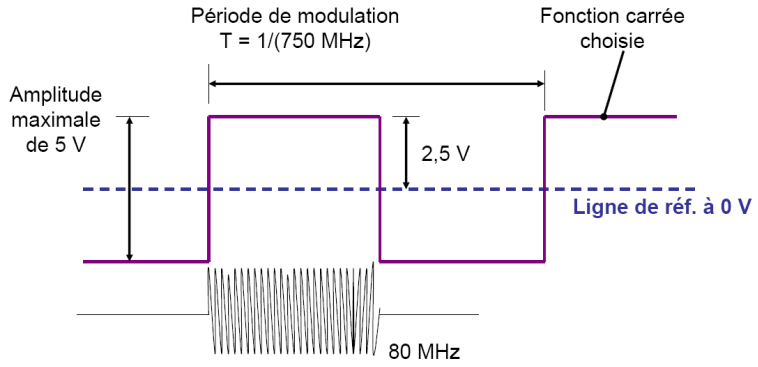


FIGURE 2.4 – Choix expérimentaux relatif au Modulateur Opto-Acoustique : tension d'amplitude à 5 V ; offset de 2,5 V ; fréquence choisie de 750 kHz ; fréquence support de la fonction carrée de 80 MHz. Il faut noter qu'en réalité, le signal n'est pas totalement carré, car le MOA a un temps de montée non immédiat dépendant par ailleurs de la focalisation dans la cellule de Bragg

L'optimisation des intensités des ordres de diffraction se fait par rotation de la platine horizontale de support de l'AOM, par recherche de l'angle de Bragg θ_D le plus favorable (angle d'entrée du faisceau laser issu du PBS dans l'AOM). Le passage dans la cellule de Bragg introduit une source d'élargissement temporel supplémentaire (impact sur la largeur d'impulsion à mi-hauteur). Par ailleurs, ce passage dans cette cellule impliquera -pour les calculs de fluence reçue par l'échantillon- la nécessité d'utiliser un facteur multiplicatif $\times 2$, les mesures étant présentés "brutes" (la mesure de puissance indiquée dans le présent travail étant *celle indiquée et lue au puissancemètre*). La plupart de nos mesures étant cependant en relatif, il a été choisi de présenter ces résultats expérimentaux "bruts".

2.1.7 Second télescope

Il permet une focalisation sur un cristal de BBO éventuel pour effectuer des pompages en bleu (UV) et en sonde rouge. Il nous a été possible d'atteindre 4,5 à 5 mW en sortie

de cristal de BBO, soit une efficacité de l'ordre de 4 à 7 %. On utilise éventuellement des filtres interférentiels afin d'éliminer les radiations résiduelles de bleu et de rouge dans les faisceaux rouges et bleu, par filtrage spectral.

2.1.8 Rôle de la ligne à retard

Il s'agit d'un miroir retroréflecteur monté sur un support se déplaçant sur une ligne mécanisée de 60 cm de long au maximum. Le décalage physique (par translation à vitesse constante du retroréflecteur et par création d'un chemin optique rallongé pour le peigne d'impulsion sonde par rapport au peigne d'impulsion pompe (qui possède un chemin optique fixé) se répercute en un retard temporel (qui évolue linéairement) pour le faisceau sonde par rapport au faisceau pompe qui donne le temps zéro de la cinétique. Ce retard permet en outre, comme dans toutes les expériences classiques pompe sonde, de reconstruire un spectre temporel (stroboscopie) ou de cinétique en réflectivité, cinétique qui caractérise la réponse du milieu à l'excitation optique. Typiquement, 1 cm de déplacement du retroréflecteur (soit un trajet optique de la sonde augmenté de 2 cm) induit un retard de la sonde par rapport au temps d'arrivée de la pompe de l'ordre de 66 ps (1 mm correspond à environ 300 fs). La précision mécanique de la ligne à retard permet des déplacements de l'ordre du μm, ce qui induit des possibilités de retard de l'ordre de 10 fs a-minima (considérant ces déplacements possibles a-minima de l'ordre du μm). La résolution temporelle accessible via de faibles pas de ligne à retard a permis la détection de phonons optiques (mode A1g à 2,9 THz) lors d'une campagne de mesure sur des échantillons de bismuth métallique solide. Les figures **2.5** et **2.6** présente ce résultat, en accord la littérature [7] [23] [24] [25] [26].

2.1.9 Spectromètre

Les longueurs d'onde ont été mesurées par utilisation d'un spectromètre à fibre optique commercial (*Ocean Optics*), dont la fibre optique de prélèvement de rayons diffus est disposée derrière un des miroirs de renvoi (noté Mr sur la figure **2.1**) présent en sortie de la cavité, et récupérant ainsi des radiations transmises dans l'épaisseur du miroir et atténuée, ce qui évite la saturation du détecteur situé en sortie de fibre collectrice de lumière.

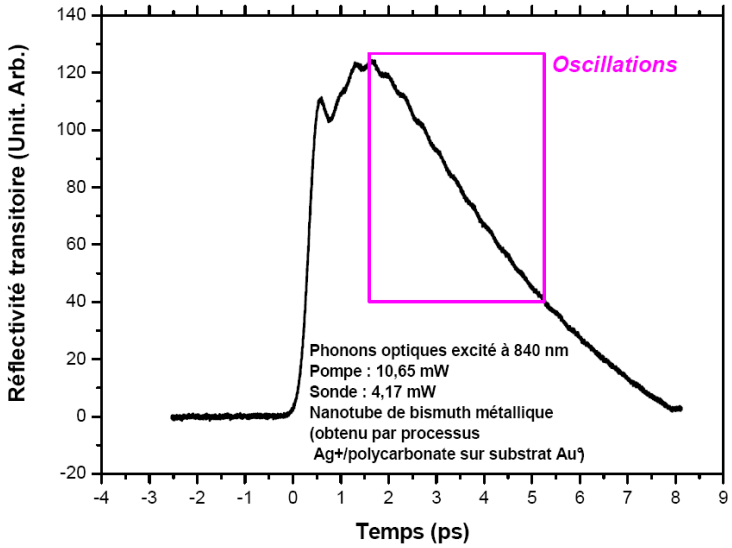


FIGURE 2.5 – Signaux de réflectivité transitoire ; Période d'oscillation de 355 fs ; Echantillon de Bi métallique. Observations de phonons optiques (oscillations). Echantillon fourni par Pr A.A. Kolomenskii (Université du Texas/TAMU)

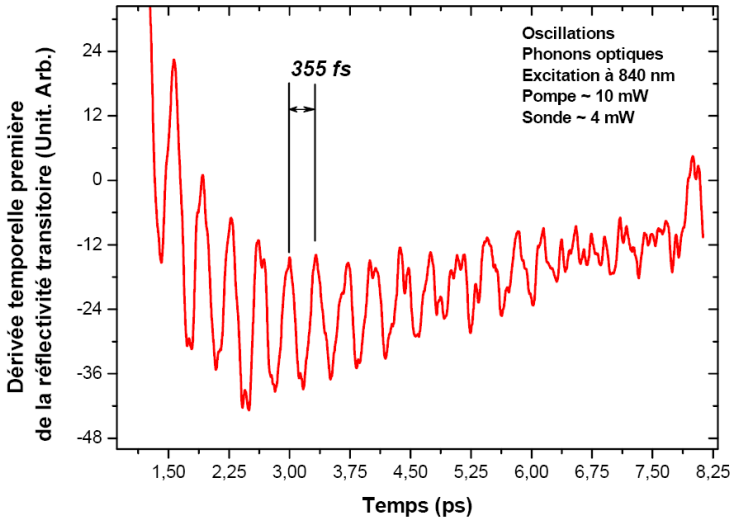


FIGURE 2.6 – Signaux de dérivée temporelle de réflectivité transitoire ; Période d'oscillation mesurable à 355 fs ; Echantillon de Bi métallique. Observations de phonons optiques (oscillations). Echantillon fourni par Pr A.A. Kolomenskii (Université du Texas/TAMU)

2.1.10 Objectif de microscope

Le faisceau de pompe et le faisceau de sonde sont tous deux focalisés sur l'échantillon en utilisant un objectif achromatique de microscope (Melles griot, ×10). L'objectif (Obj.) qui focalise les faisceaux sur l'échantillon réfléchit déjà 10 % du faisceau incident, et le GaAs

ne réfléchit ensuite quant à lui que 40 % de la lumière lui parvenant. Ainsi, pour 10 mW incident, le calcul complet de puissance reçu sera donné par $10mW \times 0,90 \times 0,40 = 5,4mW$ réellement absorbés sur la surface du GaAs.

2.1.11 Photodiode à silicium

On utilise des photodiodes à silicium (type PIN-UDT) de surface active 1 cm^2, de temps de montée 1 μs, et de bande passante 1 MHz. Une lentille de collimation (Lc) en amont du photo détecteur permet une illumination homogène de la surface active du photo détecteur. Il est très important pour effectuer les mesures de se situer en domaine de fonctionnement linéaire du photo détecteur, afin de ne pas saturer ce dernier par de trop fortes fluences. Pour ce faire, il est systématiquement vérifié (multimètre) la tension de diode à chaque acquisition.

2.2 Processus de mesure par utilisation d'une détection synchrone

Les perturbations optiques photoinduites en réflectométrie sont de l'ordre de $\frac{\Delta R}{R} \approx 10^{-7} u.a.$. Il est ainsi nécessaire pour extraire le signal s(t) utile de recourir à un système de modulation/démodulation, ceci considérant des niveaux de signaux à détecter très faibles en comparaison des bruits thermique et électronique présents dans l'environnement.

2.2.1 Nécessité de la modulation/démodulation

Soit le signal utile noté s(t) issu d'un processus de mesure donné ; il peut s'agir de toute grandeur physique mesurable lors de l'expérience. Ce signal est acquis alors même que différentes sources de bruits coexistent avec lui. Il existera du bruit aléatoire (non cohérent), ou bruit thermique prenant naissance dans les détecteurs et les amplificateurs.

$$W_B = kT \times \Delta f \tag{2.2}$$

kT représente alors une énergie thermique et Δf la bande passante de l'appareillage. On remarquera alors que le bruit blanc ou rapport $\frac{W_B}{\Delta f}$ est constant, mais peut être réduit par augmentation de Δf lié à l'appareillage. Il existera également du bruit périodique (cohérent), produit par inductions parasites du réseau électrique, ceci même en utilisant une masse métallique à la base du bâtiment.

2.2.2 Principe de la démodulation synchrone

Le signal $s(t)$ est à bande spectrale d'étendue $(-\Delta B\,;\,+\Delta B)$ très étroite (faible bande ΔB) autour de la fréquence nulle et généralement de type basse fréquence. En revanche, le signal lié au bruit $b(t)$ est à bande spectrale large [5]. Le spectre du bruit $b(t)$ englobe donc largement le spectre du signal à extraire $s(t)$. Par ailleurs, $s(t)$ est de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-8} en variations relatives d'intensité, ce qui est largement couvert par le bruit de l'environnement proche.

On définit alors un signal dit composite :

$$x\,(t) = s\,(t) + b\,(t) \tag{2.3}$$

Ce signal composite est multiplié à une porteuse sinusoidale de fréquence ν_0. Il s'agit d'une modulation. On obtient donc un produit de type :

$$x\,(t) \times Cos\,(2\pi\nu_0 t) \tag{2.4}$$

Les spectres sont ainsi décalés et centrés sur la valeur ν_0 (figure **2.7**). L'étendue spectrale correspond alors à $(\nu_0 - \Delta B\,;\,\nu_0 + \Delta B)$.

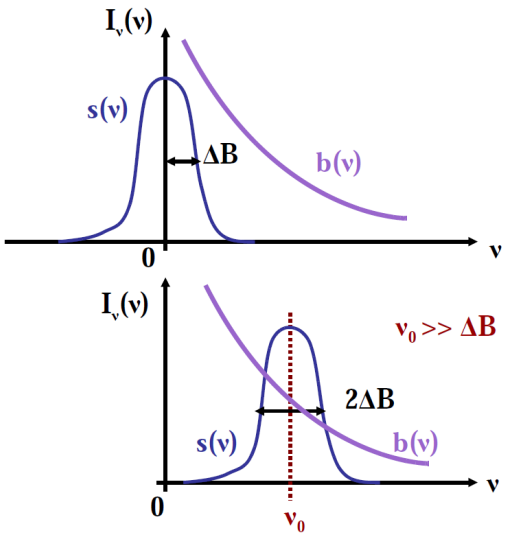


FIGURE 2.7 – Domaine spectral : décalage spectral généré par multiplication à la porteuse sinusoidale

x(t) étant réel et positif, la transformée de Fourier sur le pic positif du spectre (même s'il existe un second pic spectral symétrique et négatif) suffit pour extraire *infine* $s\,(t) \times$

5. Une seconde description (totalement similaire) explicite $b(t)$ comme étant le bruit "*lié au laser*" et $b\,(t) \times Cos\,(2\pi\upsilon_0 t)$ comme le bruit dit "*d'acquisition*"

$Cos\,(2\pi\nu_0 t)$, mais pas explicitement $s(t)$. Il s'agit d'une intercorrélation, et non pas d'une démodulation pure.

Le processus de démodulation consiste alors en l'évaluation de l'intégrale de valeur moyenne suivante :

$$\lim_{T\to\infty}\frac{1}{T}\int_0^T x(t)\times Cos\,(2\pi\nu_0)\times Cos\,(2\pi\nu_0-\varphi)\,dt\equiv\langle x\,(t)\rangle \tag{2.5}$$

x(t) étant le signal composite, $Cos\,(2\pi\nu_0 t)$ provenant de la modulation de l'excitation par le modulateur acousto-optique, et $Cos\,(2\pi\nu_0 t-\varphi)$ étant une tension de référence à la même fréquence ν_0 que la modulation, mais avec l'existence d'une phase φ. Il vient alors :

$$\begin{aligned}&\left\{\lim_{T\to\infty}\tfrac{1}{T}\int_0^T s\,(t)\times Cos\,(2\pi\nu_0 t)\times Cos\,(2\pi\nu_0 t-\varphi)\,dt\right\}+\\&+\left\{\lim_{T\to\infty}\tfrac{1}{T}\int_0^T b\,(t)\times Cos\,(2\pi\nu_0 t)\times Cos\,(2\pi\nu_0 t-\varphi)\,dt\right\}=\langle x\rangle_T\end{aligned} \tag{2.6}$$

Une simple formule de trigonométrie induit donc :

$$\begin{aligned}\langle x\rangle_T=&\left\{\lim_{T\to\infty}\tfrac{1}{2T}\int_0^T s\,(t)\times(Cos\,(\varphi)+Cos\,(4\pi\nu_0 t-\varphi))\,dt\right\}+\\&+\left\{\lim_{T\to\infty}\tfrac{1}{2T}\int_0^T b\,(t)\times(Cos\,(\varphi)+Cos\,(4\pi\nu_0 t-\varphi))\,dt\right\}\end{aligned} \tag{2.7}$$

Les trois derniers termes de cette intégrale convergent vers zéro si T tend vers l'infini, et donc :

$$\langle x\rangle_T=\lim_{T\to\infty}\tfrac{1}{2T}\int_0^T s\,(t)\times Cos\,(\varphi)\,dt=\tfrac{1}{2}\times\bar{s}\times Cos\,(\varphi) \tag{2.8}$$

Si la phase est choisie nulle, alors on aura :

$$\langle x\rangle_{T;\varphi=0}=\frac{\bar{s}}{2} \tag{2.9}$$

ceci à la condition que T tende vers l'infini.

2.2.3 Principe de la détection synchrone

Il est utilisée une fonction carrée (variant en amplitude entre 0 et 1) de récurrence ν_0, dite coré(ν_0) à la place de $Cos\,(2\pi\nu_0 t)$ dans la multiplication de x(t) (signal composite) par le cosinus. On aura donc à évaluer une valeur moyenne d'un produit de convolution

de U_{ref} par U_{sgn}. Ces deux quantités sont définies par :

$$\begin{cases} U_{\text{sgn}} = x(t) \times Cor(2\pi\nu_0) \\ U_{rf} = Cos(2\pi\nu_0 t - \varphi) \end{cases} \tag{2.10}$$

En résumé, il y a donc nécessité de moduler en amplitude l'excitation (faisceau optique de pompe) par une cellule acousto-optique. On module donc le faisceau qui génère le phénomène. Le signal recueilli à la photodiode est démodulé par le biais d'une détection synchrone qui effectue une intégration (moyenne temporelle) du produit de convolution entre U_{ref} et U_{sgn}, fait ressortir le signal ΔV directement proportionnel à ΔR modification de réflectivité due à des modifications photo-induites dans l'échantillon. On détecte donc l'effet physique produit en traitant le signal par démodulation avec une détection synchrone à la fréquence de modulation. Le modèle de détection synchrone utilisé est de la marque Stanford Research SR 844 de bande passante comprise entre 25 kHz et 200 MHz.υ_0 est pris entre 750 et 930 kHz dans la plupart des expériences présentées. Le signal recueilli provenant d'une succession de plusieurs millions d'impulsions, et considérant un temps de montée des photodiodes utilisées lent ($\approx$ 2 μs) en comparaison de l'inverse du taux de répétition (13 ns environ), le signal recueilli sera composé d'un fond quasi continu V auquel se superpose un signal modulé ΔV(ν_0). On a donc :

$$V_{total} \equiv V + \Delta V(\upsilon_0)\,, \tag{2.11}$$

à t donné. On a une valeur de ΔV(ν_0) pour un temps t considéré ; on filtre alors à la fréquence ν_0. La photodiode mesure ΔV(ν_0) qui est directement proportionnel à ΔR.

La présente étude consiste en des mesures optiques de réflectivité transitoire ; cette mesure peut néammoins *être complétée* par l'utilisation de moyens et méthodes interférométriques, developpées notamment, par exemple, par Perrin et al. qui détecte en 1996 des hypersons par cette méthodologie [71] [72], ou Hurley et al. [73], qui propose un interféromètre de Sagnac modifié en vue de la détection de phénomènes ultra-rapides.

Chapitre 3

Influence des propriétés du plasma électron-trou sur le spectre des phonons acoustiques cohérents

"...j'ai combiné une nouvelle méthode pour produire des sons au moyen de l'action de rayons lumineux intermittents sur les substances..."

Graham Bell, 2 Novembre 1880

Dans ce chapitre, la génération des phonons acoustiques haute fréquence sera étudiée dans le semi-conducteur GaAs. Cette génération de phonons acoustiques cohérents est un thème très largement étudié dans de nombreux composés. La possibilité de réduire la durée des impulsions acoustiques photo-générées a été envisagée en songeant à diminuer la profondeur de pénétration optique ξ ou en réduisant la durée τ_L de l'impulsion laser excitatrice [9] [21]. Dans le cas des semi-conducteurs, il a par ailleurs été montré [22] [74] que la durée τ_a des impulsions acoustiques peut également être réduite par diminution du temps de recombinaison dans le plasma électron-trou photogénéré dans le volume du matériau (*bulk*). Le cas du GaAs d'orientation cristalline de direction [100] sera ici étudié. En effet, selon cette direction, il n'existe majoritairement que des processus de génération gouverné par la contrainte de déformation de potentiel et par voie thermoélastique, la génération de phonons par contrainte piézo-électrique ayant été montrée comme inexistante par des arguments de symétrie dans la section (1.4.3) du chapitre 1 [1], contrairement aux directions piézo-actives [111] ou (411) par exemple, où des contributions piézo-électriques pourront éventuellement être prises en compte. Parmi les processus de génération de phonons acoustiques, il est admis communément que la contribution liée à la contrainte de

1. considérant un champ électrique de reconstruction E_{bif} dirigé selon la profondeur $\vec{e}_3$

déformation de potentiel σ_{eh} domine la contribution due à la contrainte thermo-élastique σ_{th}, et que le spectre de phonons acoustiques photo-générés est alors conditionné par les propriétés du plasma électron-trou [49]. Dans le chapitre **1**, il a été détaillé les paramètres physiques pouvant influencer les spectres de phonons acoustiques générés, et notamment les paramètres liés au plasma, tels que le coefficient de diffusion ambipolaire (D_{eh}), les mobilités électroniques et des trous (μ_e et μ_h), les masses effectives des électrons et des trous ($m^*(e^-;\Gamma)$, $m^*(h^+;\Gamma)$, ou $m^*(h^+;L)$) selon leur position dans la zone de Brillouin, ou la recombinaison du plasma (τ_R).

Même si les mécanismes de photo-génération dans GaAs ont été en l'occurence très étudiés, le GaAs étant un système modèle présentant une réponse claire et relativement facile à obtenir en acoustique picoseconde, il reste encore néammoins de nombreux points de discussion à aborder ou à développer concernant ces mécanismes.

En 2001, par exemple, il a été généré par Wright et al. [49] dans le GaAs des phonons acoustiques au moyen d'un faisceau pompe très peu pénétrant (profondeur de pénétration optique de $\xi \approx 15nm$), permettant ainsi l'accès théoriquement possible à un contenu fréquentiel haut en fréquence (compte tenu de la relation $f \equiv \frac{C_a}{\xi}$, où C_a est la vitesse des ondes acoustiques dans le milieu).

L'effet de la diffusion ambipolaire D_{eh} des électrons et des trous qui étend la région de contrainte photo-induite a limité l'accès aux hautes fréquences. Cependant, dans cette étude, si le spectre est assez bien reproduit selon un modèle prenant en compte cette diffusion ambipolaire, il existe des composantes haute fréquence ne pouvant être explicitement reproduites ou expliquées. Différentes hypothèses ont été avancées, notamment au niveau des comportements interfaciaux (recombinaison de surface), sans pouvoir néammoins apporter d'explications complémentaires relatives à ce type de mécanisme.

Il est ainsi nécessaire de tenter de contribuer à une meilleure description des processus de génération et de détection de phonons acoustiques haute fréquence, et d'essayer de mettre en évidence l'existence de composantes hautes fréquences pouvant apparaître dans le spectre de phonons photo-induits dans ce matériau.

Dans le cadre de ce chapitre, nous présenterons dans un premier temps les expériences qui nous ont permis de vérifier, dans le cas du GaAs de direction cristallographique [100], le caractère prédominant du processus de déformation de potentiel sur le processus thermo-élastique. Ces expériences portent sur un substrat nu (sans aucun dépôt de film mince en surface du substrat)[2] ou recouvert d'un dépôt de 180 nm de ZnO. Il sera confirmé par ces expériences, et les calculs proposés, l'importance majeure du plasma électron-trou

2. On considère alors un système semi-infini (de $700\mu m$ d'épaisseur)

photo-induit dans les processus de génération.

Ensuite, des expériences réalisées dans différentes configurations de pompe et de sonde sur le sytème ZnO/GaAs [100] seront présentées. Différentes épaisseurs de dépôt d'oxydes ZnO déposées et différents types de dopage pour le substrat de GaAs seront employés. Il sera mis en évidence via ces expériences originales une génération et une détection de phonons acoustiques en régime haute fréquence jusqu'à des valeurs bien au delà de la fréquence caractéristique de 7 GHz du spectre de phonons photogénérés. Des interprétations seront présentées au lecteur et une discussion se fera sur la base d'une simulation numérique complète à la fois de la génération et de la détection. Nous discuterons alors, sur la base de ces modèles numériques et analytiques, des conditions nécessaires à réunir pour détecter ces phonons hautes fréquences.

3.1 Génération d'ondes acoustiques par la contrainte de déformation de potentiel dans le GaAs

Il a été vu dans le premier chapitre que dans le cas des semi-conducteurs non piézo-actifs, et ne présentant pas de réponses en électrostriction, une excitation optique pouvait donner lieu à une onde acoustique selon deux processus distincts : l'un de déformation de potentiel et l'autre thermo-élastique. S'agissant du processus thermo-élastique, il est gouverné par le nombre de phonons générés par relaxation électronique intra-bande, nombre proportionnel à la quantité $h\nu - E_g$. Quant au processus de déformation de potentiel, il est conditionné par la donnée du nombre de porteurs hors équilibre, stationnant en bas [resp. *en haut*] des bandes de conductions [resp. *de valence*]. Cette approche ne reste valide que dans le cas où la fréquence de recombinaison des porteurs de charge hors équilibre est bien inférieure à la fréquence caractéristique des phonons acoustiques photo-générés en question (ici $f_a >> {}^1/_{\tau_R}$). Ceci est le cas pour le GaAs [41]. Aussi, d'un point de vue pratique, il est donc possible de faire varier la contribution à la génération de phonons par voie de contrainte thermoélastique en modifiant l'énergie lumineuse excitatrice, jusqu'à la réduire à quasiment zéro, dans le cas limite où $h\nu \cong E_g$ [3]. Nous avons étudié expérimentalement en premier lieu comment évoluait la photo-génération de phonons acoustiques, en faisant un balayage en énergie de la pompe et de la sonde de part et d'autre du gap (en centre de zone de Brillouin). Après présentation de ces résultats, nous discuterons différents aspects liés à la génération et/ou à la détection.

3. Il s'agit du cas où alors tout processus intra-bande disparait quasiment

3.1.1 Résultats expérimentaux

La réflectivité transitoire $\frac{\Delta R}{R}(t)$ en configuration pompe rouge et sonde rouge (et en configuration de pompe bleu et sonde rouge) est mesurée via le dispositif optique décrit en chapitre **2**. Des substrats de GaAs de direction [100] faiblement dopé ($N_0 \approx 10^{16} ent.cm^{-3}$) [4] et à dopage plus marqué ($N_0 \approx 10^{18} ent.cm^{-3}$) ont été étudiés. Des expériences pompe-sonde entre 720 nm et 880 nm, ce qui correspond à un pompage entre 1,72 eV et 1,41 eV ont été mises en oeuvre [5]. Les expériences ont lieu en configuration dite dégénérée car $\lambda_{pompe} = \lambda_{sonde}$. Entre 720 nm et 880 nm, on trouve la longueur d'onde critique pour laquelle $E_{pompe} \cong E_g(gap\ direct\ \Gamma)$. Les signaux de réflectivité transitoire expérimentaux obtenus en faisant varier la longueur d'onde λ_{pompe} sont présentés en figure **3.1**.

Nous constatons que si $E = h\nu > E_g$, alors nous observons clairement des oscillations Brillouin. Si $E \approx E_g$, bien que plus faibles en amplitude, on constate que ces oscillations restent visibles, et on observe une variation de signe de la réflectivité transitoire $\Delta R(t)$, qui devient négative. La figure **3.1** présente en encart du bas une vue grossie du signal de réflectométrie transitoire, mesurée pour une valeur d'énergie légèrement inférieure à E_g. Concernant les valeurs en énergie, notons que la longueur d'onde seuil de $\approx 860nm$ correspond à une énergie de environ $1,41eV$, valeur d'énergie très proche de celle nécessaire pour réaliser des transitions directes en centre de zone ($1,43eV$ en vallée Γ, gap direct à température ambiante [42]). Soulignons que le seuil d'absorption n'est pas abrupte, et donc il est clair qu'à $E \approx 1,41eV$, il y aura encore une absorption. De la figure **3.1**, on tire les résultats exposés en figure **3.2**. L'amplitude des oscillations Brillouin y est représentée en fonction de l'énergie du faisceau de pompe.

Nous avons par ailleurs mesuré le déphasage $\delta\phi_E$ des oscillations Brillouin entre un signal de référence et le signal à l'énergie E. La figure **3.3** décrit la méthode utilisée (pour une énergie E donnée) ; on a évalué $\delta\phi_E$ par un relevé expérimental, pour chaque énergie E, de la période Brillouin T_E [6] et de $t_E(i)$, temps correspondant, par rapport à une origine temporelle fixée identique pour tous les relevés, au (i)ème maximum d'oscillation [81] ; on a la relation :

$$t_E(i) = T_E \cdot \left(\frac{\delta\phi_E}{2\pi} + i\right) \quad \Leftrightarrow \quad \delta\phi_E(i) = \frac{2\pi}{T_E} \times (t_E(i) - i \cdot T_E) \tag{3.1}$$

4. $ent.cm^{-3}$ correspond à une densité : nombre d'entitées par cm^3

5. même s'il n'est présenté en figure **3.1** que les résultats relatifs à l'intervalle spectral entre $840nm$ et $870nm$, intervalle encadrant immédiatement le changement de phase

6. par affinement par la méthode des moindres carrés de la fonction $t_E(i)$

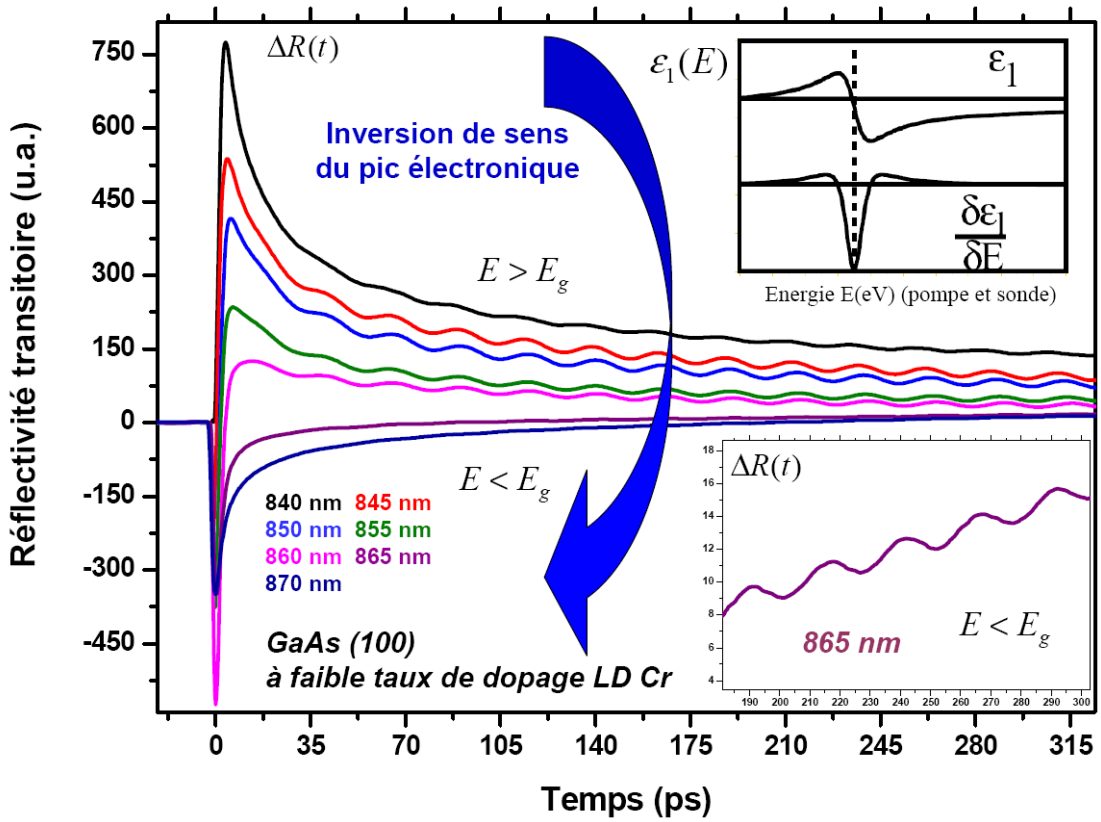


FIGURE 3.1 – Echantillon de GaAs [100] à faible taux de dopage. Signal de réflectométrie transitoire en montage pompe sonde en fonction de l'énergie E du photon en configuration pompe sonde dégénérée ($\lambda_{pompe} = \lambda_{sonde}$) ; encart du haut présentant l'évolution de la valeur de $\frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}(E)$ en fonction de l'énergie E déposé par le faisceau laser et existence d'un point singulier pour la valeur d'énergie E_g ; conditions expérimentales : sonde fixée à 12 mW et pompe à 50 mW ; encart du bas : existence d'oscillations Brillouin même si $E < E_g$

Cette relation nous permet d'extraire les phases $\delta\phi_E$ des signaux Brillouin. En reportant les valeurs des déphasages $\delta\phi_E$ en fonction de E, on obtient alors les résultats expérimentaux présentés en figure **3.3** pour deux échantillons : GaAs dopé de type n et GaAs à faible taux de dopage (LD Cr). En figure **3.3 (a)**, on présente la variation de phase en configuration pompe rouge / sonde rouge, et en figure **3.3 (b)**, il s'agit de la variation de phase en configuration pompe bleu / sonde rouge. Concernant l'échantillon avec dépôt (échantillon de GaAs [100] dopé de type n, doté d'un dépôt de $180nm$ de ZnO), il a été obtenu les résultats présentés en figure **3.4**, la longueur d'onde d'excitation variant alors de 800 à $860nm$. On y observe une similitude de comportement avec le cas où aucun dépôt d'oxyde n'est présent. On y retrouve de manière analogue un seuil en énergie et une variation de phase des signaux au passage de E_g.

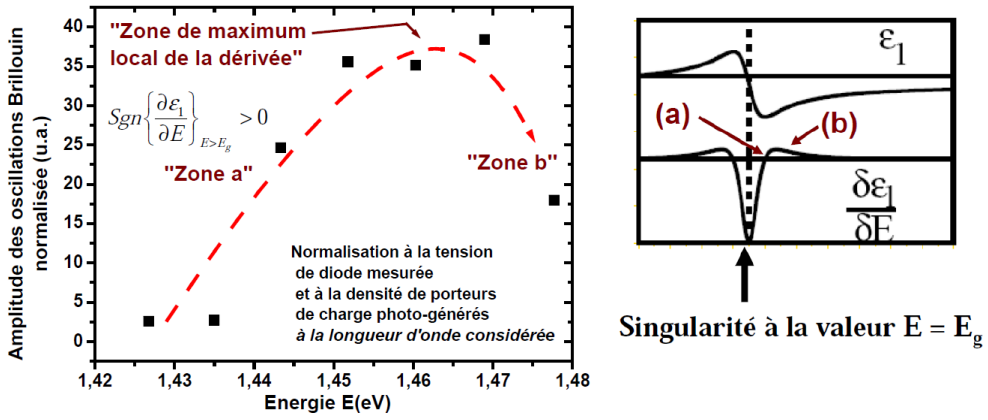


FIGURE 3.2 – *Figure de gauche* : Amplitude Brillouin (normalisée à la profondeur de pénétration optique ξ et à la tension de diode mesurée) en fonction de l'énergie E en eV. *Figure de droite* : Courbe dérivée de la permittivité diélectrique $\varepsilon_1(E)$ par rapport à l'énergie du faisceau de pompe E ; visualisation après la singularité (en $E = E_g$) responsable du changement de signe de la réflectivité transitoire, d'un accroissement de la fonction **(a)** puis d'une redécroissance relative **(b)** de la dérivée

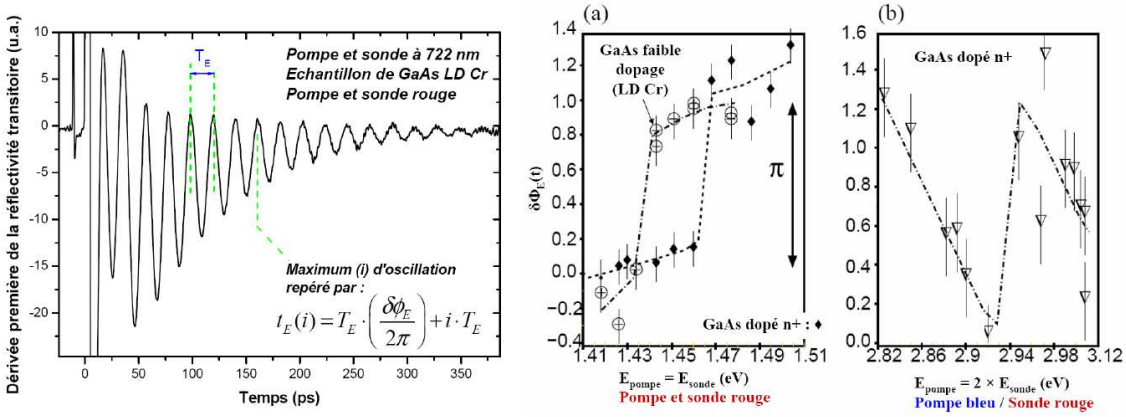


FIGURE 3.3 – Procédure d'évaluation des déphasages expérimentaux $\delta\Phi_E(i)$ du maximum d'oscillation Brillouin repéré par l'indice (i), position du i^{eme} maximum d'oscillation choisi sur le relevé expérimental. T_E est la période d'oscillation Brillouin à l'énergie E du photon. Résultats expérimentaux : évolution de la phase en fonction de l'énergie du faisceau laser ; **(a)** GaAs [100] faiblement dopé (LD Cr) (*cercles creux*) et GaAs [100] dopé de type n+ (*cercles pleins*) ; **(b)** GaAs [100] dopé de type n+ (*triangles creux*) ; cas de 2 configurations différentes de pompe et de sonde

A l'appui de ces résultats expérimentaux, on va, dans ce qui suit, mettre en évidence le fait que l'on passe d'un cas où le processus de génération est mixte (régime où existe simultanément les mécanismes de génération par thermoélasticité et par déformation de

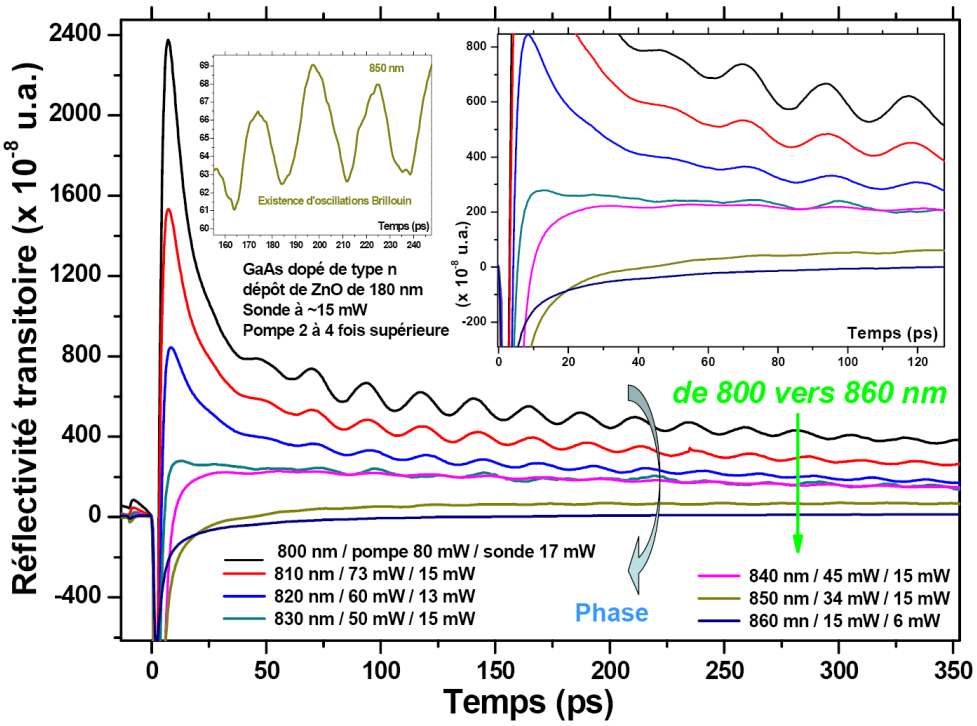


FIGURE 3.4 – Variation de la longueur d'onde (de 800 nm à 860 nm) du faisceau de pompe ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de $180nm$; encart de gauche : existence d'oscillations Brillouin à 850 nm ; encart de droite : agrandissement de la zone 0 à 60 ps

potentiel) à une situation où la contrainte de déformation de potentiel est majoritairement présentée comme l'unique mécanisme pour exciter des phonons acoustiques. La compréhension des résultats expérimentaux passe par l'analyse des phénomènes liés à la génération et à la détection.

3.1.2 Discussion et analyse

Première approche

Les relevés expérimentaux expriment le fait qu'il est possible de générer et d'observer des phonons acoustiques cohérents ($\approx 40GHz$) pour une énergie lumineuse d'excitation variant de $1,41$ à $1,71$ eV, avec pour $h\nu \cong E_g$ un changement de signe de $\Delta R(t)$. Ces résultats montrent que lorsque l'on supprime les phénomènes de relaxation intrabandes des porteurs photo-excités (sous le seuil $h\nu \approx E_g$), il reste encore possible d'observer les phonons acoustiques. Cette indication montre que le processus électronique est efficace dans le GaAs ; cette affirmation repose sur l'hypothèse que les porteurs photo-excités ont un temps de vie assez long et ne se recombinent pas de façon non-radiative par exemple.

Ce dernier mécanisme conduirait en effet à un effet thermo-élastique. Si nous calculons le temps de recombinaison bimoléculaire $\tau_R \approx \frac{1}{BN}$ en utilisant la valeur de B mentionnée par [77], ceci aux fluences utilisées dans nos expériences ($0,37 mJ.cm^{-2}$), nous trouvons bien un temps de recombinaison long (typiquement tel que $\tau_R > 1ns$ [7]). Nous pouvons ainsi dire que l'excitation de phonons acoustiques cohérents pour $h\nu \cong E_g$ est bien gouvernée par la contrainte de déformation de potentiel.

S'agissant du temps caractéristique de génération de la contrainte photo-induite, on considérera que si l'impulsion laser possède une largeur à mi-hauteur valant $\tau_L \approx 200fs$, alors le temps caractéristique de génération lié à la contrainte photo-induite sera aussi de cet ordre de grandeur, car l'excès de trous en haut de la bande de valence, et l'excès d'électrons en bas de la bande de conduction, apparaissent dès la création de la paire électron-trou par l'excitation optique laser [8]. Or à l'énergie de laser de pompe $E = 1,41eV$, il n'y a pas de processus de relaxation intrabande, car, pour cette énergie, on effectue une promotion d'électrons quasiment directement en bas de bande de conduction [9]. Le plasma électron-trou se trouve alors *directement* en état *métastable* en bas de bande de conduction pour les électrons, et en haut de bande de valence pour les trous, et reste dans cet état pendant un temps supérieur à la nanoseconde.

Ainsi, à $E = E_g$, on a des signaux acoustiques photo-produits provenant très raisonnablement d'un mécanisme de contrainte de déformation de potentiel (σ_{eh}) qui alors domine. Il s'agit d'une illustration claire de l'importance du rôle du plasma intrabande (pour GaAs) pour la génération de phonons acoustiques.

Fort de cette mise en évidence, il est possible de décrire plus en détails les propriétés du spectre de déformation $\eta(\omega)$ photo-induit.

Rappel de l'expression du champ de déformation (spectre acoustique théorique)

Les calculs numériques menés utilisent la formule du champ de déformation $\eta(\omega)$ obtenu [66], et rappelé par l'expression **(3.2)**, qui est valable (*hypothèse*) si la contrainte de déformation de potentiel σ_{eh} est prédominante.

7. $\frac{1}{\tau_R} << 40GHz$, car on détecte à la pulsation Brillouin

8. La fonction donnant la valeur de cette contrainte de déformation de potentiel en fonction du temps est représentée par une fonction de Heaviside

9. Il est parfois possible en cas de pompage par laser bleu de provoquer une transition inter-bande : c'est-à-dire que les porteurs de charges thermalisent vers le fond de la bande de conduction, mais dans une vallée différente de celle qui était attendue : descente en vallée X ou L à la place d'une redescente vers le fond de vallée Γ, après passage du puit d'énergie relatif à la vallée Γ vers le puit d'énergie relatif à la vallée X ou L en BC

$$\eta(\omega) \propto \frac{(-i\omega)^2 \cdot m_{D_{eh}} \cdot \omega_{D_{eh}}}{\omega_{D_{eh}}(\omega_R - i\omega) + \omega^2} \times \left[\frac{\omega_{D_{eh}}}{\omega^2 + m_{D_{eh}}^2 \cdot \omega_{D_{eh}}^2} + \frac{1}{\sqrt{\omega_R - i\omega} \cdot \left(m_{D_{eh}} \cdot \omega_{D_{eh}}^{1/2} + \sqrt{\omega_R - i\omega} \right)} \right] \tag{3.2}$$

où α est le coefficient d'absorption optique [44] [49], C_a la vitesse acoustique longitudinale, et D_{eh} le coefficient de diffusion ambipolaire. $\omega_{D_{eh}} = \frac{C_a^2}{D_{eh}}$ correspond à la pulsation au delà de laquelle l'onde de plasma va plus vite que le front d'onde acoustique généré. $\omega_R = \frac{1}{\tau_R}$ est un temps caractéristique de recombinaison. $m_{D_{eh}} = \frac{\alpha \cdot D_{eh}}{C_a} = \frac{t_a}{t_e} = \frac{\xi / C_a}{\xi^2 / D_{eh}}$ est un terme décrivant le rapport entre le temps nécessaire aux ondes acoustiques pour quitter la zone d'absorption optique (t_a) et le temps (t_e) nécessaire aux porteurs de charges pour diffuser au delà de cette zone d'absorption optique proprement dite.

La formule donnée en **(3.2)** va nous permettre de tracer l'amplitude du champ de déformation η et la phase $\delta\varphi$. La profondeur de pénétration optique ξ, donc le coefficient d'absorption optique α, est le seul paramètre de la simulation que l'on prendra variable pour nos calculs (troisième ligne de l'ensemble des facteurs , listés en **(3.3)** :

$$\begin{cases} D_{eh} = 3,3 \times 10^{-4} m^2.s^{-1} \\ \tau_R \approx 1ns \\ \xi \in \left[720\,;\,890\right] nm \Leftrightarrow E \in \left[1,6\,;\,1,3\right] eV \\ C_a = 4730 m.s^{-1} \end{cases} \tag{3.3}$$

Etude de la phase des oscillations Brillouin en configuration de pompe et sonde rouge

Nous effectuons la simulation de l'amplitude et de la phase du champ de déformation acoustique $\eta(\omega)$ (figure **3.5**) à la pulsation particulière de détection, à savoir $\omega = \omega_B$, car nous ne détectons que la seule composante spectrale liée à la pulsation Brillouin. Le temps τ_R (de l'ordre de $1ns$) étant très supérieur au temps d'observation expérimental, la dynamique de recombinaison n'a donc pas d'impact dans cette étude.

Ces calculs (figure **3.5**) montrent une variation très faible de la phase théorique du champ de déformation, alors que la figure **3.3** donnant les résultats expérimentaux obtenus présente une variation de phase de $\approx 180°$. L'amplitude calculée de la déformation acoustique augmente après l'énergie de gap E_g. En effet, au delà du seuil $h\nu = E_g$, l'amplitude de la déformation acoustique $\eta(E)$ est effectivement sensée augmenter, du fait de la variation du coefficient α avec E, ce que montre effectivement bien la courbe calculée (figure **3.5**). Les résultats numériques (en configuration pompe rouge/sonde rouge) montrent que l'on ne peut pas rendre compte du saut de phase de 180° (via les calculs de spectre

de phonons). On rend compte d'une augmentation de l'amplitude car α augmente quand la longueur d'onde d'excitation diminue. Cependant, on ne reproduit pas la rediminution de l'amplitude du spectre acoustique quand l'énergie de pompe est supérieure à $1,47$ eV. Cet écart entre le comportement du spectre de génération des phonons et l'expérience est dû à un effet de détection comme nous allons le voir.

Processus de détection

Dans le cas du GaAs [100] étudié, il a été observé un changement de signe de la réflectivité transitoire $\Delta R(t)$ pour la valeur seuil E_g. L'hypothèse la plus probable est celle vraisemblablement liée à un phénomène de détection ; nous allons en effet voir que ce changement est lié à un changement de signe des coefficients photo-élastiques. Pour celà, il faut revenir à la formulation générale de la réflectivité transitoire donnée en **(1.134)**, exprimable sous forme réduite en :

$$\frac{\Delta R}{R} = \sum_i (\frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_i}) \cdot \Delta\varepsilon_i \tag{3.4}$$

qui se développe en :

$$\frac{\Delta R}{R}(t) = \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_1}\Delta\varepsilon_1 + \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_2}\Delta\varepsilon_2 \;\Leftrightarrow\; \frac{\Delta R}{R}(t) = \alpha \times \Delta\varepsilon_1 + \beta \times \Delta\varepsilon_2 \tag{3.5}$$

Selon les courbes présentées par Séraphin et al. [80], données en figure **3.6**, à l'énergie $E \approx 1,41eV$ (à proximité de l'énergie de transition interbande en gap direct), on a :

$$\frac{\Delta R}{R}(t) \approx \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_1}\Delta\varepsilon_1 \;\Leftrightarrow\; \frac{\Delta R}{R} \approx \alpha \times \Delta\varepsilon_1 \tag{3.6}$$

En effet, d'après les données relatives aux parties imaginaires et réelles des coefficients photo-élastiques, à cette valeur d'énergie de $1,4eV$ ou $1,7eV$, on a :

$$\alpha >> \beta \tag{3.7}$$

On aura un terme $(\alpha \times \Delta\varepsilon_1)$ clairement prédominant sur l'autre $(\beta \times \Delta\varepsilon_2)$ ceci à l'énergie de pompe considérée, comme le montre très bien la courbe présentée en figure **3.6**.

Si on introduit la coordonnée normale Q et la constante de déformation de potentiel $\frac{\partial E}{\partial Q}$, alors la variation de la partie réelle de la permittivité di-électrique s'écrit :

$$\Delta\varepsilon_1(t) = \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}\frac{\partial E}{\partial Q}\Delta Q \tag{3.8}$$

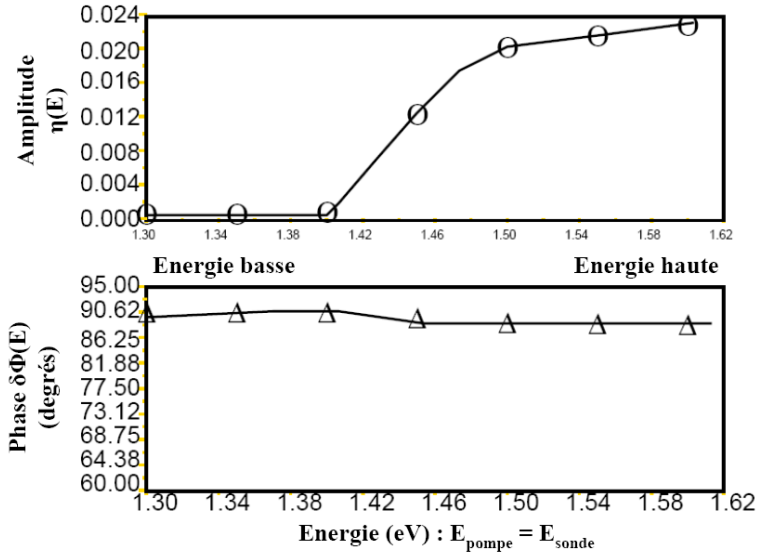


FIGURE 3.5 – Calculs théoriques sur l'amplitude $\eta(\omega)$ et sur la phase $\delta\phi_E = arg(\eta(\omega))$ en condition pompe et sonde rouge ; valeur du coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} à $3cm^2.s^{-1}$. La quasi absence de changement de phase calculé ($\approx 1°$) en configuration rouge-rouge montre que le saut de 180° mesuré expérimentalement est ***lié à un processus de détection***

On mesure expérimentalement la quantité [10] donnée en **(3.9)**, considérant l'expression **(3.6)** :

$$\frac{\Delta R}{R} \cong \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_1} \cdot \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E} \cdot \frac{\partial E}{\partial Q} \Delta Q \tag{3.9}$$

On peut ainsi dire que s'il existe une perturbation de réflectivité transitoire, à 800 nm, son origine réside principalement dans la variation induite sur la partie réelle de la constante diélectrique [11] ϵ_1, le signe des autres quantitées de l'expression **3.9** restant constant.

Dans le cas présenté en figure **3.1**, en pompe et sonde rouge, en régime de transition interbande de centre de zone de Brillouin vers la vallée Γ, le signe des signaux de réflectivité transitoire sera ainsi gouverné par le signe de la dérivée de la partie réelle $\varepsilon_1(E)$. L'encart en haut à droite de la figure **3.1** décrit l'évolution du changement de signe de cette dérivée

10. La quantité donnée en **(3.6)** s'écrit aussi $\Delta\varepsilon_1 = \frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}\frac{\partial E}{\partial P}\Delta P$

11. On rappelle que pour un processus de détection en transition interbande, entre la bande de valence et de conduction, la permittivité traduit la réponse d'un diélectrique : $\varepsilon_1 = \Re e\left\{1 + \frac{4\pi|e|^2}{4\pi\varepsilon_0 m^*} \times \left[\sum_k \left(\frac{2}{m\hbar\omega_{CV}}\right) \times \left(\frac{|P_{CV}|^2}{\omega_{CV}^2 - \omega^2 + i\Gamma\omega}\right)\right]\right\}$ où $|e|$ est la charge élémentaire de l'électron, m^* est la masse effective de l'électron à la transition considérée, $\hbar\omega_{CV}$ est l'énergie de la transition optique, ω_{CV} est la pulsation associée, P_{CV} la probabilité de passage associée à $BV \rightarrow BC$ et $\Gamma \propto \frac{1}{\tau}$

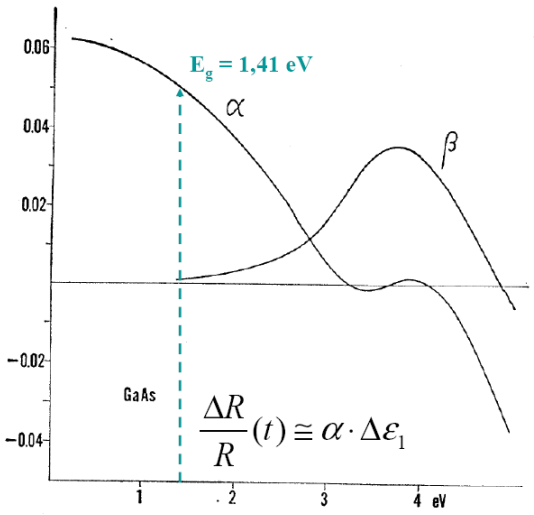


FIGURE 3.6 – Diagramme présentant les valeurs des coefficients α et β en fonction de l'énergie E de l'impulsion laser ; tiré de [80], interface air/GaAs

de $\epsilon_1(E)$ par rapport à la variable E. Cette dérivée de la fonction $\epsilon_1(E)$, par rapport à l'énergie du faisceau laser E présente une singularité (changement de signe) pour la valeur d'énergie particulière $E \cong E_g$. Cette courbe permet d'apporter un élément d'explication relativement au changement de signe des signaux de réflectivité transitoire.

Un autre point concerne l'amplitude des oscillations Brillouin, qui augmente de manière monotone avec l'énergie du laser de pompe (figure **3.1**), mais rediminue au delà d'un certain seuil en énergie (oscillation Brillouin sur la courbe noire à $840nm$ en figure **3.1**). En reprenant la courbe $\frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}(E)$ présentée, on constate que cette courbe rediminue (encart en figure **3.2**, flèche **b**) après être passée par un maximum local relatif (encart en figure **3.2**, flèche **a**), ce qui pourrait expliquer la redécroissance des amplitudes Brillouin visible sur les signaux de la figure **3.1**. On constate en effet un comportement similaire entre $\frac{\partial \varepsilon_1}{\partial E}(E)$ donné en encart de la figure **3.2**, où l'on observe une augmentation **(a)** puis une rediminution d'amplitude **(b)**, et l'amplitude des oscillations Brillouin normalisée à ξ [12].

Etude de la phase des oscillations Brillouin en configuration pompe bleu/sonde rouge

S'agissant des propriétés du spectre de phonons photo-excités par une pompe optique bleue, nous avons également mené une étude théorique, les signaux expérimentaux étant présentés en figure **3.3**. Le calcul du spectre repose toujours sur l'expression **(3.2)**. Cette expression est toujours valide car on a bien, selon nos estimations, un rapport théorique

12. On divise par ξ afin d'exprimer $\frac{\Delta R}{R}(t)$ normalisée à la densité de porteurs de charges photo-excités

$\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}}$ donné par[13] (considérant l'expression **(1.47)**) : $\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}} >> 1$, ceci pour $h\nu_L \approx E_g$, et relativement à un plasma créé par excitation en centre de zone de Brillouin.

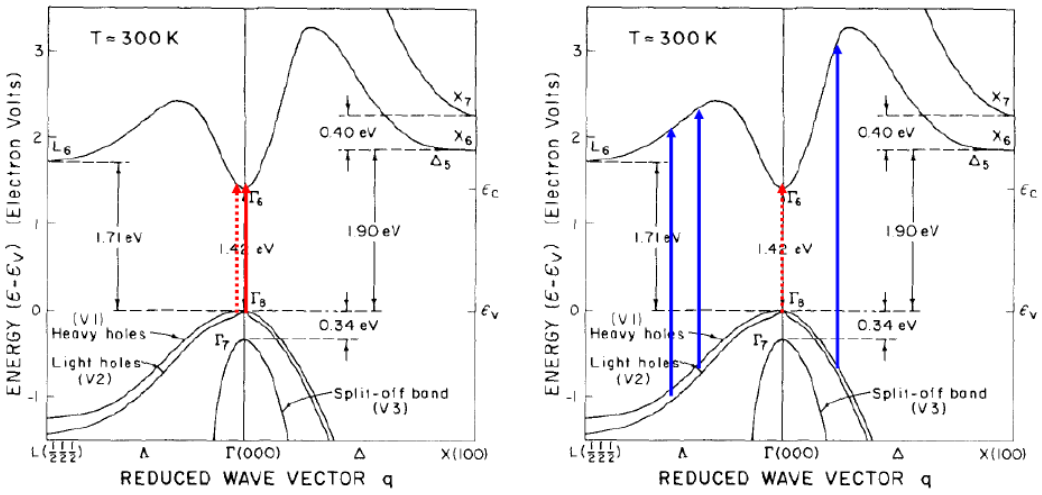


FIGURE 3.7 – Diagramme de bande de GaAs à 300 K, tiré de [41], cas dégénéré en rouge et situation de pompe bleu/sonde rouge. Energie et position des bandes en fonction du vecteur d'onde réduit q.

En effet, les masses effectives différent selon la vallée considérée (figure **3.7**) :

$$m^*(e^-, L) \approx 30 \times m^*(e^-, \Gamma) \tag{3.10}$$

ceci considérant les données de masse effective suivantes [42] :

$$\begin{cases} m^*(e^-, \Gamma) = 0,067 \times m_0 \\ m^*(e^-, L)_l = 1,9 \times m_0 \\ m^*(e^-, L)_t = 0,076 \times m_0 \end{cases} \tag{3.11}$$

Aussi, deux types de calculs ont été réalisés ; l'un où l'on considère que les électrons sont promus en vallée Γ et l'autre où l'on considère qu'ils sont promus en vallée L. En changeant de vallée dans la bande de conduction, le coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} des porteurs de charges décroit en raison de l'augmentation de la masse effective. Si l'on considère le rapport de 30 entre les masses effectives relatives aux vallées Γ et L, alors, compte tenu de la valeur connue du coefficient de diffusion ambipolaire en vallée Γ (à savoir $D^{\Gamma}_{eh} = 3cm^2.s^{-1}$), on prendra donc pour la vallée L un coefficient de $D^{L}_{eh} = 0,1cm^2.s^{-1}$.

13. D'après [78], on a $\frac{\partial E^{\Gamma}_g}{\partial P} = 10eV.Mbar^{-1}$, $\frac{\partial}{\partial P}(E_L - E_\Gamma) = 5,5eV.Mbar^{-1}$ et $\frac{\partial}{\partial P}(E_X - E_\Gamma) = -2,5eV.Mbar^{-1}$, d'où pour le GaAs : $\frac{\sigma_{eh}}{\sigma_{th}} \approx \frac{C_V \cdot \frac{\partial}{\partial P}(E_{BC} - E_{BV})}{3\beta \times (E - (E_{BC} - E_{BV}))} >> 1$

Les simulations présentées en figure **3.8** ont été réalisées en outre en utilisant les valeurs de paramètres suivants :

- Coefficient α tabulé [44] : $\alpha(\lambda_{pompe} = 440nm; E_{pompe} = 2,82eV) = 2,8 \times 10^7 m^{-1}$
- Temps de recombinaison conservé à sa valeur type "temps long" : $\tau_R \approx 1ns$
- Zone de vallée Γ ayant été atteinte par les porteurs de charges en utilisant $E_{pompe} \approx 2,82eV$, ce qui correspond expérimentalement à un réglage de la cavité à $\lambda = 880nm$ (avec utilisation d'un cristal doubleur de BBO inclus sur le trajet du faisceau laser permettant d'obtenir $\lambda = 440nm$).

Ces résultats confirment bien le fait qu'un changement de phase $\delta\phi(E)$ clair est attendu. Ce changement de phase est lié à une singularité de la dynamique du plasma électron-trou au passage de la limite (seuil L/Γ). Le calcul fait cependant ressortir un saut de 30° qui reste cependant plus petit que le saut de 180° observé expérimentalement.

Ce saut de phase doit donc avoir une origine liée au processus de détection. Nous avons vu que lorsque nous sondions dans le domaine Visible-UV (en pompe et sonde rouge), il était possible d'expliquer un tel saut de phase à partir de l'étude du coefficient photo-élastique. Nous pensons donc que la démonstration faite précédemment est valide ici pour expliquer le saut de phase de 180° observé sur les expériences bleu-rouge. Néammoins, il restera à expliquer la forte dépendance en énergie de la phase observée en figure **3.3** sur les intervalles [2,82 ; 2,92 eV] et [2,94 ; 3,12 eV], que ne rend pas compte le modèle actuellement.

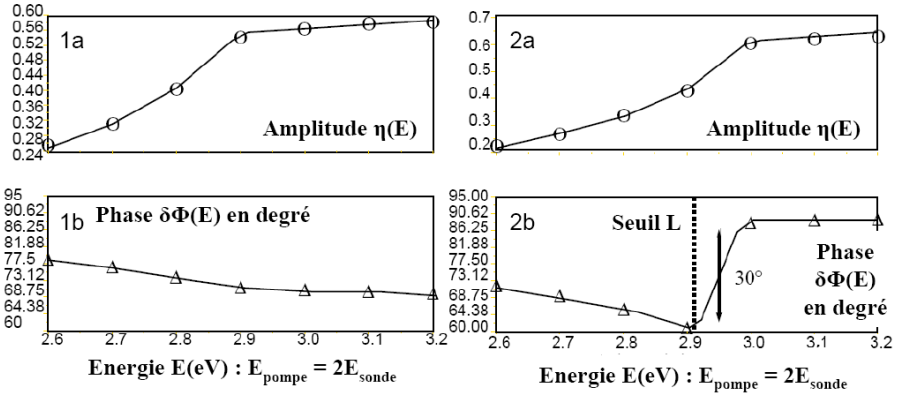


FIGURE 3.8 – Calculs théoriques menés en utilisant la forme $\eta(\omega)$ et calcul de la phase $\delta\phi_E$. **1a** et **1b** : $D_{eh} \cong 3cm^2.s^{-1}$ en vallée Γ. **2a** et **2b** : $D_{eh} \cong 0,1cm^2.s^{-1}$ en vallée L. $E_{pompe} = 2 \times E_{sonde}$. Existence d'un saut de phase de 30° en situation **2b**

En effet, sur la figure **3.8 1a**, on constate une dépendance *linéaire par morceaux* de l'amplitude $\eta(E)$ et une dépendance linéaire de la phase $\delta\phi(E)$, où l'on observe une variation *linéaire* de 13° pour une élévation de $0,6eV$ de l'énergie E de pompe.

A titre de bilan des deux parties précédentes, il a donc été étudié le GaAs de direction cristallographique [100], en tant que substrat semi-infini, à des énergies d'excitation optiques différentes. Il a été clairement montré la prédominance d'un des deux mécanismes existants ($\sigma_{eh} >> \sigma_{th}$) sur l'autre s'agissant tout au moins de la configuration rouge/rouge (génération et détection en centre de zone), ce qui nous a permis de confirmer l'importance de la maitrise des propriétés du plasma électron-trou, via la maîtrise de ses paramètres : coefficient de diffusion ambipolaire, mobilité des porteurs de charges, masses effectives des porteurs de charges, temps de recombinaisons...

S'agissant des expériences d'excitation avec des photons UV (et en détection IR-VIS), notre analyse nous a permis d'expliquer une partie des résultats et de mettre en évidence, d'un point de vue théorique, des effets potentiels de masse effective. Il reste néammoins à travailler sur la compréhension de certains points des propriétés du spectre obtenu dans cette configuration.

3.2 Dynamique du plasma électron-trou et génération de phonons acoustiques hautes fréquences

Dans le cas du semi-conducteur GaAs, il ressort que la contrainte de déformation de potentiel σ_{eh} domine la contrainte de thermoélasticité σ_{th}. Afin d'élargir le spectre des phonons détectés au delà de la fréquence Brillouin, nous travaillons dans cette partie avec un substrat de GaAs recouvert d'une couche transparente, ce qui va permettre de réaliser des expériences "temps de vol"' et de détecter directement les impulsions acoustiques. Nous présentons maintenant des expériences de photo-génération et de photo-détection révélant l'existence d'un contenu fréquentiel élevé (c'est-à-dire supérieur à 100 GHz). Nous allons présenter dans un premier temps les échantillons utilisés, puis les configurations expérimentales de pompe et de sonde optique utilisées, les résultats expérimentaux obtenus, et enfin nous présenterons une discussion relative aux mécanismes de génération et de détection de phonons acoustiques. Des simulations seront détaillées en vue de leur comparaison avec les signaux expérimentaux obtenus. Les paramètres des simulations seront explicités et une reproduction qualitative de signaux sera faite. Une discussion approfondie des processus de détection apportera certains éléments de réponse pour mieux comprendre l'origine de l'observation des phonons acoustiques haute fréquence.

3.2.1 Systèmes étudiés

Plusieurs types d'échantillons ont été étudiés ; un film de ZnO a été déposé sur chacun de ces substrats de GaAs de direction cristallographique [100] commerciaux. Comme indiqué en introduction, cette couche mince déposée agit comme une ligne à retard pour les phonons et permet ainsi la détection d'échos acoustiques, après un temps de vol aller-retour au sein de la dite couche. Cette ligne à retard permet la détection d'échos acoustiques, contenant potentiellement tout le spectre de phonons photo-générés, ce que ne permet pas un système semi-infini comme un substrat nu de GaAs, à moins de travailler dans la gamme des basses températures, en excitant l'échantillon en face avant et en détectant en face arrière du même échantillon [14].

Les trois échantillons utilisés sont les suivants :

1. GaAs [100] dopé de type n de niveau de dopage 10^{18} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt de ZnO valant d = 180 nm
2. GaAs [100] dopé de type n de niveau de dopage 10^{18} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt de ZnO valant d = 280 nm
3. GaAs [100] à bas taux de dopage (de dénomination *Low Doped Cr*) de niveau de dopage 10^{16} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt valant d = 280 nm
4. Il a aussi été étudié un substrat de GaAs [100] à faible taux de dopage (10^{16} cm^{-3})) sur lequel un dépôt de SiO_2 a été déposé (par PECVD : *Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, méthode mise en oeuvre par Karine Blary, IEMN*). Différentes épaisseurs de SiO_2 (200 et 500 nm) ont été déposées par cette méthode.

On peut résumer les propriétées des échantillons utilisées dans un tableau récapitulatif (figure **3.9**).

Les dépôts de ZnO ont été effectués par pulvérisation cathodique (*réalisations de Evgeny Morozov et de Mathieu Edely*) selon deux méthodologies de dépôt [15] :

1. Utilisation d'une cible polycristalline de ZnO, sous 200°C durant 30 minutes [16], produisant un dépôt de d = 180 nm (*méthode employée par Evgeny Morozov*)
2. Utilisation d'une cible de métal Zn pulvérisé dans une atmosphére gazeuse enrichie en O_2 sous 33 bar, à température ambiante, durant 37 minutes permettant la

14. Peronne *et al.*, 2010

15. Il est à noter que des processus de fabrications différents peuvent induire des différences de cristallinité au sein des couches d'oxydes (ZnO, SiO_2 ou autres), donc induire des différences de couplages photo-élastiques entre le faisceau de sonde et les phonons acoustiques dans le film de ZnO ou de SiO_2 déposé.

16. sous pression partielle d'argon et de dioxygène $P_{Ar} = P_{O_2} = 50bar$

Échantillon	Substrat utilisé	Type de dopage considéré	Type de ligne à retard	Épaisseur de la ligne à retard (nm)
1	GaAs (100)	Dopé n+	ZnO	180
2	GaAs (100)	Dopé n+	ZnO	280
3	GaAs (100)	LD (*Low Doped*) Cr	ZnO	280
4	GaAs (100)	SI (*Semi-Insulating*)	SiO_2	200
5	GaAs (100)	SI(*Semi-insulating*)	SiO_2	500

FIGURE 3.9 – Tableau récapitulatif des échantillons étudiés et de leur caractéristiques

formation de ZnO en dépôt de 280 nm d'épaisseur sur le substrat de GaAs

La qualité de l'interface entre le ZnO et le GaAs a été examinée par comparaison des signaux obtenus par spectroscopie Raman (*expériences réalisées sous la conduite de Alain Bulou*), ceci entre des échantillons de GaAs [100] dopé de type n sur lequel du ZnO a été déposé et des échantillons de GaAs [100] dopé de type n nu. Cet échantillon a ainsi été analysé sur les 52 premiers nanomètres de GaAs (longueur d'onde de travail de $\lambda_{CW} = 457,9\ nm$). L'objectif de cette étude par spectroscopie Raman est de vérifier que la présence d'un dépot de ZnO n'a pas affecté la zone des premiers cinquante nanomètres du GaAs (pour l'échantillon 1)). Les spectres des deux composés sont similaires, la fréquence des modes ne varie pas, et aucune distorsion n'a été détectée sur les raies, ce qui montre que, dans la limite de sensibilité de l'appareil utilisé, le film mince de ZnO déposé n'engendre pas de perturbation sur les cinquantes premiers nanomètres de GaAs. Aucune contrainte résiduelle, ni aucune présence de défauts additionnels n'a ainsi été détectée. Il a néammoins été observé l'existence d'une épaisseur de 3 nm d'épaisseur détectée par réflectivité des rayons X sur les substrats de GaAs (voir la figure **3.10**), correspondant à une couche d'oxydation native. Il s'agit d'oxyde d'arseniure As_2O_3 à la surface du GaAs [17] identifiée par l'existence d'une légère oscillation sur le diagramme de réflectivité X présenté en figure **3.10**. Ce phénomène d'oxydation superficielle est bien connue dans le cas du semi-conducteur GaAs [82], sa surface étant très réactive.

17. Position angulaire $2\theta = 44{,}5°$ du spectre de réflectivité X

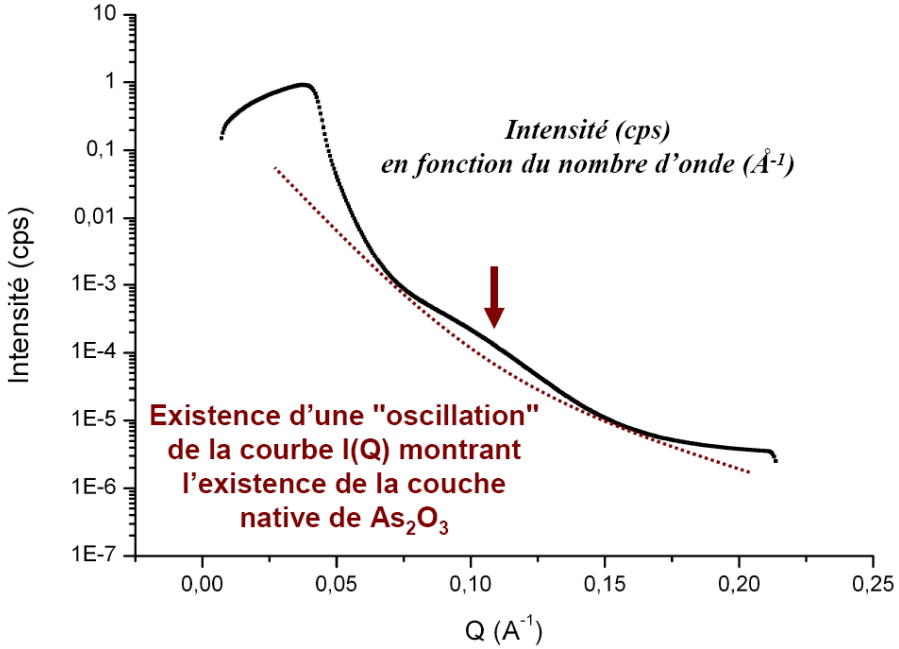


FIGURE 3.10 – Diagramme en réflectivité X du système ZnO/GaAs LD Cr ; intensité en coup par seconde (cps) en fonction du nombre d'onde Q. Existence d'oscillations par rapport à la courbe moyenne

3.2.2 Conditions expérimentales

Dans ce qui suit, l'irradiation par lumière *bleue* désigne une longueur d'onde d'environ 400 nm, et une irradiation *rouge* désigne une longueur d'onde d'environ 800 nm. On utilise un montage optique pompe sonde en réflectivité transitoire. On mesure donc le signal de réflectivité optique des échantillons photo-excités en fonction du temps. Le montage expérimental décrit en figure **2.1** est utilisé. On excite des ondes acoustiques par des rayonnements rouges et on détecte au moyen de rayonnements rouge et bleu (UV) produits par l'utilisation d'un cristal de BBO permettant la génération de seconde harmonique. L'énergie de gap du ZnO (nature du film déposé) vaut 3,4 eV [83] ; l'énergie de gap en vallée Γ de GaAs (substrat de GaAs) vaut 1,43 eV ; l'excitation du système film + substrat se fait entre 1,41 eV et 1,73 eV (énergies d'irradiation lumineuse auxquelles le ZnO est transparent. A ces gammes d'énergies (figure **3.11**), on excite directement dans le GaAs.

3.2.3 Signaux expérimentaux relatifs au système ZnO/GaAs et au système $SiO_2/GaAs$

Les résultats expérimentaux relatifs aux échantillons décrits en **3.9** sont présentés dans le présent paragraphe.

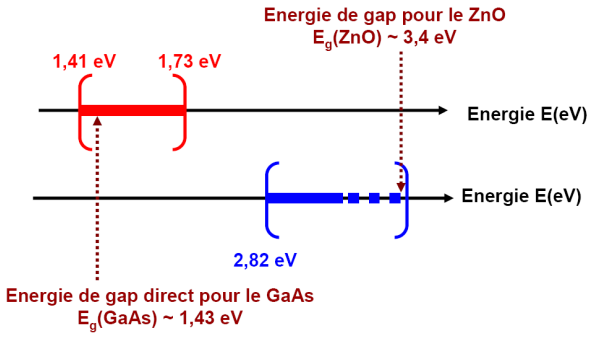


FIGURE 3.11 – Gamme d'énergie des excitations lasers rouge et bleu ; valeurs des énergies de gap E_g(GaAs) et E_g(ZnO) [85]

GaAs [100] de niveau de dopage 10^{18} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt de d = 180 nm

Différents résultats expérimentaux ont été obtenus. Tout d'abord, en utilisant une pompe et une sonde rouge (à 790 nm) irradiant cet échantillon, on obtient le résultat expérimental présenté en figure **3.12**, figure où l'on distingue clairement le signal Brillouin.

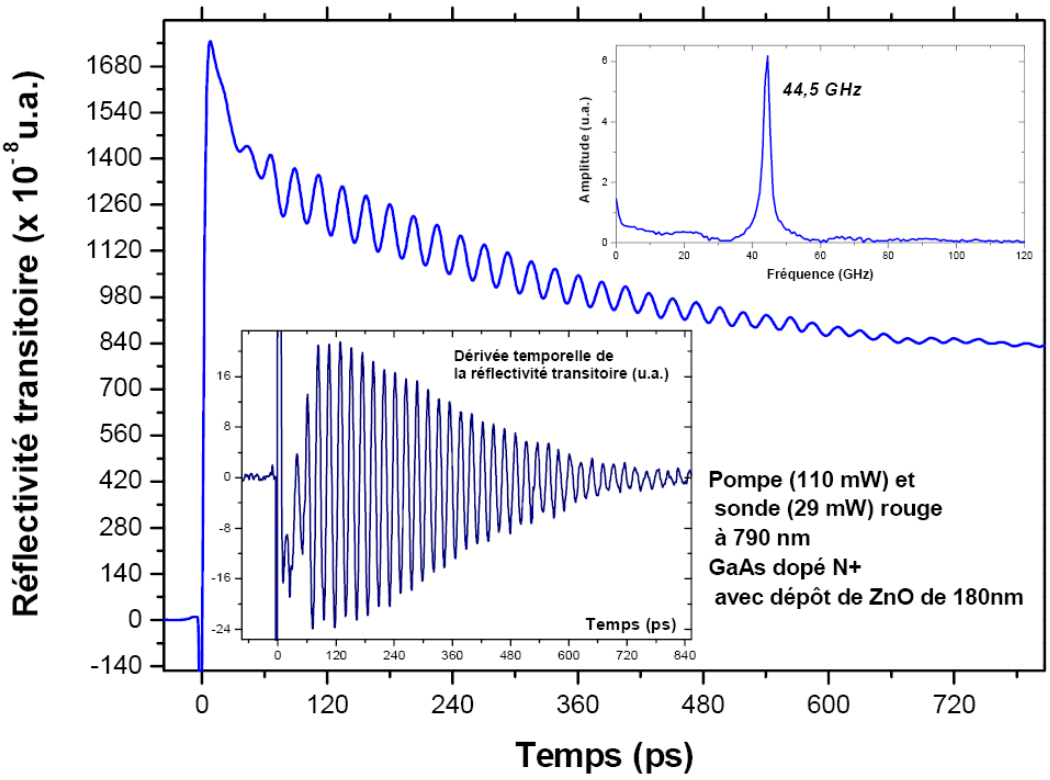


FIGURE 3.12 – Enregistrement entre 0 et 800 ps relatif à un échantillon de GaAs dopé de type n avec dépôt de ZnO ; pompe optique à 110 mW et sonde à 29 mW ; longueur d'onde utilisée : 790 nm

Les signaux de réflectivité transitoire en fonction de la puissance du faisceau de pompe optique sont présenté en figure **3.13** à 737 nm.

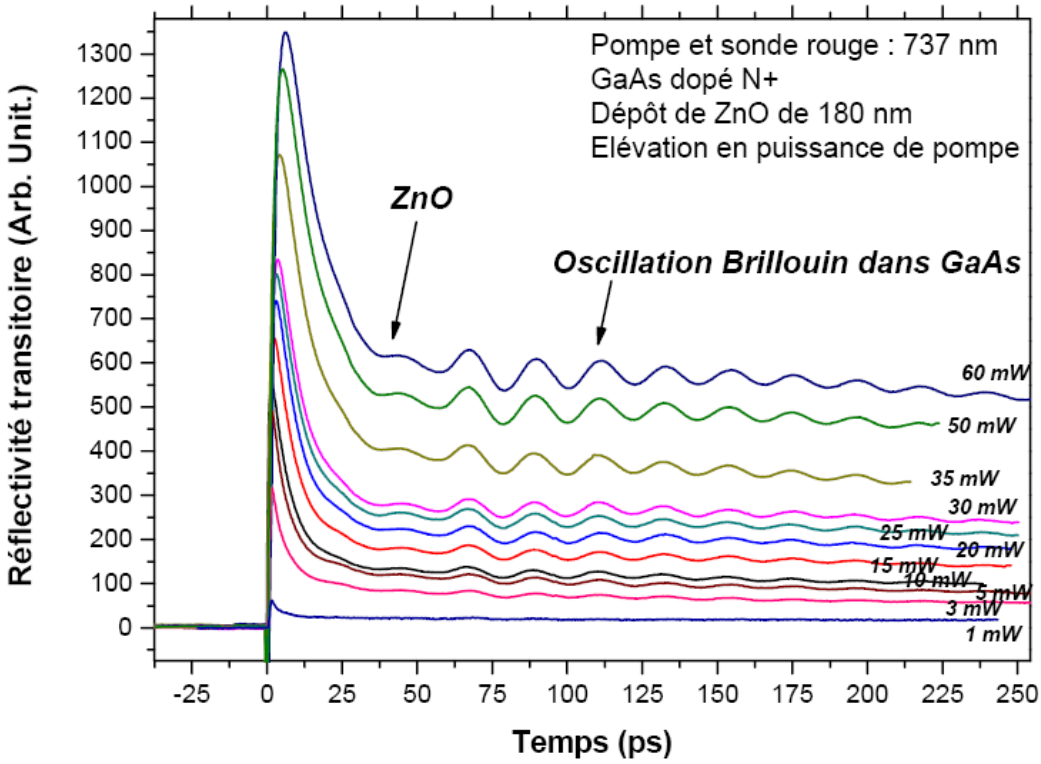


FIGURE 3.13 – Pompe et sonde rouge à la longueur d'onde 737 nm ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm ; étude à différentes puissances de pompe optique à puissance de sonde fixée constante

Le signal de réflectométrie transitoire enregistré $\Delta R(t)$ et présenté en figure **3.12** est composé de plusieurs contributions : un signal lentement décroissant dans le temps et qui se superpose à des signaux d'origine acoustique (signaux Brillouin). On y visualise deux évènements à environ 30 ps (figures **3.15** et **3.14** explicitant la singularité) et environ 60 ps. L'épaisseur du ZnO déposé étant proche de 180 nm pour le cas présenté en figure **3.12**, connaissant la vitesse moyenne longitudinale de propagation des ondes acoustiques dans le ZnO ($6096 m.s^{-1}$), on retrouve bien un temps de l'ordre de 60 ps pour un aller-retour et de 30 ps (environ) pour l'arrivée du front d'onde en surface de ZnO. Une dérivée temporelle du signal enregistré à 730 nm est donnée en figure **3.15**. On met alors en évidence plus clairement sur ces enregistrements (figure **3.14**) un transitoire à $t = 30 ps$ déjà observé en figure **3.15**.

Afin de confirmer que cet évènement détecté à $t \approx 30$ ps est bien lié au temps de vol des phonons acoustiques dans la couche de $180 nm$ de ZnO déposée, on met en oeuvre

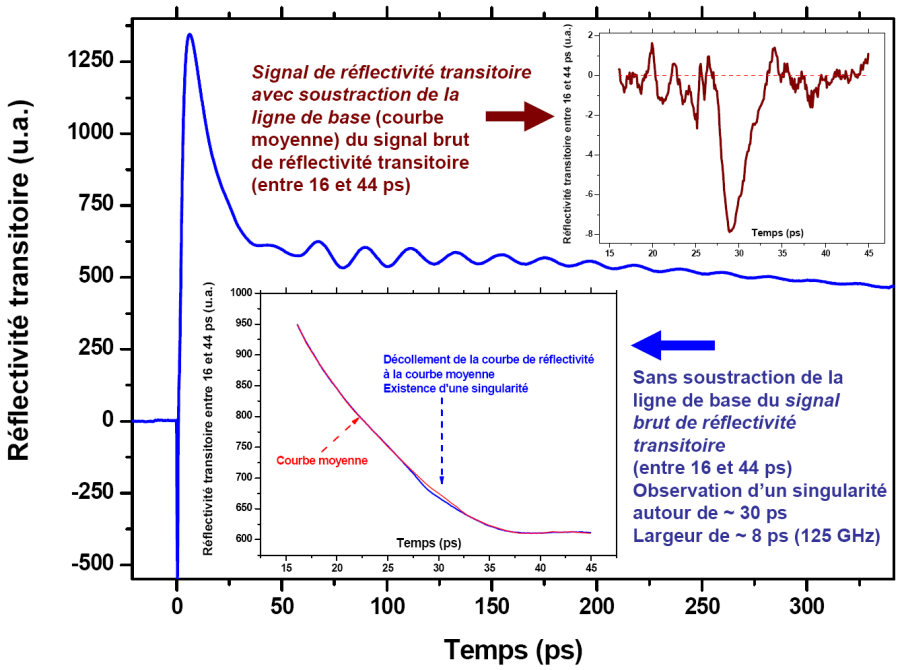


FIGURE 3.14 – Signaux de réflectivité transitoire en fonction du temps ; encart : agrandissement de la zone temporelle entre 16 et 44 ps (avec et sans soustraction de la ligne de base (dite courbe moyenne) ; pompe et sonde rouge à 737 nm pour les trois courbes ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm

une mesure de type cartographie (figure **3.16**) : on effectue des mesures de réflectométrie en déplaçant le point de focalisation depuis la zone de environ $1cm^2$ où existe le dépôt parfaitement homogène de ZnO vers la zone où aucun ZnO n'a été déposé (bord), ceci pour un substrat de GaAs dopé de type n. Nous observons bien que le signal impulsionnel est détecté à des temps plus courts lorsque l'épaisseur de ZnO diminue. On montre ainsi ici de manière expérimentale qu'un signal acoustique haute fréquence est détecté ; il s'agit d'un transitoire de réflectivité optique de largeur d'environ 7 ps et de front de montée de approximativement 2 ps, ce qui constitue un contenu fréquentiel bien plus élevé que le mode à 44 GHz. La figure **3.15**, ainsi que la figure **3.14** montrent bien cette singularité.

Des faisceaux de sonde de longueur d'onde proche de 400 nm sont utilisés dans la suite. L'énergie liée à des radiations bleues (UV) est de 3,1 eV ; la profondeur de pénétration ξ correspondante à cette énergie [44] est de l'ordre de 15 nm, ce qui signifie que la profondeur de pénétration optique en radiation bleue est quasiment 30 fois inférieure à la profondeur de pénétration en radiation rouge. La contribution liée aux oscillations Brillouin dans GaAs est alors gommée, compte tenu alors d'un faisceau de sonde bleue ne pénétrant pas assez profondéement dans le substrat de GaAs pour permettre une interaction acousto-

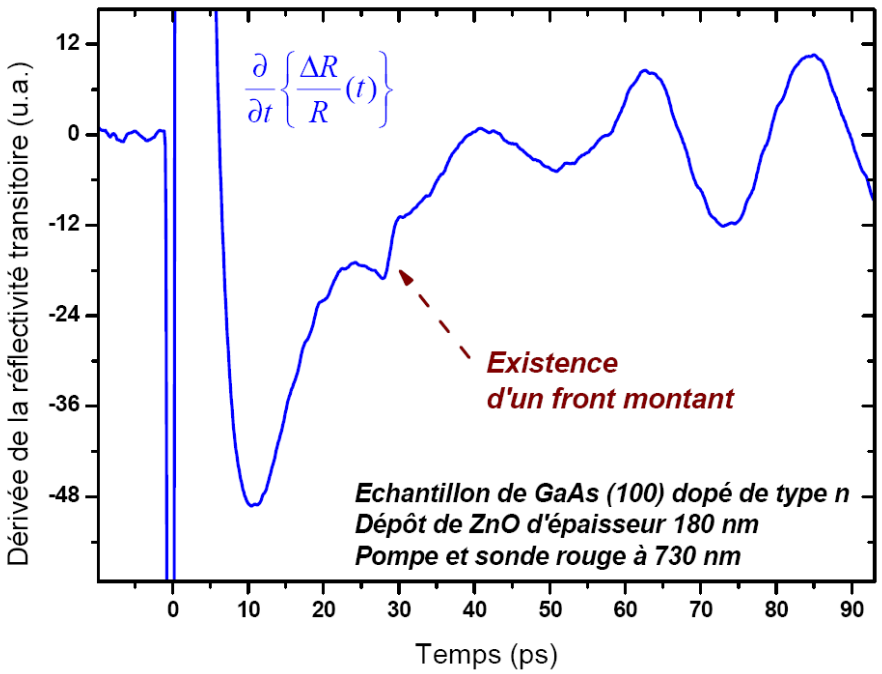


FIGURE 3.15 – Dérivée temporelle du signal expérimental de réflectivité transitoire relatif à un échantillon de GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO ; pompe et sonde à 730 nm ; visualisation d'un front montant à $30ps$

optique suffisamment efficace, avec le mode de fréquence 44 GHz dans le GaAs. Nous reviendrons sur ces aspects en fin de chapitre 3, dans une partie qui détaille le rôle clef de la sensibilité de la détection. L'interaction opto-acoustique étant plus faible dans le film de ZnO que pour le GaAs, on observera des phénomènes d'oscillations Brillouin dans le ZnO (voir la figure **3.20** où figure un pic sur le spectre fréquentiel à environ 70 GHz), mais plus faible en amplitude que ceux observables dans le GaAs.

Le transitoire haute fréquence détecté en configuration de pompe et de sonde rouges, est bien mis en évidence en configuration de pompe rouge et de sonde bleue pour l'échantillon (1). Les résultats relatifs à cet échantillon sont donnés sur la figure **3.17**. On y observe très clairement ce transitoire à $t = t_2 = 60ps$, c'est à dire après un aller-retour dans la couche de ZnO.

GaAs [100] de niveau de dopage 10^{18} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt de d = 280 nm

Le second échantillon (nommé 2)) étudié se situe à un niveau de dopage de 10^{18} cm^{-3}, mais avec une épaisseur de dépôt de 280 nm, et a permis d'effectuer les mesures présentées sur la figure **3.18**. Nous retrouvons bien ce transitoire à $t = t_2$.

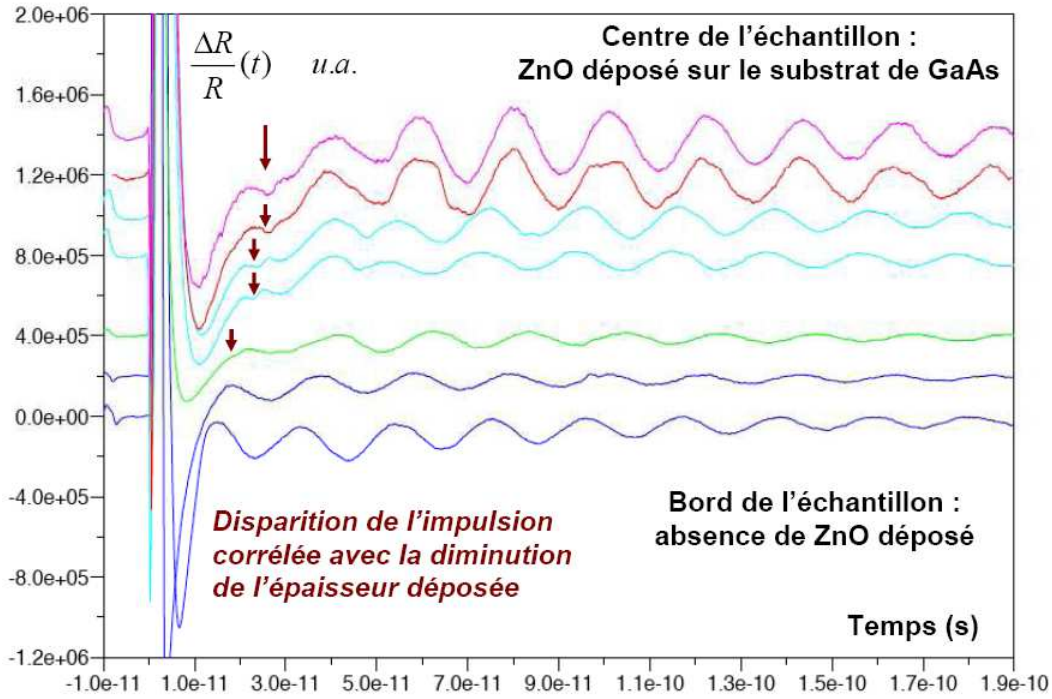


FIGURE 3.16 – Comparaison entre un échantillon de GaAs dopé de type n avec et sans dépôt de ZnO ; visualisation de la singularité et absence de cette même singularité si la couche de ZnO est absente. Flèche montrant l'évolution de la singularité en fonction de la position de focalisation des faisceaux sur l'échantillon

On constate que si l'amplitude est fonction croissante de la fluence déposée, le temps à mi-hauteur ne varie pas avec une augmentation de fluence de pompe. Cette constation peut être illustrée par les enregistrements de la figure **3.19**, où la fluence d'excitation fait croître de manière linéaire l'amplitude de l'impulsion acoustique, mais pas la durée à mi-hauteur de la singularité (à 60 ps environ) qui reste donc sensiblement la même.

GaAs [100] de niveau de dopage 10^{16} cm^{-3} avec une épaisseur de dépôt de d = 280 nm

Le troisième échantillon étudié est un échantillon de GaAs à niveau de dopage plus bas que les deux autres échantillons étudiés, mais avec une épaisseur de dépôt similaire à l'échantillon 2). La figure **3.20** présente ces résultats expérimentaux. On y voit ici plus clairement le signal Brillouin dans le ZnO et le transitoire bien que présent est plus faible en amplitude.

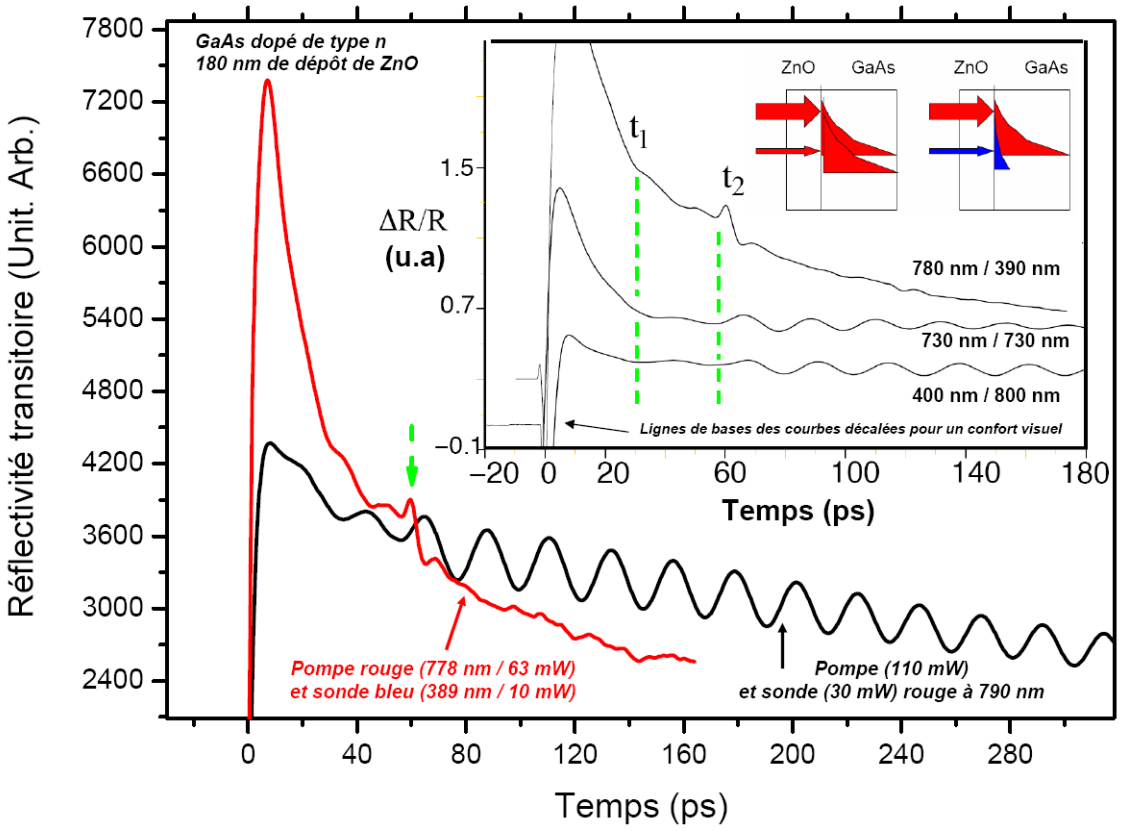


FIGURE 3.17 – Echantillon de GaAs dopé de type n avec dépot de ZnO de 180 nm obtenu par la méthode de déposition 1) ; courbes de réflectivité transitoire en pompe et sonde rouge et pompe rouge et sonde bleu pour ce même type d'échantillon. Illustration d'une excitation et d'une détection volumique dans le cas de l'utilisation de faisceaux rouges en pompe et en sonde ; détection sur les 15 premiers nanomètres en utilisant un faisceau de sonde bleu à 389 nm.

Signaux expérimentaux relatif au système $SiO_2/GaAs$ avec 500 nm de dépôt

Un quatrième échantillon est étudié expérimentalement ; il s'agit du système $SiO_2/GaAs$, à bas niveau de dopage (10^{16} cm^{-3}), où le dépôt de SiO_2 (*travaux de K. Blary*) est effectué par PECVD (*Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition*). La figure **3.21** présentent les résultats expérimentaux où l'impulsion acoustique est détectée. Comme dans le cas du système ZnO/GaAs, il est détecté une impulsion courte transitoire, obtenue après un aller-retour dans la couche transparente de SiO_2.

Signaux expérimentaux relatif au système $SiO_2/GaAs$ avec 200 nm de dépôt

Un cinquième échantillon a aussi été étudié ; il s'agit d'un échantillon où un film de 200 nm d'épaisseur de SiO_2 a été déposé. La figure **3.22** explicite le résultat obtenu pour ce

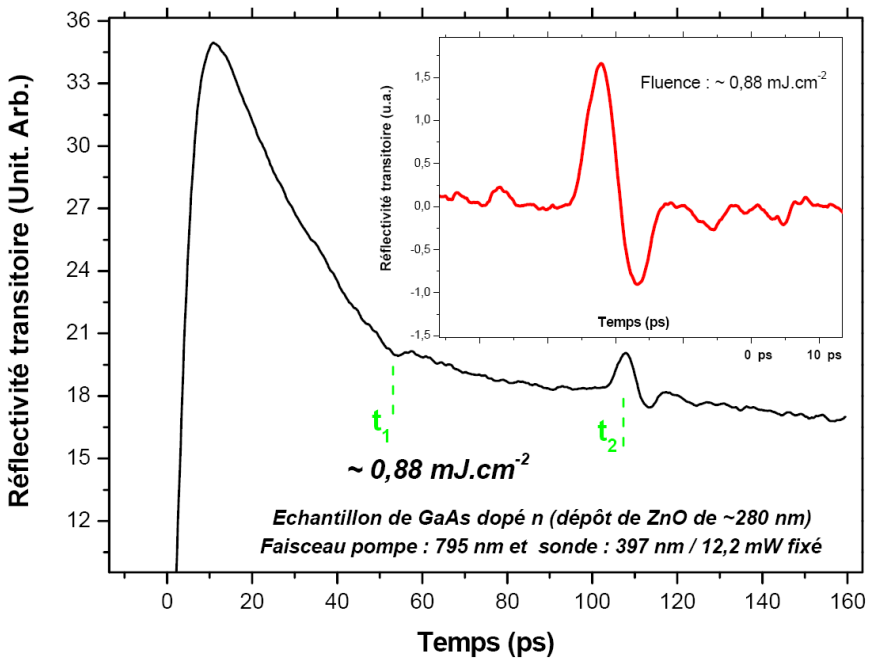


FIGURE 3.18 – Echantillon (2) de GaAs dopé de type n avec dépôt de ZnO obtenu par la méthode de déposition 2) ; pompe rouge et sonde bleue

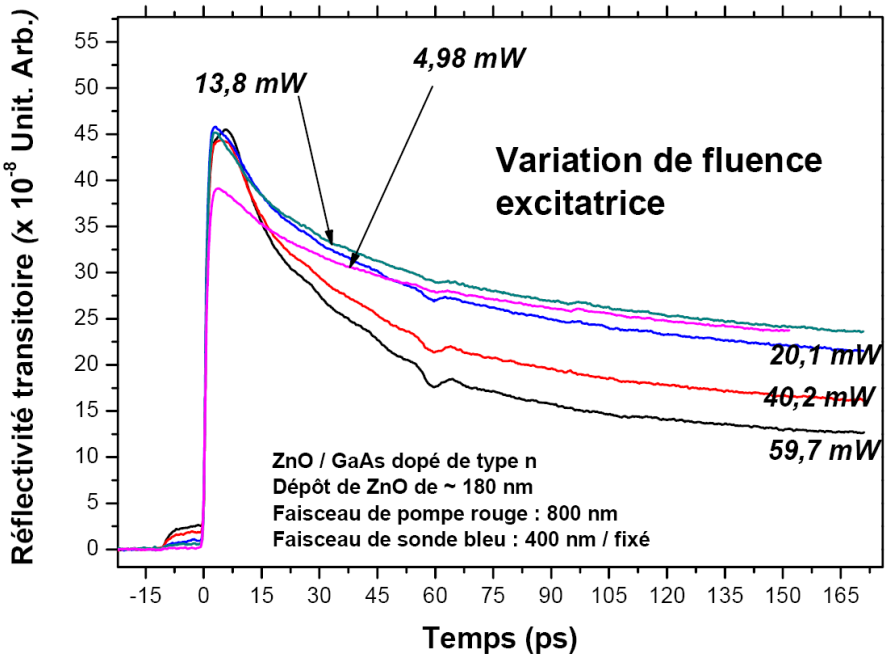


FIGURE 3.19 – Echantillon de GaAs dopé de type n avec dépot de ZnO obtenu par la méthode de déposition 1) ; pompe rouge et sonde bleu ; différentes puissances d'excitation ; excitation à 800 nm et détection à 400 nm : on remarque la polarité négative de l'impulsion acoustique de $7ps$ en détectant à $400nm$

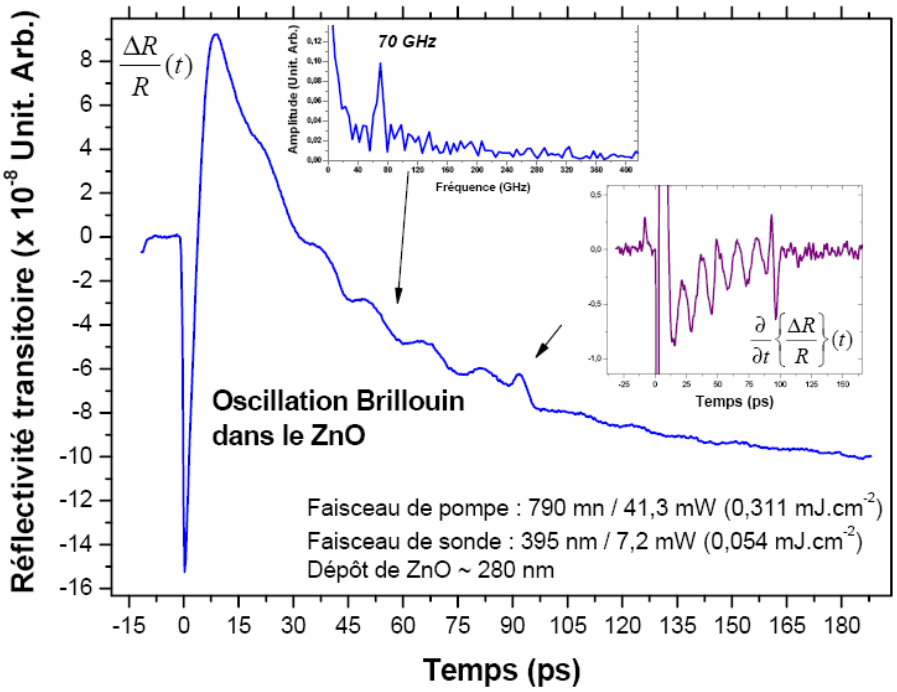


FIGURE 3.20 – Echantillon de GaAs *LD Cr* avec dépot de ZnO obtenu par la méthode de déposition 2 ; signal expérimental obtenu en configuration de pompe rouge et de sonde bleu ; observation d'oscillations Brillouin dans le ZnO à environ 70 GHz (mode longitudinal L)

type d'échantillon, où un dépôt de SiO_2 d'épaisseur deux fois plus faible qu'en **3.21** est déposé.

On y retrouve le résultat obtenu avec le $GaAs/ZnO$ (existence d'une impulsion acoustique), mais pour des échantillons à dépôt de couche mince de SiO_2 déposé par une méthode différente, avec deux épaisseurs de dépôts différentes (500 nm et 200 nm).

Afin de tenter de mieux cerner l'origine des signaux haute fréquence observés lors des mesures expérimentales, des simulations numériques des signaux de réflectivité transitoire ont donc été entreprises. La partie qui suit va permettre de présenter les résultats de ces simulations de signaux de réflectivité transitoire relatifs aux différents systèmes étudiés. Des éléments de discussion seront de même proposés au lecteur. Il sera possible via les simulations numériques proposées d'expliquer qualitativement l'existence d'une variation abrupte de la réflectivité transitoire et de sa dérivée temporelle. Cependant, l'amplitude de l'évènement ne sera pas reproduite de manière entièrement satisfaisante, ce qui nous amènera à considérer et à discuter des hypothèses complémentaires concernant l'origine de ces singularités.

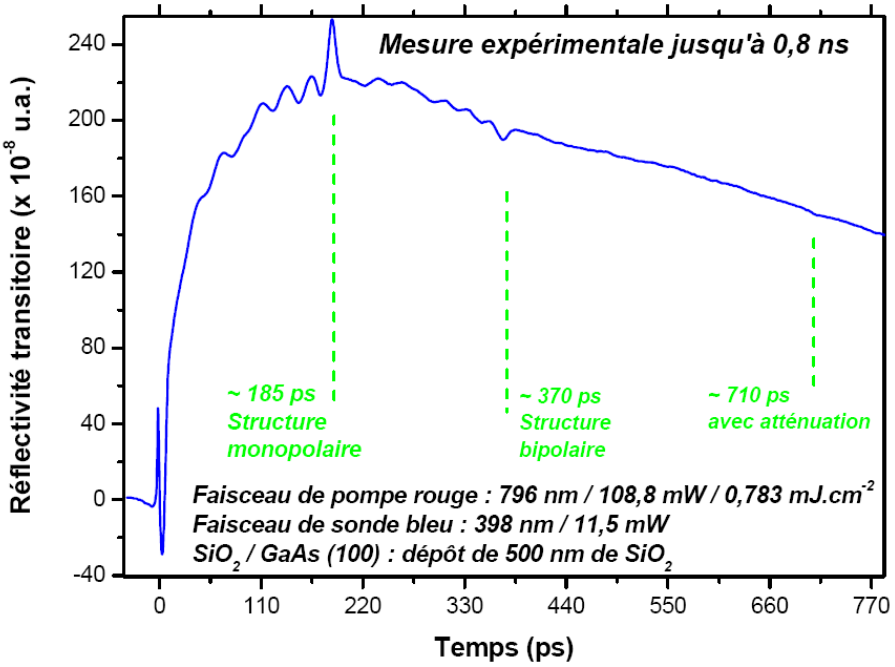


FIGURE 3.21 – Echantillon de GaAs [100] avec un dépôt de 500 nm de SiO_2 ; visualisation de trois impulsions acoustiques pour une même fluence d'excitation à des temps différents ; pompe rouge (108,8 mW et 796 nm) et sonde bleu (11,5 mW et 398 nm)

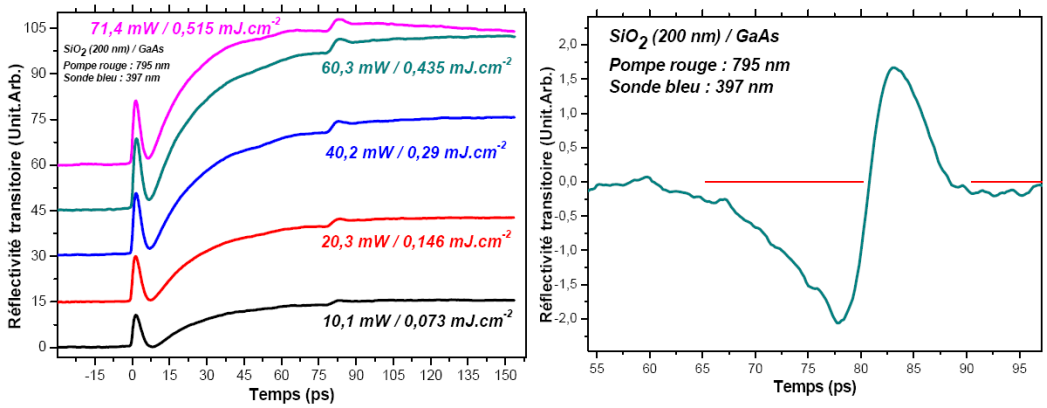


FIGURE 3.22 – Echantillon de GaAs [100] avec un dépôt de 200 nm de SiO_2 ; pompe rouge (puissance variable ; 795 nm)et sonde bleu (10 mW fixé ; 397 nm)

3.2.4 Analyse et discussion

Diverses constatations peuvent alors être faites à la suite des mesures expérimentales. En pompe et sonde rouge, on observe des oscillations causées par le phénomène d'interférence (diffusion Brillouin de période 23 ps (correspondant à 44 GHz)) entre le faisceau de sonde se réfléchissant sur le front d'onde (photo-généré) se propageant en volume et le faisceau

de sonde réfléchi sur la surface libre du matériau [49] [88], la profondeur de pénétration optique étant alors de 740 nm pour une irradiation laser à 800 nm. L'utilisation de la dérivée temporelle $\frac{\partial}{\partial t}\left\{\frac{\Delta R}{R}(t)\right\}$ (présentée en encart dans la figure **3.20**) permet de rendre plus visible l'existence d'une singularité (de 7 ps environ). Cette impulsion est directement observable (sans recourir à une dérivée) en configuration de pompe rouge et de sonde bleue On ne voit pas ou peu d'oscillations Brillouin dans le ZnO, étant donné que le couplage photo-élastique est faible [87].

On peut ainsi affirmer qu'il est donc mesuré une impulsion acoustique transitoire de durée à mi-hauteur $\tau_a^{exp} \approx 7$ ps arrivant à l'interface air/ZnO (figure **3.14**). Cette impulsion se caractérise par un front montant de environ $2ps$, ceci même en utilisant un faisceau optique de pompe pénétrant ($\approx 680nm$).

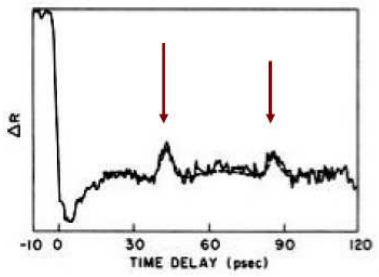


FIGURE 3.23 – Impulsion acoustique générée et détectée dans un film métallique de nickel de 120nm d'épaisseur (d'après les travaux de [9])

La forme des impulsions est similaire à celles obtenues dans le cas des enregistrements relatifs au nickel métallique [18] photo-excité par [46] [9] où la profondeur de pénétration optique du faisceau de pompe était typiquement de $\approx 15nm$. En utilisant un rayonnement optique UV (profondeur de prénétration très réduite $\xi \approx 15nm$) pour sonder la matière, il est également constaté et observé une impulsion acoustique de durée à mi-hauteur $\tau_a^{\exp} \approx 7ps$.

La structure de l'impulsion demeure globalement inchangée en modifiant le niveau de dopant : τ_a^{exp} reste de l'ordre de 7 ps environ (figure récapitulative **3.24**). Si la largeur à mi-hauteur ne semble pas être fonction du taux de dopage de l'échantillon considéré, ce n'est peut être pas le cas de l'amplitude, qui semble avoir une dépendance vis-à-vis de ce facteur, ceci quel que soit l'échantillon considéré. Les signaux sont d'ailleurs plus clairement observés dans le cas du substrat de GaAs [100] dopé de type n, et d'amplitude relative plus faible pour les substrats de type SI (*semi-insulating*).

18. Signaux impulsionnels à haut contenu fréquentiel obtenus pour un film de nickel de $120nm$ d'épaisseur : présentation du résultat obtenu par Thomsen et al. [9] en figure **3.23**

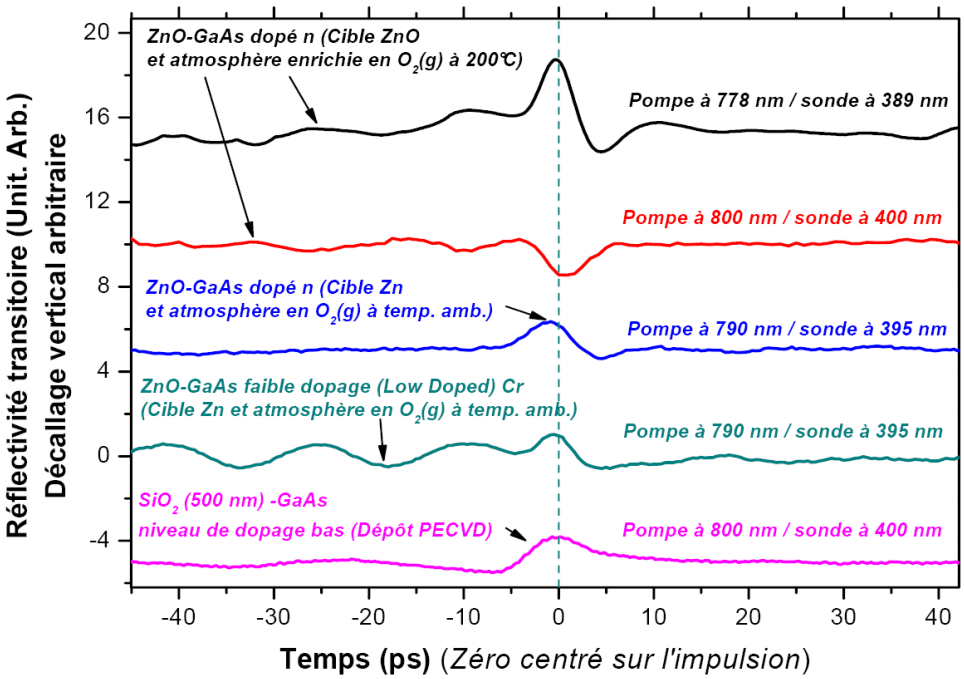


FIGURE 3.24 – Récapitulatif des résultats expérimentaux en pompe rouge et sonde bleu, pour des échantillons de GaAs avec dépôts de SiO_2 et de ZnO. Visualisation de l'inversion de polarité des impulsions acoustiques détectées pour le GaAs avec dépôt de ZnO dopé n (courbes noire et rouge)

Interprétation de l'inversion de polarité du transitoire en pompe rouge et sonde bleu

Sur les enregistrements expérimentaux (figure **3.24**), on constate par détection à 400 nm et 389 nm que le signe de l'impulsion *change* (inversion de polarité) par passage d'une longueur d'onde à l'autre (de 400 nm vers 389 nm et vice-versa). Considérant l'expression générale de la réflectivité (introduite par **(1.134)**), on a, à l'énergie de sonde d'énergie proche de $3,1eV$ $(400nm)$, où seule la variation de la partie imaginaire de ϵ_2 est significative, l'expression suivante :

$$\frac{\Delta R}{R} \approx \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_2} \times \Delta\varepsilon_2 \tag{3.12}$$

d'où :

$$\frac{\Delta R}{R} \approx \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_2} \times \frac{\partial \varepsilon_2}{\partial E} \times \frac{\partial E}{\partial Q} \times \Delta Q \tag{3.13}$$

Il apparait alors un terme de type $\frac{\partial \varepsilon_2}{\partial E}$ qui correspond à la dérivée de la partie imaginaire ε_2 par rapport à l'énergie E du photon optique de sonde. L'expression de la variation de

réflectivité transitoire est directement liée au signe de la dérivée, on observera donc bien un changement de signe [80] [44], si la dérivée $\frac{\partial \varepsilon_2}{\partial E}$ change de signe. Le terme $\frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_2}$ étant quant à lui toujours positif, on aura donc :

$$\begin{cases} Sgn\left\{\frac{\Delta R}{R}\right\} = Sgn\left\{\frac{\partial \varepsilon_2}{\partial E}\right\} \\ \frac{\partial LnR}{\partial \varepsilon_2} > 0 \end{cases} \tag{3.14}$$

Ce changement de polarité est visible sur le résultat expérimental présenté en figure **3.24**. On y observe bien des polarités de signes opposées selon les longueurs d'onde d'excitation utilisées. Diverses hypothèses et pistes de discussion préliminaire peuvent être évoquées dans le cadre de cette étude pour expliquer les signaux expérimentaux obtenus.

Formules théoriques utilisées dans le cadre des simulations

Les simulations des signaux proposées sont basées sur la formule théorique établie par Gusev et al. [66] qui détaille un système typique composé de 2 interfaces (0-1) et (1-2) pour séparer 3 milieux matériels air (indice 0), film mince transparent (indice 1) et substrat opaque (indice 2) ; on rappelle :

$$\frac{\Delta r}{r_0} \cong 2ik_0u(0) + 2i \times \left\{ \frac{r_{12} \cdot (1 - r_{01}^2)}{[r_{01} \cdot e^{-ik_1 d} + r_{12} \cdot e^{ik_1 d}] \times [e^{-ik_1 d} + r_{01} \cdot r_{12} \cdot e^{ik_1 d}]} \right\} \times F \tag{3.15}$$

avec la fonction complexe F définie par :

$$\begin{aligned} F = &\left\{ \left(k_1 + \frac{\partial k_1}{\partial \eta}\right) \cdot \int_0^d \eta(z,t) \cdot dz \right\} + \left\{ \frac{1}{2}\frac{\partial k_1}{\partial \eta} \cdot \int_0^d \eta(z,t) \cdot \left(r_{12} \cdot e^{2ik_1(d-z)} + \frac{1}{r_{12}} e^{-2ik_1(d-z)}\right) \cdot dz \right\} + ... \\ &... + \left\{ \frac{1}{2}\frac{\partial k_2}{\partial \eta} \cdot \left(\frac{1}{r_{12}} - r_{12}\right) \cdot \int_d^\infty \eta(z,t) \cdot e^{-2ik_2(d-z)} \cdot dz \right\} \end{aligned} \tag{3.16}$$

Pour les interfaces optiques, on utilisera (dans le cadre de l'approximation d'une incidence normale) :

- pour l'interface air/ZnO : $r_{01} = \frac{n_1 - n_0}{n_0 + n_1}$ $avec$ $n_1 = n_{ZnO}$ et $n_0 = n_{air}$
- $r_{12} = \frac{n_2 - n_1}{n_2 + n_1}$ $avec$ $n_1 = n_{ZnO}$ et $n_2 = n_{GaAs}$

où n_2 correspond à l'indice de réfraction optique du GaAs à la longueur d'onde de la sonde.

Sur la base des résultats expérimentaux présentés, des simulations numériques vont être mises en oeuvre. Avant de présenter ces simulations en tant que telles, il va être détaillé les paramètres ayant servis à établir ces simulations.

3.2.5 Simulation de signaux en configuration pompe et sonde rouge

La contrainte initiale sera supposée être localisée dans le substrat de GaAs [100]. On se place toujours dans le cas où la contrainte de déformation de potentiel prédomine sur la contrainte thermo-élastique ($\sigma_{eh} >> \sigma_{th}$). Les paramètrages et constantes utilisées pour simuler le signal réflectométrique en pompe rouge et sonde rouge sont détaillés dans ce qui suit.

1. Vitesses acoustiques longitudinales dans GaAs et ZnO : $V_{GaAs} = 4730\ m.s^{-1}$ et $V_{ZnO} = 6096\ m.s^{-1}$, considérant [64].
2. Impédances acoustiques des deux milieux matériels [64] : $Z_{GaAs} = 2{,}55 \times 10^7 kg.m^2.s^{-1}$ et $Z_{ZnO} = 3{,}42 \times 10^7 kg.m^2.s^{-1}$ [19]. On définira les coefficients de réflexion et de transmission acoustique (expressions **(3.17)**) aux interfaces par :

$$\begin{cases} Ra_{21} = \frac{Z_{ZnO}-Z_{GaAs}}{Z_{ZnO}+Z_{GaAs}} \equiv \frac{Z_1-Z_2}{Z_1+Z_2} = -Ra_{12} \\ Ta_{21} = \frac{2Z_{GaAs}}{Z_{ZnO}+Z_{GaAs}} \\ Ta_{12} = \frac{2Z_{ZnO}}{Z_{ZnO}+Z_{GaAs}} \end{cases} \tag{3.17}$$

3. Profondeur de pénétration optique ξ : cette quantité dépend de la longueur d'onde λ de la pompe ($\xi\,(\lambda = 730nm) = 680nm$).
4. Paramètres optiques du ZnO déposé [94] : l'indice de réfraction optique du ZnO sera pris à $n_{ZnO} \equiv n_1 = 2{,}05$; le coefficient photo-élastique [95] pour ZnO sera choisi à l'unité : $\left.\frac{dn}{d\eta}\right|_{ZnO} = 1$, ceci pour toute longueur d'onde ; la valeur du coefficient photo-élastique de ZnO est plutôt faible à 730 nm [86], le faible couplage rendant la visualisation des échos plus aisée. Il existe une grande dispersion dans la littérature des valeurs de ces coefficients photo-élastiques.
5. Paramètres optiques du substrat de GaAs : l'indice de réfraction optique du GaAs sera pris à $n_{GaAs} = 3{,}74 + 0{,}112i$ à 730 nm ; le coefficient photo-élastique sera pris à $\left.\frac{dn}{d\eta}\right|_{GaAs} = 2{,}8 + 2{,}6i$ [83] [49]

Simulation du champ de déformation acoustique photo-induit à l'instant initial

On simule ici à 730 nm (figure **3.25**) l'empreinte spatiale du champ de déformation acoustique. On observe typiquement sur cette simulation une forme exponentielle décroissante dans l'épaisseur du substrat de GaAs.

19. L'impédance acoustique $Z_i = \rho_i V_i$ caractérise une interface acoustique entre deux milieux matériels : le signe des coefficients Ra_{12} et Ra_{21} permet de savoir si l'on passe d'un milieu "dur" à un milieu plus

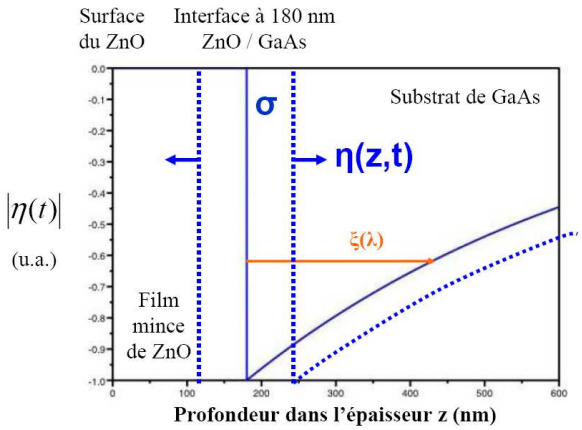


FIGURE 3.25 – Simulation du champ de déformation acoustique dans l'échantillon GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm, à l'instant initial t = 0 ps ; profil fréquentiel brut (sans diffusion) ; longueur d'onde de pompe et de sonde à 730 nm

Simulation du signal de dérivée temporelle de la réflectivité transitoire

Les oscillations Brillouin sont assez bien reproduites (contribution photo-élastique due majoritairement à GaAs et minoritairement à ZnO). Concernant les signaux de dérivées temporelles, la contribution interférométrique [96] pure (à savoir en annulant les coefficients liés à GaAs et à ZnO : $\frac{\partial n}{\partial \eta}\Big|_{GaAs} = \frac{\partial n}{\partial \eta}\Big|_{ZnO} = 0$) peut être responsable sur le signal de dérivée temporelle $\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\Delta R}{R}(t)\right)$ d'un phénomène de variation brutal à 30 ps, apparaissant lorsque le front acoustique est réfléchi sur la surface libre de ZnO. En effet, lorsque l'extension spatiale du front d'onde est supérieure à l'épaisseur de la couche mince déposée, alors les variations de l'épaisseur de celle-ci varie selon un signal de forme apparentée à des triangles. C'est exactement cette situation que nous avons dans le cas où l'on excite GaAs avec un faisceau très pénétrant (longueur de pénétration de 680nm grande devant l'épaisseur du film de 180 nm). Donc, considérant ici un signal quasi-triangulaire (lié à l'aller à la compression de la couche mince sous l'effet du front d'onde acoustique pénétrant dans le ZnO et lié au retour à une dilatation de la couche mince transparente de ZnO), ce signal en le dérivant par rapport au temps t, donne un signal de type "marche". Cette hypothèse testée par simulation n'est cependant pas parfaite ; en effet cette "marche" est faible en amplitude relative par rapport au signal d'origine photo-élastique. C'est ce que montre la figure **3.26**. On y voit que si l'amplitude de cet effet de saut est de l'ordre de $7 \times 10^{-3} u.a.$, l'amplitude de la contribution d'origine photo-élastique est quant à elle de l'ordre de $0,31 u.a.$, selon la même échelle graphique. Cet "effet de marche" interféro-

"mou"

métrique est donc simulé comme étant environ 44 fois plus petit que les effets d'origine photo-élastique.

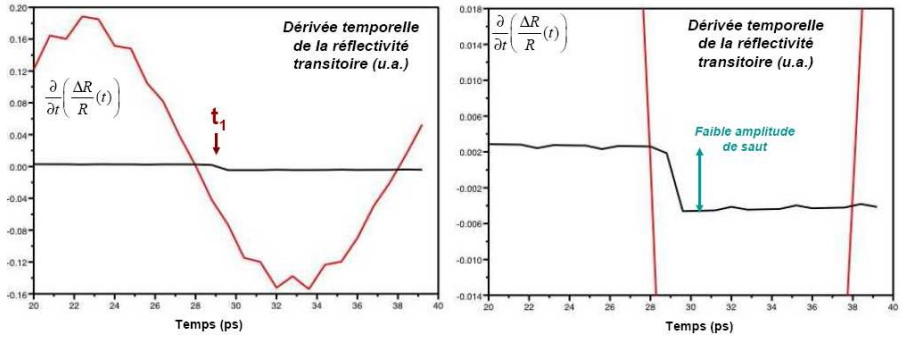


FIGURE 3.26 – Simulation du signal de dérivée temporelle de la réflectivité transitoire $\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\Delta R}{R}(t)\right)$ en fonction du temps (courbe rouge) ; échantillon GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 180 nm ; détails de l'effet de marche à la date $t_1 = 30ps$ environ résultant de l'effet interférentiel (courbe noire) ; bruit dû à la discrétisation numérique

Il est à noter que la simulation a été effectuée considérant des faisceaux en incidence normale, donc des coefficients r_{01} et r_{12} évalués de même en considérant une incidence normale.

La contribution interférométrique est sensible à la valeur de l'angle d'incidence des faisceaux, via le calcul des coefficients r_{01} et r_{12}, et une erreur a peut être été introduite à ce niveau. En effet, l'angle d'incidence expérimental utilisé a été évalué de l'ordre de $\cong 32°$ à $\cong 45°$ (angle entre l'axe des faisceaux incidents et la normale à la surface de l'échantillon).

3.2.6 Simulation de signaux en configuration pompe rouge et sonde bleue

On considère maintenant un faisceau laser de pompe rouge (forte pénétration optique) et un faisceau de sonde bleu (peu pénétrant en volume dans le cas du semi-conducteur GaAs).

Paramètrages utilisés pour la simulation en configuration pompe rouge et sonde bleue

Il s'agit de simuler le signal en réflectivité transitoire relatif à l'échantillon GaAs dopé de type n, avec un dépôt de ZnO de l'ordre de 180 nm. Les paramètrages utilisés sont les suivants [83] :

1. Longueur d'onde des faisceaux de pompe et de sonde de l'expérience effectuée : λ_s = 397 nm en sonde bleu et λ_p = 797 nm en pompe rouge, ce qui fixe alors la valeur de la profondeur de pénétration optique $\xi(797nm) = 780nm$, ceci en pompe optique rouge ($797nm$).
2. Indices et coefficients photoélastiques pour l'air : on prendra $n_0 = 1$, indice usuellement pris à l'unité. Le nombre d'onde correspondant vaut $k_0 = 2\pi\frac{n_0}{\lambda_s}$.
3. Indices pour le substrat de GaAs : on prendra $n_{2s} = 4,37 + 2,14i$ à 3,1 eV (sonde bleue à $397nm$) ou $n_{2s} = 3,93 + 2,28i$ à 3,2 eV (sonde bleue à une énergie un peu supérieure). Par ailleurs, on utilisera $n_{2p} = 3,66 + 0,08i$ à 1,55 eV (pompe rouge) ou $n_{2p} = 3,70 + 0,091i$ à 1,6 eV. Le vecteur d'onde correspondant est exprimé par $k_{2s} = 2\pi\frac{n_{2s}}{\lambda_s}$.
4. Coefficient d'absorption des faisceaux de pompe et de sonde : on exprime le coefficient d'absorption du faisceau sonde par $\alpha_{\mathrm{s}} = \frac{4\pi}{\lambda_s} \times \Im m\{n_{2s}\}$ et le coefficient d'absorption du faisceau pompe par $\alpha_{\mathrm{p}} = \frac{4\pi}{\lambda_p} \times \Im m\{n_{2p}\}$.
5. Coefficients photoélastiques selon les directions cristallographiques pour le GaAs : ils sont issus de [83] et [84]. Des essais ont été réalisés en utilisant $p_{11} = (5 + 3,5i) \cdot 10^{-9} Pa^{-1}$ et $p_{12} = (-3,5 + 0,5i) \cdot 10^{-9} Pa^{-1}$.
6. Constantes élastiques utilisées : on utilisera de même les valeurs issues de [83]
7. Coefficients photoélastiques pour le substrat opaque de GaAs : on utilisera dans le cadre de ces simulations un coefficient $\frac{\partial n_{2s}}{\partial \eta}$ [49] [84] défini par :

$$\frac{\partial n_{2s}}{\partial \eta} = \left(\frac{p_{11} \times C_{12} + p_{12} \times C_{11} + p_{12} \times C_{12}}{2n_{2s}} \right) \tag{3.18}$$

équivalent en écriture [83] à :

$$pe_2 = \frac{\partial k_2}{\partial \eta} = \frac{2\pi}{\lambda_s} \cdot \frac{(p_{11} \cdot C_{12} + p_{12} \cdot C_{11} + p_{12} \cdot C_{12})}{2n_{2s}} \tag{3.19}$$

où p_{ij} sont les coefficients photo-élastiques décrits ci-dessus en point 5) et où C_{ij} sont des constantes élastiques (exprimées en Pa)[20]. On utilisera donc, à 390 nm ($\cong 3,2\ eV$) :

20. On notera de plus que les coefficients photo-élastiques $p_{11}(\omega)$ et $p_{12}(\omega)$ subissent de fortes variations au voisinage de la transition interbande :

$$\left(\frac{\partial n}{\partial \eta}\right)_{400nm} \approx 20 \times \left(\frac{\partial n}{\partial \eta}\right)_{800nm} \tag{3.20}$$

$$\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs\,;390nm} = 19,7 + 5,6i \tag{3.21}$$

8. Coefficients photoélastiques [86] [97] pour le film mince de ZnO déposé en surface du substrat de GaAs : prenant comme coefficient photo-élastique $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{ZnO\,;390nm} = 1$, ce qui donne pe_1 à la longueur d'onde λ_s exprimé par : $pe_1 = 2\pi \cdot \frac{1}{\lambda_s} \cdot \left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{ZnO\,;390nm} \cong \frac{\partial k_1}{\partial \eta}$.

   Pour le film mince de ZnO déposé, on utilisera la valeur de l'indice $n_1 = 2,05$ (relié au nombre d'onde $k_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \times n_1$) par (cas isotrope) :

$$\frac{\partial k_1}{\partial \eta} = \frac{2\pi}{\lambda} \times \frac{\partial n_1}{\partial \eta} \tag{3.22}$$

Enfin, comme dans le cas de la configuration rouge/rouge, on utilisera les coefficients de réflexion aux interfaces, définis tels que :

- entre l'air et le ZnO : $r_{01} = \left(\frac{n_1 - n_0}{n_1 + n_0}\right)$
- entre le ZnO et le GaAs : $r_{12} = \left(\frac{n_{2s} - n_1}{n_{2s} + n_1}\right)$

Simulation du champ de déformation acoustique photo-induit en fonction du temps en configuration pompe rouge et sonde bleue

On considérera toujours que la contrainte initiale prend naissance à l'interface ZnO/GaAs. Pour détailler l'évolution de la déformation acoustique de 0 à 90 ps, il est conservé les paramètrages de la section précédente. La profondeur de pénétration optique change cependant en $\xi(\lambda = 800nm) = 780nm$. La figure **3.27** montre cette évolution temporelle. A t= 0 ps, on retrouve l'extension de la profondeur de pénétration optique dans le GaAs, vu que le ZnO (épaisseur de 280 nm déposée choisie pour cette simulation) est transparent aux longueurs d'onde utilisées. Par suite (t = 2 ps), un front de déformation acoustique est créé vers la surface (dans l'épaisseur de ZnO), et vers le volume de GaAs. D'où la forme du champ de déformation acoustique à 2 ps après le temps zéro d'arrivée du laser. Ces deux fronts progressent dans leur partie (ZnO et GaAs) respective ; jusqu'à atteindre la proximité de la surface de ZnO (interface air/ZnO) pour le champ de déformation rejoignant la surface. L'interface air/ZnO introduit une réflexion du champ de déformation et un retour vers l'interface ZnO/GaAs d'un signal acoustique (simulation à t = 50 ps). A t = 90 ps après le temps zéro d'arrivée du faisceau excitateur, le front de déformation s'est réfléchi sur la surface libre de ZnO et arrive à l'interface ZnO/GaAs (par la gauche).

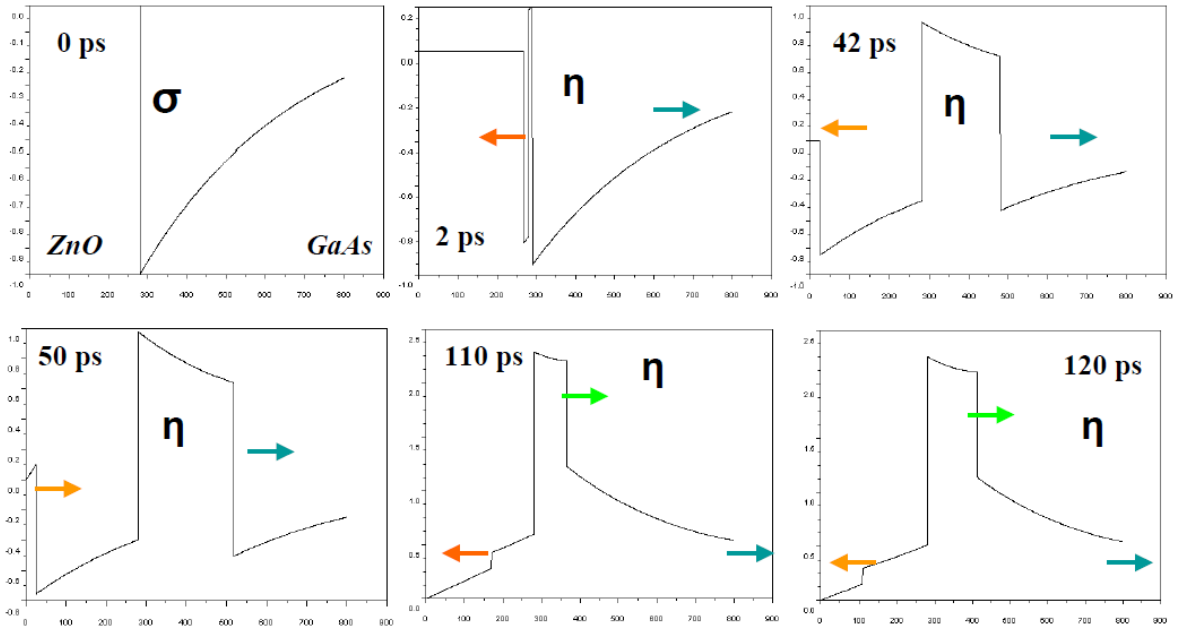


FIGURE 3.27 – Extension spatiale et évolution temporelle de la déformation acoustique $\eta(z,t)$ pour le GaAs [100] dopé de type n avec dépôt de ZnO de 280 nm

Simulation du signal de réflectométrie transitoire relatif au ZnO/GaAs [100] avec dépôt de ZnO de 180 nm : comparaison avec le signal expérimental

Il est dans ce paragraphe présenté la simulation du signal de réflectivité optique transitoire (figure **3.28**) pour l'échantillon GaAs [100] dopé de type n, à dépôt de ZnO de 180 nm, sous irradiation rouge à 780 nm (1,6 eV), et en utilisant une sonde bleu à 390 nm (3,2 eV).

Il est clair qu'une erreur est introduite car il existe des incertitudes sur les valeurs des coefficients photo-élastiques, et tout particulièrement sur ceux du ZnO. Néammoins, en considérant deux couples de valeurs des coefficients photo-élastiques de ZnO et de GaAs pour les longueurs d'onde 390 et 400 nm[21], nous pouvons constater sur la figure **3.28** que le signal est bien reproduit. Les transitoires acoustiques courts sont bien reproduits en se plaçant dans le cas d'une photo-génération d'un front d'onde acoustique classique (exponentiel) et de la détection en sondant dans l'UV.

21. à savoir $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{ZnO} = 1$ pour les deux longueurs d'onde, et $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = \{(39+44,5i)\ si\ \lambda_S = 400nm\ ;\ (19,7+5,6i)\ si\ \lambda_S = 390nm\}$ pour le GaAs

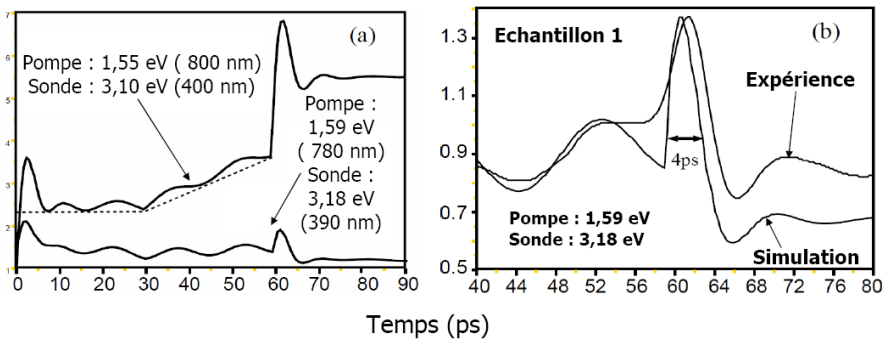


FIGURE 3.28 – (a) : Simulation de la réflectivité transitoire et impact de la modification du coefficient photo-élastique du GaAs : $39+44,5i$ à 400 nm (3,1 eV ; simulation du haut) et $19,7+5,6i$ à 390 nm (3,18 eV ; simulation du bas) [83] ; coefficient photo-élastique du ZnO fixé à 1 ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n à dépôt de ZnO de 180 nm ; impact du changement de coefficient photo-élastique du GaAs sur la forme de courbe simulée. (b) : comparaison expérience/simulation

3.2.7 Simulation du signal interférométrique pur en fonction de l'épaisseur de ZnO déposé sur le substrat de GaAs [100] dopé de type n

En dernier lieu, on peut comparer les contributions interférométriques pures (de type fabry-Pérot), dans le cas des deux types de dépôts effectués, à savoir 180 et 280 nm. On entend par "contribution interférométrique pure", le cas où les coefficients photo-élastiques dans le ZnO et le GaAs sont mis à zéro et où l'on ne considère que l'aspect interférométrique (effet *Fabry-Perot*) dû à la couche de ZnO déposé :

$$\begin{cases} \frac{\partial n_1}{\partial \eta} \equiv \left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{ZnO} = 0 \\ \frac{\partial n_2}{\partial \eta} \equiv \left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 0 \end{cases} \tag{3.23}$$

Le résultat de cette simulation est présenté en figure **3.29**.

La contribution interférométrique est plus large et plus affirmée pour l'échantillon à couche déposée de 280 nm de ZnO en surface du substrat de GaAs, que pour celui à épaisseur déposée de 180 nm. Celà peut s'expliquer par le fait que cette contribution est quantifiée par l'intégrale sur la profondeur z du champ de déformation $\eta(z,t)$ [22]. Si l'intervalle d'intégration augmente, l'intégrale augmente, d'où une amplitude de la contribution

22. Le phénomène de respiration est traduit par l'intégrale : $\Delta d(t) \propto \int_0^d \eta(z,t) \cdot dz$ si $\Delta d(t)$ est la variation d'épaisseur du film mince de ZnO ; les paramètres entrant en jeu sont donc n, d et Δd

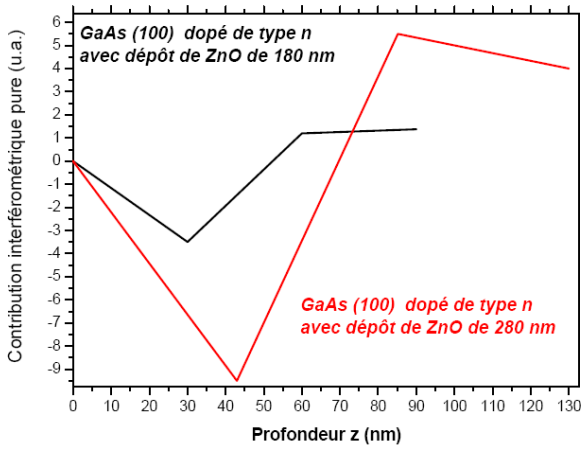


FIGURE 3.29 – Contributions interférométriques "pures" pour deux épaisseurs de ZnO déposées différentes : 180 nm et 280 nm ; échantillon de GaAs [100] dopé de type n+ ;effet interférométrique plus marquée en amplitude pour 280 nm que 180 nm d'épaisseur de ZnO déposé

interférométrique pure augmentée. L'effet interférométrique est donc supérieur d'un facteur 3 à 4 en amplitude dans le cas du dépôt de 280 nm par rapport à celui de 180 nm. Pour mémoire, on renverra le lecteur à la figure (données expérimentales) **3.18**, où l'on voit nettement la cassure de pente dûe à l'effet interférométrique.

3.2.8 Simulations montrant le rôle du front d'onde montant

Il s'agit dans ce paragraphe de lier l'existence du front montant à l'existence d'un domaine contenant les hautes fréquences. Il a été vu dans les paragraphes précédents qu'il était possible de rendre compte d'une impulsion. Ces résultats démontrent clairement qu'une génération de phonons acoustiques haute fréquence a été réalisée même en utilisant un faisceau de pompe pénétrant. Nous renvoyons ici le lecteur au spectre de phonons photo-générés par une impulsion IR-Visible, dont le calcul a été effectué en chapitre 1. On y voit clairement (voir la figure **1.19**) que les composantes les plus importantes dans le spectre se situent autour de $10GHz$. Or les impulsions acoustiques détectées ici ont un contenu se situant autour de 100 à $200GHz$. Ceci montre que bien que plus faibles en amplitude, ces hautes fréquences existent dans le front acoustique photo-généré. Afin d'apporter au lecteur un élément de preuve de plus de cette réalité, il va être montré que le transitoire (singularité mesurée et reproduite qualitativement) est lié au front de déformation acoustique $\eta(z,t)$, qui contient des hautes fréquences de manière naturelle.

La simulation du champ de déformation $\eta(z, t = 0ps)$ montre donc l'existence d'un front

à contenu fréquentiel haut (phonons haute fréquence). En cas de suppression progressive (analytiquement et de manière empirique : figure **3.30**) de ce front de montée abrupt, contenant le spectre fréquentiel haut en fréquence, la singularité n'est plus alors présente dans la simulation de la réflectivité transitoire (figure **3.30** ; en encart).

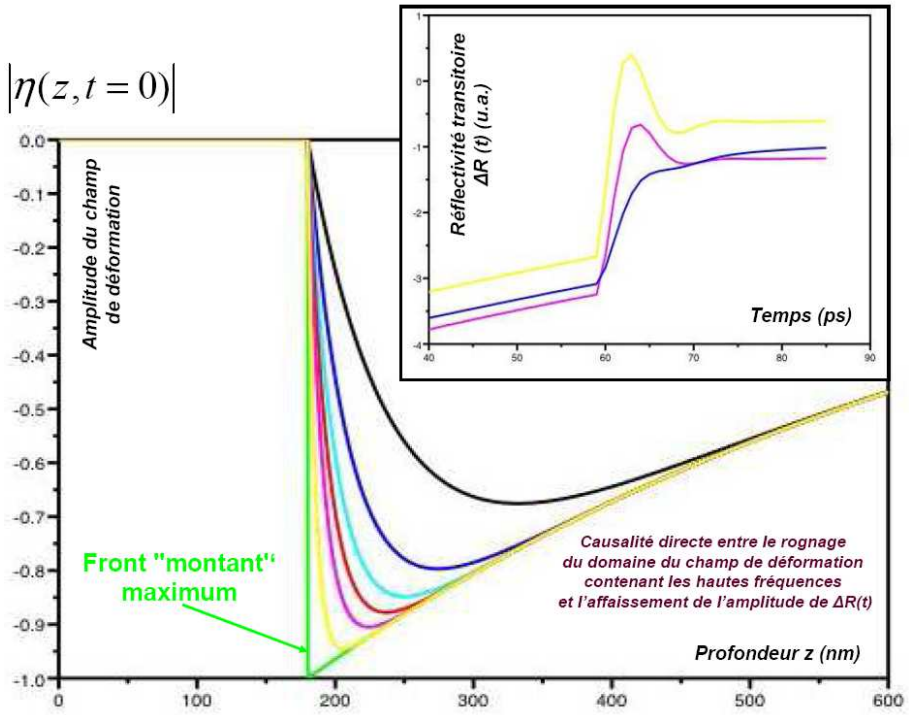


FIGURE 3.30 – Corrélation entre le rognage (empirique) du domaine du front de déformation acoustique $\eta(z, t = 0ps)$ à t = 0 ps et de contenu fréquentiel haute fréquence et la disparition progressive de la singularité du spectre temporel de réflectivité transitoire simulé ; colorations des simulations correspondantes d'un graphe à l'autre

Il existe ainsi un lien de causalité direct entre le rognage du domaine du champ de déformation $\eta(z, t = 0ps)$ à contenu fréquentiel haut et la disparition de la singularité dans la simulation du signal de réflectivité transitoire présenté en encart de la figure **3.30**. L'atténuation progressive du front d'onde (contenant sur les 100 premiers nanomètres le contenu fréquentiel haute fréquence) provoque en corrélation directe la disparition du signal acoustique dans le spectre temporel de réflectivité transitoire. Ces simulations montrent donc que l'existence des impulsions détectées est corrélée avec l'existence des composantes haute fréquence du front d'onde acoustique photo-généré.

3.2.9 Rôle clé de la sensibilité de la détection

Nous avons simulé des signaux qui correspondent assez fidèlement aux signaux expérimentaux ; une analyse relative à la détection et aux phénomènes de détection va maintenant être présentée afin de compléter ces simulations.

La compréhension totale des phénomènes enregistrés rend nécessaire la caractérisation de la bande passante liée au processus de détection utilisé. Nous allons analyser dans ce paragraphe la réflectivité transitoire dans le domaine fréquentiel et montrer que la détection utilisée dans nos expériences permet bien la détection et donc la mise en évidence claire de phonons acoustiques haute fréquence dans le matériau. En accord avec **(1.135)** et **(1.136)** [23], la contribution à la réflectivité transitoire de la contrainte acoustique existante dans le substrat de GaAs est donnée par :

$$\frac{\Delta r}{r_0}(t) \propto \int_d^\infty \eta(z,t) \cdot e^{2ik_2(z-d)} \cdot dz \tag{3.24}$$

En translatant le repère de coordonnées, pour convenance d'écriture, on écrit alors :

$$z' = z - d \tag{3.25}$$

On trouve alors :

$$\frac{\Delta r}{r_0}(t) \propto \int_0^\infty \eta(z',t) \cdot e^{2ik_2 z'} \cdot dz' \tag{3.26}$$

Considérant l'existence d'une impulsion acoustique propagative dans l'épaisseur du substrat depuis le film mince de ZnO et décrite par :

$$\eta\left(z',t\right) = \eta\left(z', t - \frac{z'}{C_a}\right) \tag{3.27}$$

La transformée de Fourier temporelle de **(3.24)** s'écrit alors :

$$\frac{\Delta \tilde{r}}{r_0}(\omega) \propto \tilde{\eta}(\omega) \times \left\{ \frac{1}{\left(\omega + 2k_2^{'}C_a + 2ik_2^{''}C_a\right)} \right\} \tag{3.28}$$

où $k_2^{'}$ est la partie réelle et $k_2^{''}$ la partie imaginaire du nombre d'onde associé à la sonde optique :

$$k_2 \equiv k_2^{'} + ik_2^{''} \tag{3.29}$$

23. On considèrera k_2 comme se référant au faisceau optique de sonde

On pose alors :

$$\hat{S}(\omega) = \left\{ \frac{1}{\left(\omega + 2k_2^{'}C_a + 2ik_2^{''}C_a\right)} \right\} \tag{3.30}$$

qui décrit la façon dont sont transformées les différentes composantes temporelles du spectre acoustique en des composantes spectrales de la réflectivité transitoire (méthode de détection acousto-optique).

La norme de la fonction $\hat{S}(\omega)$ est donnée par :

$$\left|\hat{S}(\omega)\right| \equiv \left\{ \left(\omega + 2k_2^{'}C_a\right)^2 + \left(2k_2^{''}C_a\right)^2 \right\}^{-1/2} \tag{3.31}$$

A partir de cette formulation **(3.31)**, on en conclut alors que la méthode de détection employée dans notre étude est particulièrement sensible à la pulsation Brillouin, donnée par :

$$\omega_B \equiv 2k_2^{'}C_a \tag{3.32}$$

Plusieurs cas limites surviennent dès lors :

- Quand $k_2^{''} << k_2^{'}$, c'est-à-dire dans le cas d'un substrat absorbant faiblement (ce qui est le cas considérant une sonde rouge), la *fonction de transfert* **(3.31)** se simplifie en :

  $$\hat{S}(\omega) \approx \left\{ \frac{1}{(\omega + \omega_B)} \right\} \tag{3.33}$$

  Cette expression ne possède que le pôle réel $\omega = -\omega_B$, conduisant à des oscillations dans le signal à ω_B. Ainsi, de manière à éviter la prédominance de la contribution du Brillouin, il est nécessaire, selon **(3.31)**, d'utiliser une sonde optique laser fortement absorbée par le substrat.
- Dans le cas limite où $k_2^{''} >> k_2^{'}$, on aura alors :

  $$\left|\hat{S}(\omega)\right| \approx \left\{ \omega^2 + \left(2k_2^{''}C_a\right)^2 \right\}^{-1/2} \tag{3.34}$$

  La détection est alors dite large bande, et de largeur de bande de détection à mi-hauteur $\Delta\omega$ augmentant proportionnellement avec le coefficient d'absorption optique de la sonde :

  $$\Delta\omega \equiv 2\sqrt{3}k_2^{''}C_a \tag{3.35}$$

Dans ce cas limite où $k_2^{''} >> k_2^{'}$, qui sera réalisé dans le cas de nos expériences en utilisant une sonde bleu, on trouve alors :

$$\hat{S}(\omega) \cong \left\{ \frac{1}{\left(\omega + 2ik_2^{''}C_a\right)} \right\} \tag{3.36}$$

Cette expression contient le pôle complexe $\omega = -2ik_2^{''}C_a$ et permet d'introduire le temps caractéristique[24] :

$$\tau \cong \omega^{-1} \approx \left(2k_2^{''}C_a\right)^{-1} \equiv \frac{l_{pen}}{C_a} \tag{3.37}$$

Ce temps caractéristique est égal au temps mis pour la propagation de l'onde acoustique le long de la longueur de pénétration optique du faisceau de sonde (l_{pen}). Ainsi, dans nos expériences, l'observation de réponses photo-acoustiques ultra-courtes au moyen de faisceau sonde bleu ($\approx 400nm$) est la confirmation de l'existence d'une photo-génération de phonons de haute fréquence, en particulier dans le cas de l'usage de faisceaux lasers fortement pénétrants.

Afin d'obtenir une image qualitative du profil de signal potentiellement détecté dans le domaine temporel ($\frac{\Delta r}{r_0}(t)$), il peut être utile de réaliser une intégration de **(3.24)**, considérant un front acoustique pénétrant dans le substrat et décrit par :

$$\eta(z,t) \equiv \aleph\left(t - \frac{z}{C_a}\right) \tag{3.38}$$

où $\aleph\left(t - \frac{z}{C_a}\right)$ est une fonction marche de Heaviside (voir **(1.32)**). Cette fonction "marche" représente bien le cas d'un champ de déformation obtenu avec un faisceau pompe très pénétrant. On a alors :

$$\frac{\Delta r}{r_0}(t) \approx \frac{1}{2ik_2} \cdot \left\{e^{2ik_2C_at} - 1\right\} \tag{3.39}$$

Dans le cas de ces faisceaux de sonde fortement pénétrant dans la matière, c'est-à-dire dans le cas où $k_2^{''} << k_2^{'}$, on décrit alors le système par :

$$\frac{\Delta r}{r_0}(t) \approx \frac{C_a}{i\omega_B} \cdot \left\{e^{i\omega_B t} - 1\right\} \tag{3.40}$$

En revanche, dans le cas de faisceaux optiques de sonde fortement absorbés (c'est-à-dire si $k_2^{''} >> k_2^{'}$), on a :

$$\frac{\Delta r}{r_0}(t) \approx \frac{1}{l_{pen}} \cdot \left\{1 - e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t} - i\omega_B t \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}\right\} \tag{3.41}$$

24. l_{pen} correspond à la profondeur de pénétration optique du faisceau de sonde

La partie imaginaire présente dans cette équation théorique du signal (**(3.39)** : terme $\omega_B t \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}$) est exactement celle détectée (transitoire ultra-court) dans nos expériences en sonde bleue (faisceau laser bleu). Deux aspects doivent néammoins être mentionnés à ce stade :

- Tout d'abord, la durée caractéristique du signal impulsionnel dépend à la fois de ω_B et de $\frac{C_a}{l_{pen}}$; c'est-à-dire à la fois de $k_2^{'}$ et de $k_2^{''}$ du faisceau sonde.
- Dans le cas où $k_2^{''} >> k_2^{'}$ (c'est-à-dire pour le cas où $\omega_B << \frac{C_a}{l_{pen}}$), la seconde partie du signal de **(3.41)** (terme en $\omega_B \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}$) est plus petite en norme que la partie $(1 - e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t})$, ceci considérant $\frac{\omega_B t \times l_{pen}}{C_a} \approx \frac{k_2^{'}}{k_2^{''}} << 1$. En conséquence, il est possible de détecter avec succès les signaux transitoires ultracourts si et seulement si la détection est fortement sensible et de manière spécifique à la partie imaginaire du signal de **(3.41)**. Cette condition a été réalisée dans nos expériences en détectant :

$$\frac{\Delta R}{R} = 2 \times \Re e\left(\frac{\Delta r}{r_0}\right) \tag{3.42}$$

  ceci considérant les valeurs particulières de $\frac{\partial k_2^{''}}{\partial \eta}$ et $\frac{\partial k_2^{''}}{\partial \eta}$.

Considérant une sonde à $\approx 390nm$, la partie imaginaire du coefficient photo-élastique $\frac{\partial k_2^{''}}{\partial \eta}$ peut être importante, vu que la longueur d'onde de la sonde est très proche de la transition interbande.

$$\frac{\Delta R}{R} \propto 2 \times \Re e\left(\left\{\frac{\partial k_2^{'}}{\partial \eta} + i\frac{\partial k_2^{''}}{\partial \eta}\right\} \cdot \frac{1}{l_{pen}} \cdot \left\{1 - e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t} - i\omega_B t \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}\right\}\right) \tag{3.43}$$

Deux valeurs de coefficients photo-élastiques ont été utilisées[25] [83] afin d'effectuer une simulation numérique de la partie réelle de la réflectivité transitoire, utilisant $\omega_B = 2\pi f_B = 2\pi \times 44GHz$ et la vitesse acoustique longitudinale $C_a = 4800m.s^{-1}$.

Cette simulation (présenté en figure **3.31**) montre ainsi la possibilité de détecter des phonons acoustiques haute fréquence, même considérant un front d'onde $\eta(z,t)$ modélisé par la fonction marche de Heaviside. Dans notre étude expérimentale, on a -pour le GaAs- $n_2^{''} \approx n_2^{'}$ qui ne correspond pas totalement au cas limite idéal $n_2^{''} >> n_2^{'}$. Cette simulation démontre donc tout l'intérêt et l'importance de la description de la fonction de transfert du processus de détection.

25. $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 19,7 + 5,6i \quad 390nm$ et $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 39 + 44,5i \quad 400nm$

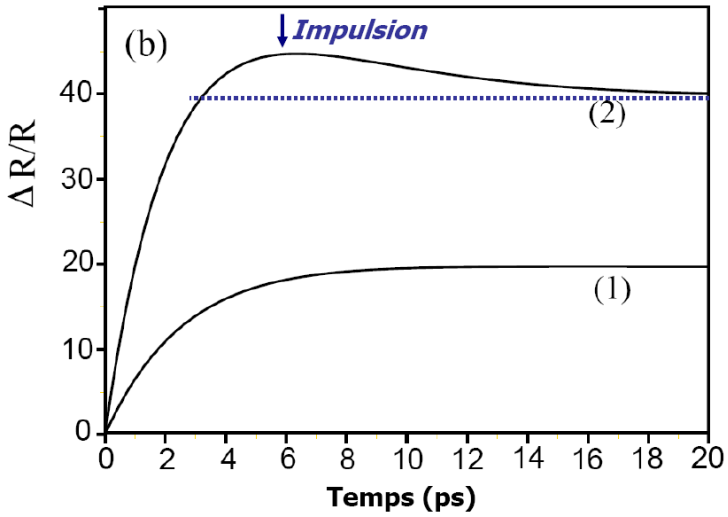


FIGURE 3.31 – Simulation de la partie réelle de la réflectivité transitoire ($\frac{\Delta R}{R} \propto 2 \times \Re e\left(\left\{\frac{\partial k_2'}{\partial \eta} + i\frac{\partial k_2''}{\partial \eta}\right\} \cdot \frac{1}{l_{pen}} \cdot \left\{1 - e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t} - i\omega_B t \cdot e^{-\frac{C_a}{l_{pen}}t}\right\}\right)$) en fonction de deux types de coefficients photo-élastiques de GaAs : 1) correspondant à $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 19,7 + 5,6i \quad 390nm$ et 2) correspond à $\left.\frac{\partial n}{\partial \eta}\right|_{GaAs} = 39 + 44,5i \quad 400nm$

3.3 Bilan du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié la photogénération et photodétection de phonons acoustiques cohérents dans le semiconducteurs GaAs selon une orientation cristallographiques [100]. Dans un premier temps, nous avons montré que le processus de déformation de potentiel était le processus prédominant dans le mécanisme de génération de phonons acoustiques (seul le mode à 44GHz a été étudié néanmoins). Pour cela, nous avons mis en évidence, qu'en empêchant au plasma photo-excité de se relaxer par processus intra-bande, responsable de l'augmentaion de la population de phonons, qu'il était quand même possible de générer une contrainte grâce à un pompage optique direct des électrons [*resp.* trous] vers le bas [*resp.* haut] de la bande de conduction [*resp.* de valence]. Cette modification de la population électronique conduit alors à l'établissement de la contrainte appelée de déformation de potentiel. En s'appuyant sur une modélisation fine à la fois du spectre des phonons acoustiques photogénérés via ce processus électronique et les mécanismes de détection, nous avons pu rendre compte d'une bonne partie des résultats expérimentaux et notamment de ceux obtenus lorsque les expériences pompe-sonde étaient réalisées dans le domaine IR-VIS (pompe et sonde rouge) où seules les transitions optiques en centre zone (vallée Γ) entraient en jeu. Néanmoins, s'agissant des expériences réalisées avec un pompage dans l'UV et une détection dans l'IR-VIS, il est apparu que nos interprétations

n'étaient que partielles. Le modèle employé pour décrire le spectre des phonons photogénérés ne rendait peut-être pas compte complètement des phénomènes en partie, et probablement parce que des mécanismes de transitions électroniques intervallée n'ont pas été bien pris en compte. Les propriétés du plasma électronique fortement excité (sous UV) ne sont en effet peut-être pas encore bien comprises. Dans un second temps, grâce à des expériences temps de vol, nous avons mis en évidence l'existence de phonons acoustiques haute fréquence dans le spectre acoustique d'un front d'onde généré par un faisceau pompe très pénétrant, c'est-à-dire ayant des composantes spectrales majeures à basse fréquence (10 GHz). Cette mise en évidence a été effectuée d'une part au travers de la détection de ces phonons à la surface libre du système ZnO-GaAs via un effet interférométrique (mise en évidence d'un transitoire de l'épaisseur de la cavité optique que constitue la couche transparente de ZnO). D'autre part, l'emploi d'un faisceau sonde très peu pénétrant, cantonnant l'interaction photoélastique à moins de 20 nm sous la surface de GaAs, il a été clairement détecté ces phonons acoustiques haute fréquence ($100 - 200$ GHz). Des simulations numériques ont plutôt bien reproduit les signaux expérimentaux et une analyse théorique de la fonction de transfert de détection a confirmé l'intérêt d'avoir un faisceau sonde très peu pénétrant puisqu'il permet d'élargir la bande passante de détection. Ces résultats, et plus particulièrement, ceux relatifs aux transitoires acoustiques courts (< 7 ps), démontrent la complexité et la richesse du spectre de phonons photogénérés dans le GaAs, où la plupart du temps, dans la littérature, seul le mode Brillouin est clairement observé. A terme, il serait intéressant de mener des expériences en pompant cette fois-ci dans l'UV et en effectuant encore la détection dans l'UV pour voir si des composantes plus haute fréquence existent, ces composantes pouvant atteindre des niveaux comparables à ceux obtenues dans le cas de super-réseaux par exemple. Cette idée nous apparaît intéressante à tester. Nous allons voir et présenter dans le chapitre suivant un autre axe de recherche visant cette fois-ci à contrôler un autre processus de génération qui repose sur les propriétés piézo-électriques de GaAs. Il n'y sera pas question encore de phonons haute fréquence, puisque le travail portera sur l'étude d'un mode relativement basse fréquence (autour de 45 GHz), mais de la mise en évidence claire de l'efficacité du processus de piezo-génération photon-induite.

Chapitre 4

Photo-génération de phonons acoustiques par effet piézo-inverse

"Projetez alors les rayons lumineux sur la substance enfermée dans le tube. J'ai alors obtenu des effets splendides avec des cristaux de bichromates de potasse et de sulfate de cuivre."

Graham Bell, 2 Novembre 1880

Les processus de génération de phonons acoustiques par voie thermoélastique et, entre autres, par voie de déformation de potentiel ont été décrits et/ou étudiés dans les chapitres précédents. Des contenus fréquentiels élevés (100 à 200 GHz) ont ainsi été détectés et mis en évidence expérimentalement. L'efficacité du processus de génération de phonons, selon des voies où le phénomène de déformation de potentiel est dominant, a été montré. Les différents facteurs (liés au matériau, à la dynamique...) ont été évalués quant à leur impact sur cette efficacité de génération. Si la contrainte de déformation de potentiel a été prise comme mécanisme prédominant en direction [100] lors des précédentes analyses, nous allons montrer que la contrainte piézo-électrique peut elle aussi être un mécanisme prédominant, dès lors que l'on se place selon une orientation cristallographique adéquate, selon des conditions de photo-excitation adaptées. Différents axes de recherches ont été explorés sur le thème des effets liés aux mécanismes piézo-électriques, essentiellement dans le GaN, ou dans des semi-conducteurs disposés en super-réseaux [100] [101], pour ce qui concerne le domaine $GHz - THz$. Dans ce chapitre, nous allons donc montrer que la piézo-génération dans le semi-conducteur GaAs de direction cristallographique [111] est clairement possible et présenter les résultats expérimentaux qui sont autant de preuves de l'existence de ce phénomène dans le semi-conducteur GaAs.

4.1 Introduction au phénomène de piézo-photo-génération

Très schématiquement, il a été vu de façon générale que les mécanismes de photo-génération de phonons cohérents dans un semi-conducteur se résumaient globalement en trois processus [1] :

1. Redistribution des électrons sous photo-excitation laser par promotion dans la bande de conduction, induisant une contrainte de déformation de potentiel (σ_{eh} équivalente à une *pression électronique*)
2. Relaxation intrabande du plasma électron-trou très rapide en un temps inférieur à la picosesonde, conduisant à des émissions de phonons (σ_{th} contrainte thermoélastique analogue à une *pression phononique*)
3. Ecrantage du champ électrique macroscopique $\vec{E}$ par un champ créé par la séparation spatiale des électrons et des trous. On parle alors de photo-génération par effet piézo-électrique.

Les expressions générales des différentes contraintes données en **(1.43)**, **(1.26)**, **(1.86)** et **(1.58)**, ainsi que l'expression **(1.2)** du principe fondamental de la dynamique permettent une description du système physique. Cette description va être affinée dans la suite de notre propos, par l'étude expérimentale du phénomène de photo-piezo-génération dans le GaAs [111]. Cette étude se situe à des échelles de temps de l'ordre de la picoseconde. Différents groupes de recherche ou auteurs ont, par le passé, suggéré ou potentiellement prédit par la théorie [57], [88] [102] [103], l'existence de photo-génération d'ondes par piézo-électricité dans les semi-conducteurs piézo-électriques [2]. Cet effet demeure cependant bien difficile à montrer ou à mesurer pour l'ensemble des acteurs de la communauté de l'acoustique picoseconde, ce malgré des résultats clairement établis en régime microseconde [57] [105] [106]. Si cet effet reste délicat à mesurer (malgré quelques expériences sous champs externes appliqués [100, 102], cette difficulté reste à rechercher parmi différents facteurs, dont un effet de déformation de potentiel σ_{eh} dominant sur l'effet d'origine piezo-électrique σ_{piezo}, qui par compétition, peut masquer le phénomène même s'il existe.

Malgré le verrou scientifique majeur de la difficulté de la piezo-photo-génération en régime picoseconde, la possibilité de produire un champ électrique transitoire est clairement évoquée comme possible par certains auteurs [104], (ou la génération de phonons

1. considérant de plus les phénomènes de recombinaison
2. Des travaux de recherche mentionnent de même l'existence d'impulsions électriques sub-picosecondes dans des structures où un champ est appliqué entre deux électrodes [104]

optiques par un écrantage du champ électrique [109] par exemple), ceci pour le GaAs avec électrodes ou sans électrodes [108].

Nous détaillerons donc dans le cadre de ce chapitre, la méthodologie utilisée, les systèmes étudiés, puis nous donnerons les résultats expérimentaux obtenus, et nous présenterons nos analyses et conclusions.

4.2 Méthodologie utilisée dans le cadre de cette étude

L'approche méthodologique utilisée pour cette étude sera de type comparative : il s'agira de comparer les résultats obtenus pour une direction cristallographique décrite comme non-piézo-active avec ceux obtenus pour une direction cristallographique décrite par la théorie comme piézo-active (figure **1.16**). Les différents champs électriques présents (figure **4.1**) dans le phénomène physique seront présentés et leur contribution au processus de photo-piézo-génération global sera discutté.

1. le champ de reconstruction de surface $E_{bif/S}$ (*built in field*), causé par l'existence de charges différentes sur des surfaces de natures atomiques différentes ; il existe en effet une face A (Ga majoritaire en surface, de direction [111]) et une face B (As majoritaire en surface, selon la direction (-1-1-1).
2. le champ de reconstruction de surface $E_{bif/P}$ (*built in field*), lié à un phénomène de *pinning*, c'est-à-dire de *piégeage* des porteurs de charges dans les puits de potentiels correspondant aux défauts présents en surface de l'échantillon. Typiquement, $E_{bif/P}$ atteint des valeurs de l'ordre de 100 $kV.cm^{-1}$ (pour une concentration en dopant de $10^{17} ent.cm^{-3}$) [64].
3. le champ dit champ électrique de Dember E_D, champ photogénéré et provoqué par les différences de valeur de coefficient de diffusion des électrons et des trous : $D_{e^-} \neq D_{h^+}$

4.3 Systèmes étudiés : caractéristiques et typologie

Différents types d'échantillons de GaAs [111] et un échantillon de direction cristallographique (411) ont été étudiés ; les échantillons d'orientation [100] sont ceux décrits en figure **3.9**.

1. ***GaAs d'orientation [111] non dopé*** : Il est de type SI, ce qui signifie *semi-insulating*. Ce type de semi-conducteur contient une concentration très faible en

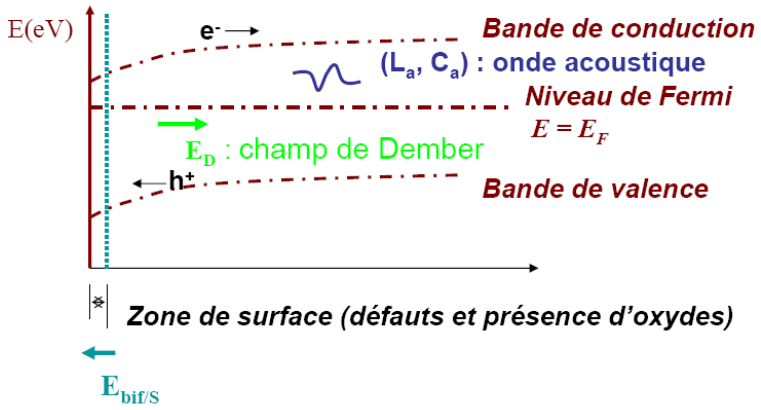


FIGURE 4.1 – Situation générale et existence du phénomène de *pinning* ; cas d'un semi-conducteur de type p ; description des champs électrique E_D et $E_{bif/P}$

porteurs intrinsèques. La résistivité de ce substrat est généralement élevée en conséquence de ceci ; elle vaut ici $R_e = 1,1 \times 10^7 \Omega.cm^{+1}$. L'épaisseur de ce substrat est certifié par le fournisseur entre 375 et 425 μm, ce qui nous permet de considérer ce substrat comme semi-infini dans la direction de la profondeur. Le polissage est simple face sur ce type d'échantillon.

2. ***GaAs [111] dopé Zn de type p*** : La résistivité de ce type de substrat p vaut $R_e = 0,158 \Omega.cm^{+1}$, pour une épaisseur identique au substrat de GaAs [111] non dopé précédent. Le polissage de ce substrat est double face pour ce type d'échantillon, ce qui nous permettra d'effectuer des mesures sur les deux faces (de type A et B).

   Les substrats de GaAs [111] non dopé et dopé Zn de type p proviennent de ITME en Pologne.

3. ***GaAs [111] dopé Te (Tellure)*** : Ce substrat est de type n ; sa résistivité vaut $R_e = 9,3 \times 10^{-4} \Omega.cm^{+1}$; elle est donc excessivement faible comparée aux autres substrats que nous utiliserons pour nos expériences de réflectivité transitoire. L'épaisseur est du même ordre de grandeur que les deux autres échantillons : elle est donnée à $400 \pm 20 \mu m$. Le polissage des échantillons est double face (Existence d'une face A et d'une face B), avec une face que nous pensons de qualité de polissage moindre que l'autre (pour la face B à As majoritaire). Des seuils d'ablation sous faisceaux laser inférieur pour ce côté ont d'ailleurs été constatés. Le fournisseur est localisé au Etats Unis (SI TECH Boston).

4. ***GaAs (411) non dopé*** : Il s'agit d'un substrat GaAs de type SI (semi-insulating), c'est-à-dire non dopé, provenant de ITME en Pologne.

L'incertitude sur l'orientation est de $\pm 1°$ pour tous les substrats utilisés, sauf pour les échantillons dopés au tellure, où la spécification se resserre à $\pm 0,5°$.

Nous commencerons par décrire les différents résultats exérimentaux obtenus, puis une analyse théorique sera menée en lien avec ces résultats de mesures.

4.4 Résultats expérimentaux

Le montage expérimental est celui décrit en figure **2.1**. Nous avons utilisé une pompe bleue et une sonde rouge dans les premières expériences présentées, puis nous présenterons des résultats en configuration dite pompe rouge/sonde rouge. La mesure de la réflectivité transitoire $\frac{\Delta R}{R}(t)$ permet l'obtention des spectres temporels. Nous avons étudié l'évolution de l'amplitude des oscillations Brillouin de mode longitudinal à environ 50 GHz [3], en fonction de la fluence de faisceau délivrée par le laser de pompe sur l'échantillon. La composante à $50GHz$ est celle qui sera principalement observée et utilisée dans notre étude. Les signaux de réflectivité optique transitoire obtenus pour les différents échantillons ont typiquement l'allure présentée sur les figures **4.2a** et **4.2c**, qui concernent respectivement les échantillons non dopé et dopé de type p, et orientés selon [111]. Nous pouvons constater sur ces figures **4.2a** et **4.2c** les oscillations Brillouin attendues à environ 50 GHz. Pour l'ensemble de ces expériences, nous avons déterminé l'amplitude des composantes acoustiques en fonction de la puissance de pompe optique. Différentes configurations d'excitation ont été employées ; la première a consisté en une excitation à l'aide d'une radiation visible-UV ($\approx 395nm$), et la seconde en une excitation dans le visible ($\approx 790nm$). Ces deux configurations ont permis de modifier la profondeur d'excitation d'un facteur 40, compte tenu des propriétés d'absorption du GaAs. En parallèle de ces échantillons dits piézo-actifs, nous avons réalisés le même type de mesures (*conditions expérimentales identiques*) sur des échantillons non-piézo-actifs (GaAs [100] à différents types de dopages).

Pour les échantillons de GaAs dopé Zn de type p (figure **4.2 c**), nous avons fait varier la fluence d'excitation d'un niveau de fluence le plus proche possible de zéro en remontant vers une fluence de environ 70 $\mu J.cm^{-2}$ (ce qui correspond à une excursion en puissance allant de $5\mu W$ vers $\approx 2000\mu W$).

3. La fréquence Brillouin dépend de l'angle d'incidence des faisceaux

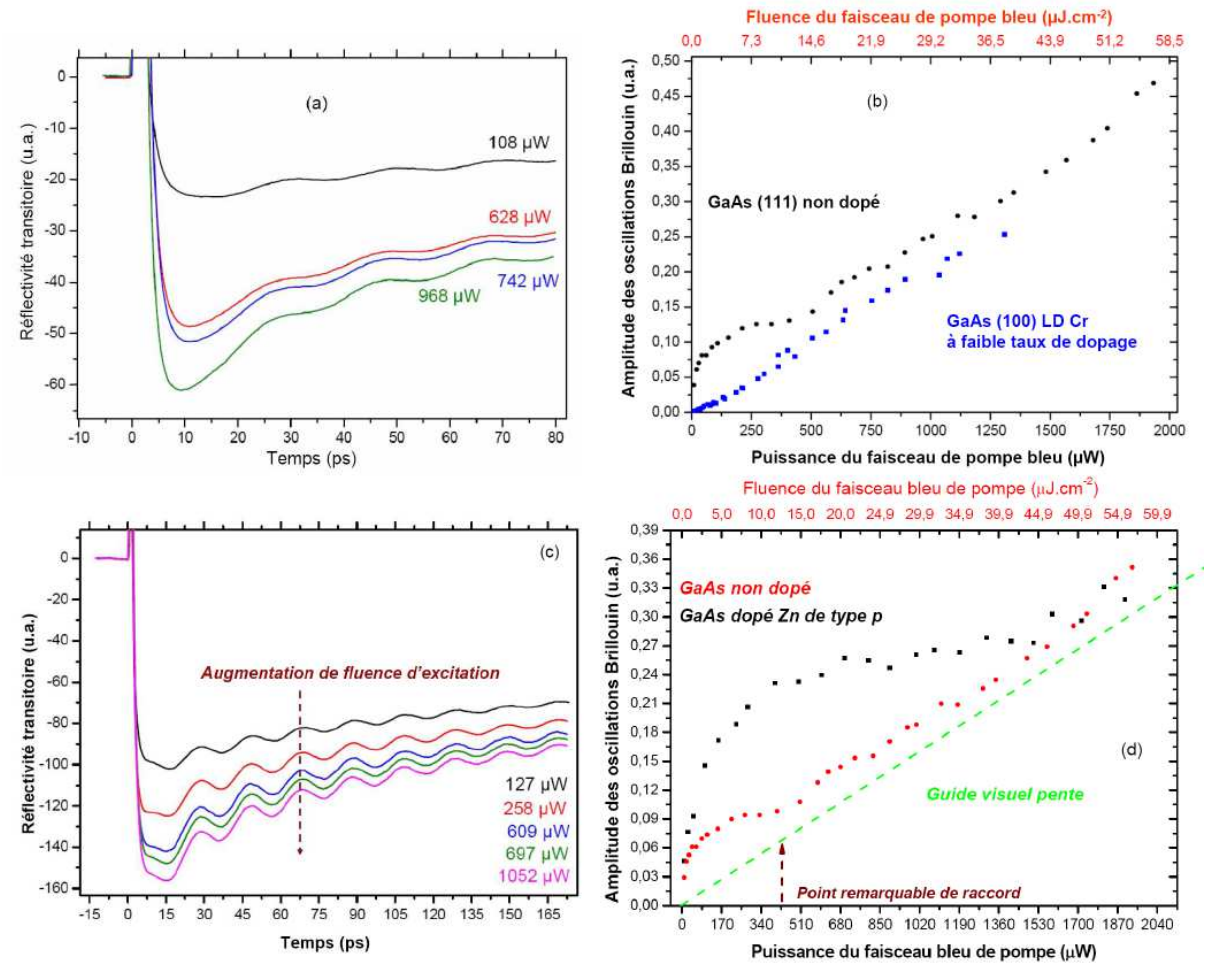


FIGURE 4.2 – **(a)** : Oscillations Brillouin mode longitudinal à 50 GHz ; échantillon de GaAs [111] non dopé ; pompe bleu (395 nm de puissance variant) et sonde rouge (790 nm et $\approx 7mW$) ; **(b)** : Pompe bleu et sonde rouge ; échantillon GaAs [111] non dopé et échantillon de GaAs [100] LD Cr à faible taux de dopage ; évolution de l'amplitude des oscillations Brillouin en fonction de la fluence du faisceau de pompe bleu ; normalisation de la pente de la droite relative au GaAs [100] LD Cr à la pente du domaine linéaire relative au GaAs [111] ; **(c)** : Oscillations Brillouin mode longitudinal à 50 GHz ; échantillon de GaAs [111] dopé Zn de type p ; pompe bleu (395 nm de puissance de $5\mu W$ à $2002\mu W$) et sonde rouge (790 nm et $\approx 7mW$ fixée) ; **(d)** : Comparatif de l'évolution des amplitudes des oscillations Brillouin en fonction de la fluence de pompe bleu utilisée. Pompe bleu ($395nm$)et sonde rouge ($790nm$) ; échantillon GaAs [111] non dopé ($10^{13}ent.cm^{-3}$) et GaAs [111] dopé Zn de type p ($10^{18}ent.cm^{-3}$). Visualisation d'un point de raccord

4.4.1 Cas du GaAs [111] non dopé ; existence d'une non linéarité

On constate que dans le cas d'une fluence d'excitation supérieure à $15\mu J.cm^{-2}$, l'amplitude des oscillations Brillouin dépend linérairement de la puissance de pompe, que ce soit dans la direction [100] (GaAs à taux de dopage faible LD Cr) ou la direction [111] (GaAs non dopé). En revanche, on constate que si la fluence d'excitation est inférieure à $15\mu J.cm^{-2}$, la dépendance vis-à-vis de la fluence de pompage reste linéaire dans le cas du GaAs [100], mais présente une forte non-linéarité dans le cas du GaAs [111]. On constate donc qu'à basse fluence d'excitation, l'amplitude des phonons générés est 5 fois en moyenne plus importante en intensité dans la direction cristallographique [111] que dans la direction [100] [4]. La dépendance linéaire des amplitudes des oscillations Brillouin dans le GaAs [100] vis à vis de la fluence d'excitation sera quant à elle conservée quel que soit le taux de dopage du GaAs [100] considéré. Ces résultats expérimentaux sont présentés en figure **4.2.d**.

4.4.2 Effet du dopage et de la face présentée au flux laser sur le phénomène de non linéarité constaté en basse fluence de pompe bleu sur GaAs [111] non dopé

Le dopage (mise en place d'un échantillon GaAs [111] dopé Zn de type p) semble renforcer la non-linéarité observée dans le cas du GaAs [111] non dopé (figure **4.2d**).

Afin de tester l'influence de la face présentée au faisceau laser, il a été mise en oeuvre des mesures sur les deux faces de l'échantillon de GaAs poli bi-face, à savoir le GaAs [111] dopé Zn de type p. Les résultats sont donnés en figure **4.3** [5].

On met ainsi en évidence, concernant ces mesures :

1. une influence claire du ***dopage*** sur l'amplitude des oscillations Brillouin en zone non linéaire, le dopage renforçant les non-linéarités
2. une influence de la ***surface*** dans le processus de non linéarité obtenu : la réponse réflectométrique et donc l'amplitude des oscillations Brillouin obtenue est différente selon la face exposée au faisceau laser de pompe et de sonde.
3. un effet de ***saturation clair*** et intense

4. en considérant des coefficients photo-élastiques identiques pour les directions cristallographiques selon <100> et <111>, le coefficient $\left(\frac{\partial n}{\partial \eta}\right)_{<hkl>}$ étant en théorie dépendant de la direction cristallographique <hkl>

5. La discrimination par voie chimique *humide* des deux faces (A et B) est possible, car la face où les atomes d'arsenic sont majoritaires est plus réactive au sens oxydo-réduction du terme, considérant 3 électrons disponibles (*etching rate* de la face [111]B plus élevé)

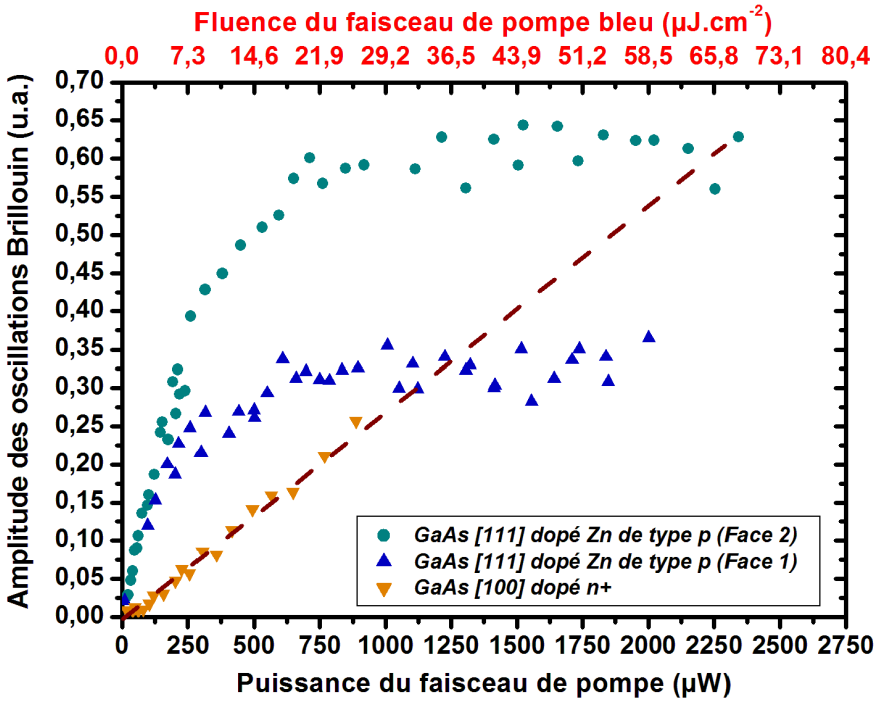


FIGURE 4.3 – Echantillon de GaAs [111] dopé Zn de type p et GaAs [100] dopé de type n+. Etude de la réponse réflectométrique en fonction de la face exposée aux faisceaux laser de pompe bleu ($395nm$) et de sonde rouge ($790nm$) et en fonction de la fluence de pompe bleu. Effet de saturation pour les faces *dites* 1 et 2. Résultats bruts sans normalisation de pente pour le GaAs [100] dopé de type n+

4.4.3 Signaux expérimentaux obtenus pour le GaAs [111] dopé de type p, en présence d'une couche de ZnO déposé, en pompe bleu et sonde rouge

Des mesures additionnelles ont été menées en configuration pompe bleu/sonde rouge, sur un échantillon de GaAs [111] dopé de type p sur lequel un dépôt de ZnO a été effectué.

Il peut être intéressant de pouvoir comparer les résultats de GaAs [111] dopé Zn et de type p (polissage double face) avec les résultats obtenues pour le même échantillon dopé Zn de type p, mais recouvert d'une couche de ZnO. Cette comparaison est donnée en figure **4.4**.

On y voit que l'amplitude Brillouin n'est pas non plus une forme linéairement dépendante de la fluence excitatrice. Il semble y avoir comme une linéarité à partir de $1100\mu W$. Le phénomène de saturation observé dans le cas des faces A et B n'apparait cependant pas pour le GaAs recouvert de ZnO. L'effet d'un dépôt de couche de ZnO à la surface est

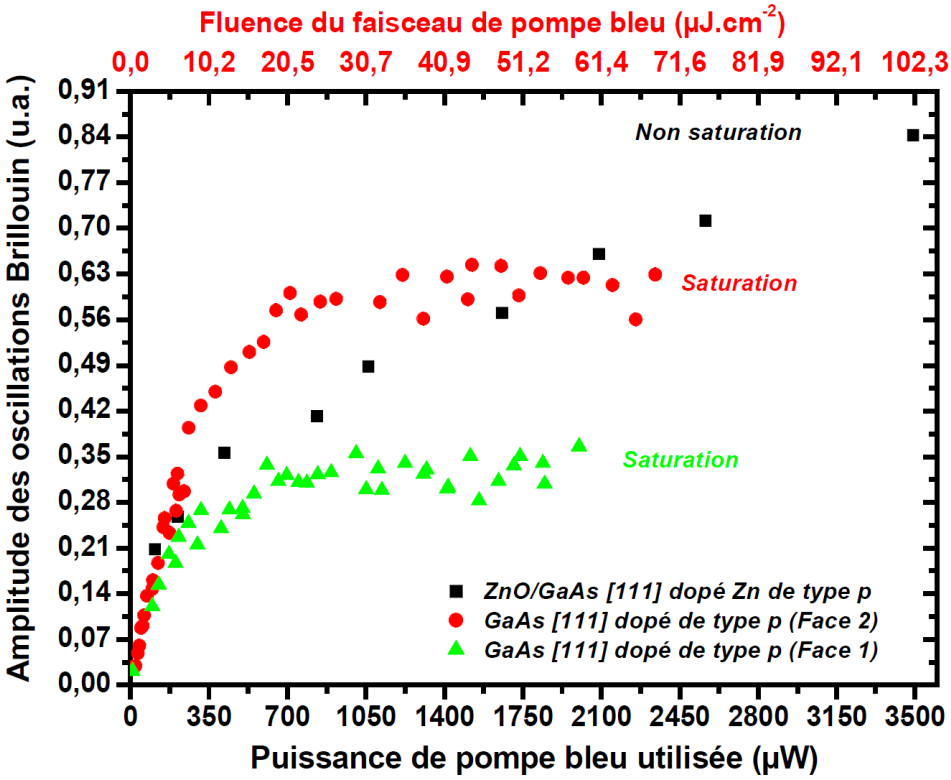


FIGURE 4.4 – Comparatif entre GaAs [111] dopé Zn de type p (faces 1 et 2) et GaAs [111] dopé Zn de type p avec dépôt de ZnO (points noirs). Effet de saturation non visible dans le cas de l'échantillon de GaAs [111] dopé de type p *avec dépôt de ZnO*

donc significatif sur la typologie des signaux obtenus (existence d'une saturation ou non).

4.4.4 Signaux obtenus pour des échantillons de GaAs [111] dopé tellure

Il a été mis en oeuvre des mesures sur des échantillons polis selon les deux faces, selon deux configurations (pompe bleu et sonde rouge) et (pompe et sonde rouge). Les échantillons de GaAs [111] dopé au tellure sont ceux pour lesquels la résistivité R_e est la plus faible parmi les échantillons étudiés dans ce chapitre.

Echantillon de GaAs [111] dopé tellure Te, en pompe bleu et sonde rouge

Lors de l'ouverture de l'emballage de conditionnement, il a été prêté une attention toute particulière aux faces A et B : la face B correspond à la face présenté vers le bas : elle présente majoritairement des atomes d'arsenic en surface. La face A est celle orientée vers le dessus et que l'on voit quand on ouvre l'emballage ; elle présente majoritairement des

atomes de gallium. Les mesures en pompe bleu et sonde rouge sont présentées en figure **4.5**. Un schéma mis en encart détaille le conditionnement standardisé du wafer de GaAs poli bi-face.

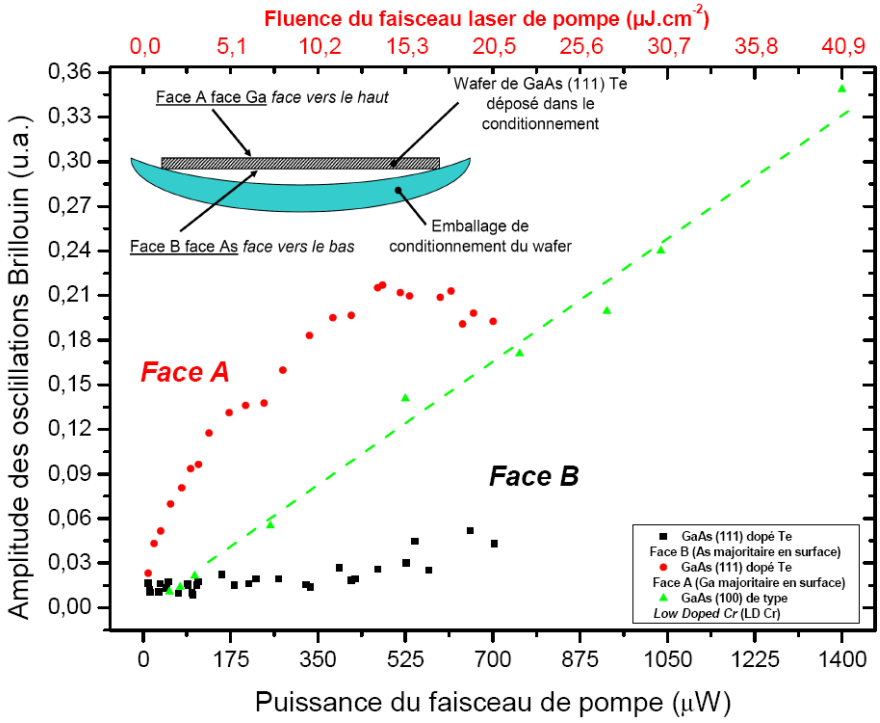


FIGURE 4.5 – Signaux de réflectivité transitoire ; échantillon de GaAs [111] Te P/P poli double face de type n ; pompe bleu (395 nm) et sonde rouge (790 nm et 7,5 mW environ) ; encart : conditionnement standardisé du wafer de GaAs [111] Te avant ouverture et identification normalisée des faces A et B

Les résultats montrent que la réponse non-linéaire est aussi clairement observée. Néammoins, nous avons observé que la surface était très sensible aux UV et se dégradait très vite, même aux faibles fluences. aussi, aucune discussion en terme d'énergie n'a été rendue possible. Les expériences en pompe et sonde rouge ont été, quant à elle, plus convaincantes.

Echantillon de GaAs [111] dopé tellure Te, en configuration pompe et sonde rouge

On effectue des mesures (figure **4.6**) sur ces mêmes échantillons en pompe et sonde rouge. On constate l'existence d'un seuil entre deux domaines linéaires et non-linéaires, comme pour les échantillons de GaAs [111] dopé Zn et non dopé étudiés auparavant.

Les deux faces (A et B ; où la face B est celle présentant majoritairement des atomes de As) sont passées sous faisceaux. Une ouverture rigoureuse des boites de conditionnement

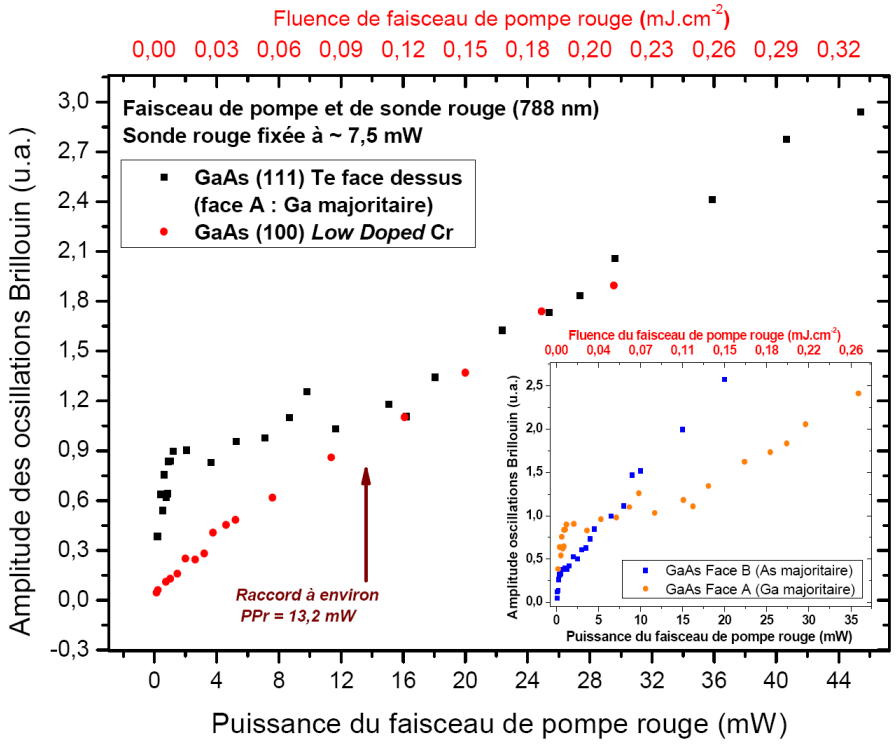


FIGURE 4.6 – Signaux de réflectivité transitoire ; échantillon de GaAs [111] Te P/P poli double face de type n ; pompe et sonde rouge (790 nm) ; sonde fixée à 7,5 mW environ ; encart : signaux présentés relatif à la face A et comparaison avec la face B du même échantillon dans les mêmes conditions expérimentales (pompe et sonde rouge)

scellées ab-initio permet de savoir quelle face est A ou B. Le point de raccord en puissance entre le domaine non-linéaire et le domaine linéaire est évalué à $13,4mW$ [6] environ pour la face A (figure **4.6**).

4.4.5 Signaux relatifs au GaAs (411) non dopé, en pompe bleu et sonde rouge

Les effets non linéaires mentionnés dans les résultats présentés dans les paragraphes précédents existent aussi dans le cas du GaAs (411) ; une reprise de l'étude proposée par Matsuda et al. en 2004, et un affinage des mesures sur la zone de puissance de pompe optique comprise entre 0 et $450\mu W$, permet ainsi de montrer une similitude de comportement avec les mesures obtenues pour le GaAs [111]. Sur la figure **4.7**, nous pouvons observer un signal modulé comportant deux composantes, correspondant aux modes longitudinal ($50GHz$) et transversal ($28GHz$).

6. mesurée au détecteur avant l'objectif focalisant sur l'échantillon

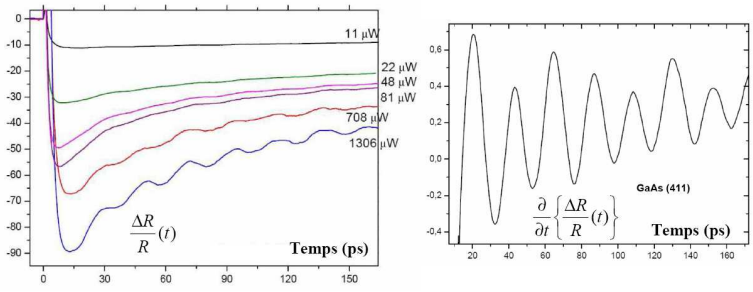


FIGURE 4.7 – Evolution des amplitudes des oscillations Brillouin en fonction de la fluence d'excitation optique du faisceau de pompe : pompe bleu ($395nm$) et sonde rouge ($790\ nm$ et environ $7\ mW$) ; échantillon de GaAs (411) de type SI (*semi-insulating*) ; dérivée du signal du signal de réflectométrie transitoire présenté à droite. Existence d'une modulation

La figure **4.8** présente ainsi cette non linéarité obtenue dans le cas du GaAs (411).

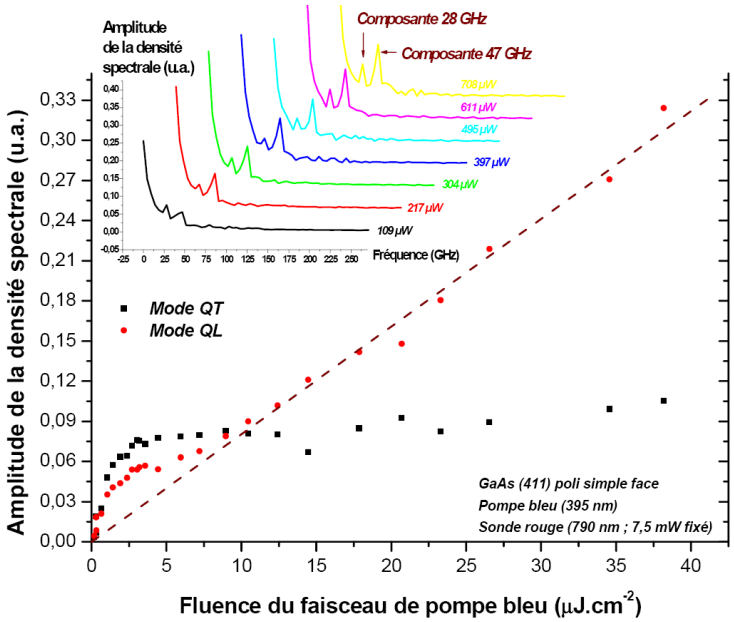


FIGURE 4.8 – Non linéarité dans la zone de basse fluence et reprise d'un comportement linéaire au dessus d'un seuil de fluence pour le GaAs (411) non dopé (*semi-insulating*). Ondes de mode QT : visualisation de la saturation ; pas de reprise d'un comportement linéaire après la zone entre 0 et $10\mu J.cm^{-1}$. Visualisation d'un effet piézo-électrique pour des modes différents : QL et QT (modes Quasi-Longitudinaux et Quasi-Transverses)

La direction (411) est bien considéré comme piézo-active ; cette observation dans le GaAs (411) est un argument supplémentaire pour lier la dépendance non-linéaire de l'amplitude Brillouin vis à vis de la fluence d'excitation à une cause d'origine piézo-électrique. On trouve ici un raccord des domaines non-linéaires et linéaires situés en termes de puis-

sances à $PP_b = 340\mu W$. La saturation pour les modes quasi-transverses (mode QT) est clairement visible sur la figure **4.8** ; il n'y a alors pas de reprise d'un régime linéaire après le domaine considéré comme non-linéaire. Dans ce cas, on peut penser que la contrainte de piézo-électricité domine alors largement celle de déformation de potentiel.

4.5 Premiers éléments de discussion

Les résultats montrent que l'amplitude du champ acoustique détecté dans ces types d'échantillons dépendait toujours linéairement de la fluence d'excitation, a-contrario de celle détectée dans des semi-conducteurs piézo-actifs, qui présente de fortes non-linéarités. Ces résultats sont bien illustrés par les figures **4.2b** et **4.2d**. Quelques constatations importantes peuvent être faites directement de la lecture de ces courbes expérimentales. Tout d'abord, alors que l'effet de dopage n'influe pas sur les lois de comportement observées sur le GaAs [100], il se manifeste de façon spectaculaire sur les différents échantillons de GaAs [111]. Pour ces résultats, des renormalisations de pente ont été effectuées : le régime linéaire relatif aux échantillons non-piézoactifs a été mis parallèle à la pente du régime où la contrainte de déformation de potentiel prédomine dans les échantillons de GaAs [111].

Plusieurs éléments de réflexion peuvent être dégagés :

- La dépendance linéaire des amplitudes des oscillations Brillouin (mode longitudinal à 50 GHz) en fonction de la fluence de pompe est cohérente avec l'existence d'un phénomène de déformation de potentiel, pour lequel la théorie exprime clairement le fait que σ_{eh} est proportionnelle à la densité de charges photo-induites : $\sigma_{eh}(z,t) \equiv d_{eh} \times N(z,t)$.
- La non-linéarité très forte de l'amplitude Brillouin en fonction de la fluence de pompe optique, ceci pour la direction [111], dépend clairement du dopage, tout comme -nous le développerons dans la suite- la zone de déplétion et le champ de reconstruction sont sensibles à ce paramètre, à savoir le niveau de dopage.
- L'amplitude de la non-linéarité ne dépend que relativement faiblement de l'orientation de surface présentée ([111] ou [-1-1-1]) au faisceau laser de pompe et de sonde, et le signe de cette non-linéarité ne change pas entre le GaAs [111] dopé de type p et le GaAs [111] non dopé.
- L'effet de saturation est lié à la signature d'un effet d'écrantage total.

Ainsi, en bilan de tous ces éléments, on a donc, par l'existence de ce phénomène de non-linéarité et par ses caractéristiques, la signature d'un phénomène de piézo-génération contrôlé optiquement par le champ électrique E_{bif}. C'est ce que nous allons tenté de démontrer.

Dans un premier temps, nous allons évaluer ce que nous nommerons des valeurs de champ de raccord $E_{raccord}$, que nous trouverons cohérentes avec celles données dans la littérature. Ces champs de raccord $E_{raccord}$ seront trouvés comme très supérieurs à la valeur du champ de Dember E_D. Nous montrerons ainsi que E_D n'est pas dominant dans le processus. Le calcul des spectres de η_D, η_{eh}, et η_{bif} sera proposé. Il sera montré que la contribution du champ de Dember ne peut expliquer la prédominance de σ_{piezo} sur σ_{eh} à faible fluence d'excitation optique, et que cette quantité ne peut pas être à l'origine de l'effet. Il sera ensuite présenté les calculs relatifs aux rapports $\frac{\eta_{bif}}{\eta_{eh}}$ et $\frac{\eta_{bif}}{\eta_D}$; on trouvera que η_{bif} domine η_{eh} [7], ceci à la pulsation de détection des phénomènes ($\omega = \omega_B$). L'origine du phénomène piézo-électrique sera attribuable à ce champ de déformation (lié à η_{bif}).

4.6 Evaluation numérique de quelques grandeurs caractéristiques

Plusieurs informations de base peuvent être extraites des expériences réalisées, dont la valeur du champ au point de raccord $E_{raccord}$.

4.6.1 Valeur du champ électrique au point de raccord

Tout d'abord, le point de raccord entre le domaine linéaire et le domaine où la courbe possède un caractère non linéaire permet l'évaluation d'un champ électrique caractéristique, que l'on nommera $E_{raccord}$. Il s'agit de la valeur du champ électrique au delà de laquelle le phénomène de déformation de potentiel devient dominant. Evaluons cette valeur seuil de champ électrique, dans le cas d'une *pompe bleu et d'une sonde rouge*, pour les échantillons de GaAs [111] non dopé de type SI (*Semi-Insulating*), ainsi que pour les autres échantillons pour lesquels des mesures ont été faites et qui présentent un point de raccord (absence de saturation). On suppose pour ce faire *une égalité des contraintes en ce point particulier* des enregistrements expérimentaux ; en l'absence d'autres types de contraintes que nous *supposerons* négligées et négligeables dans notre estimation, on aura donc :

$$\sigma_{eh} = \sigma_{piezo} \tag{4.1}$$

qui est équivalent en écriture à :

7. C'est-à-dire $\frac{\eta_{eh}}{\eta_{bif}} << 1$

$$d_{eh} \times N = p_{e_z} \times E \tag{4.2}$$

avec $d_{eh} = B \times \left|\frac{\partial E_g^\Gamma}{\partial P}\right|$, ce qui induit :

$$E = \left(\frac{B \times \left|\frac{\partial E_g^\Gamma}{\partial P}\right|}{p_{e_z}} \right) \times N \tag{4.3}$$

Numériquement, on évalue la quantité reliant le champ électrique E ($V.m^{-1}$) à la densité N (m^{-3}) de porteurs de charges photo-induites dans le milieu (ou à défaut son ordre de grandeur) par :

$$\left(\frac{B \times \left|\frac{\partial E_g^\Gamma}{\partial P}\right|}{p_{e_z}} \right) = 8510 \times 10^{-21} V.m^2 \tag{4.4}$$

considérant que le *bulk modulus* vaut $B = 74GPa$ [97], que $\left|\frac{\partial E_g^\Gamma}{\partial P}\right| = 9 \times 10^{-11} eV.Pa^{-1}$ [41] [110], et utilisant la conversion $1bar = 10^5 Pa$. D'où (en unités SI) :

$$E = 8510 \times 10^{-21} \times N \tag{4.5}$$

La densité de porteurs de charges photo-induites N est évaluée quant à elle par :

$$N = \frac{1}{\xi \times \pi \times \left(\frac{\Phi}{2}\right)^2} \times \frac{\left[\frac{PP_b}{RR}\right]}{\left[\frac{hc}{\lambda_{pompe}}\right]} \equiv \frac{1}{V_0} \times \frac{E_{pulse}}{\left(\frac{hc}{\lambda_{pompe}}\right)} \tag{4.6}$$

où PP_b est la puissance (estimée) de pompe bleue mesurée au raccord des domaines linéaires et non-linéaires, RR le taux de répétition (RR : *Repetition rate*) du laser de pompe et $V_0 = \xi \times \pi \times \left(\frac{\Phi}{2}\right)^2$ qui est le volume irradié décrit en **1.1**. Φ est la taille de la tâche laser.

d'où une formule globale :

$$E = \frac{B \times \left|\frac{\partial E_g}{\partial P}\right|}{p_{e_z} \times \xi \times \pi \times \left(\frac{\Phi}{2}\right)^2} \times \frac{\left[\frac{PP_b}{RR}\right]}{\left[\frac{hc}{\lambda_{pompe}}\right]} \tag{4.7}$$

permettant d'évaluer la valeur du champ électrique E au raccord des deux domaines (linéaire et non-linéaire). Numériquement, on trouve donc [8] :

$$V_0 = \xi \times \pi \times \left(\frac{\Phi}{2}\right)^2 = 577 \times 10^{-21} m^3 \tag{4.8}$$

8. La profondeur de pénétration optique est de l'ordre de $\xi \approx 15nm$ dans le cas de l'utilisation d'une pompe optique bleu à 390 nm ; le diamètre de tache laser est de $\approx 7\mu m$

$$\frac{hc}{\lambda_{pompe}} = 5,1 \times 10^{-19} SI \tag{4.9}$$

Considérant $PPb = 425\mu W$ [9], $RR = 76MHz$, et un facteur 2 ($2PP_b$ à la place de PP_b pour effectuer le calcul) permettant de prendre en compte la modulation de la pompe par le modulateur acousto-optique, on trouve un champ estimé à $E \approx 820kV.cm^{-1}$ pour le GaAs d'orientation [111] non dopé de type *Semi-Insulating*, en pompe bleu et sonde rouge (figure **4.2** b).

On pourra comparer cette valeur obtenue à celle obtenue pour le champ électrique au raccord des deux domaines non-linéaires et linéaires pour le GaAs (411) soumis à un *pompage bleu et une sonde rouge*. On rappelle que la valeur de puissance PP_b de jonction des deux régimes vaut $PP_b = 340\mu W$ (figure **4.8**). Le calcul donne alors une valeur de champ de $E \approx 655kV.cm^{-1}$. Cette comparaison est d'autant plus pertinente que les deux échantillons considérés (pour les directions [111] et (411)) sont de même nature tous les deux, c'est-à-dire *semi-insulating*. On compare ici deux échantillons à même taux de dopants initialement présents dans le milieu.

L'échantillon de GaAs [111] dopé tellure (Te), en configuration de *pompe et de sonde rouge* présente un seuil de raccord (figure **4.6**) à $PP_r = 13,2mW$. En conséquence de ceci, on trouve $E = 2,38 \times 10^4 kV.m^{-1}$, qui donne en définitive $E \cong 238kV.cm^{-1}$. Ces valeurs sont cohérentes avec celles annoncées par C.K. Sun et al., qui cite pour une jonction p-n dans le GaN, un ordre de grandeur de $700kV.cm^{-1}$ [111]. La figure **4.9** récapitule l'ensemble des résultats en fonction des typologies de dopages des échantillons.

Les courbes d'amplitude Brillouin en fonction de la fluence d'excitation présentant une saturation ne permettent pas l'évaluation de valeur de point de raccord. C'est le cas du GaAs [111] dopé Zn de type p.

4.6.2 Estimation de la valeur du champ de Dember E_D

L'expression du champ de Dember suivante est donnée par :

$$E_D \equiv \left(\frac{D_e - D_h}{\mu_e + \mu_h}\right) \times \left(\frac{1}{N} \cdot \frac{\partial N}{\partial z}\right) \tag{4.10}$$

9. Puissance mesurée par le détecteur qui sera multipliée par un facteur *empirique estimatif* (dépendant du dopage, de l'échantillon, par présence de ZnO ou pas...) $0,25$ traduisant l'existence d'un flux de lumière réfléchi sur la surface de l'objectif de focalisation et la quantité de lumière réellement absorbée par le GaAs ; c'est un facteur prenant en compte une réalité expérimentale tout comme le facteur 2 du à l'existence de la modulation du faisceau de pompe

Echantillon considéré	Génération	Détection	Seuil de raccord mesuré au détecteur (Seuil de puissance / valeur réellement absorbée sur l'échantillon)	Densité de porteurs de charges photo-induites N (m^{-3})	$E_{raccord}$ ($kV.cm^{-1}$)
GaAs (111) non dopé SI	Pompe bleu 395 nm	Sonde rouge 790 nm	~ 425 µW (~ 212,5 µW)	~ 9,63 x 10^{24}	~ 820
GaAs (411) non dopé SI	Pompe bleu 395 nm	Sonde rouge 790 nm	~ 340 µW (~ 170 µW)	~ 7,70 x 10^{24}	~ 655
GaAs (111) dopé Te	Pompe rouge 790 nm	Sonde rouge 790 nm	~ 13,2 mW (~ 6,6 mW)	~ 2,75 x 10^{24}	~ 238

FIGURE 4.9 – Tableau : valeurs du champ de raccord $E_{raccord}$ obtenu par égalité (*hypothèse*) des régimes linéaire et non linéaire pour les différents échantillons

où, dans le cas de GaAs, on a $D_e \cong 200cm^2.s^{-1}$; $D_h \cong 10cm^2.s^{-1}$; $\mu_e \cong 8000cm^2.V^-1.s^{-1}$; $\mu_h \cong 200cm^2.V^{-1}.s^{-1}$. On prendra une valeur de gradient telle que $\left|\frac{1}{N} \cdot \frac{\partial N}{\partial z}\right| < 1/20\ nm^{-1}$. Le gradient est défini par le profil de pénétration du faisceau de pompe bleu. Compte tenu de la diffusion très probable des porteurs, étendant la zone de contrainte photo-induite, cette estimation de gradient surestime probablement le gradient réel. En conséquence, on trouve :

$$E_D \equiv \left(\frac{200-10}{8000+200}\right) \times \left(< \frac{1}{20} \times 10^9\right) V.m^{-1} \tag{4.11}$$

d'où la valeur estimative du champ de Dember E_D :

$$E_D < 11,6\ kV.cm^{-1} \tag{4.12}$$

Les autres valeurs caractéristiques sont celles du champ de reconstruction E_{bif}, de valeur $160kV.cm^{-1}$ [64], et U_{bif} valeur du potentiel du champ de reconstruction valant 0,8 eV (type de dopage p) et 0,5 eV (type de dopage n). Ainsi, vu ces calculs, nous pouvons observer que le champ de Dember évalué semble relativement négligeable. Nous confirmerons dans ce qui suit cet aspect.

4.7 Caractéristiques de la région où se situe le phénomène de piézo-génération

Des calculs d'ordres de grandeurs indiquent donc que $E_{bif} \gg E_D$; poursuivons en décrivant les régions ou zones où se situe le champ de reconstruction (E_{bif}). Nous allons ici présenter différents profils spatiaux en fonction de la profondeur z, avant de proposer des discussions plus globales.

4.7.1 Description de la zone de déplétion

On définit plusieurs longueurs caractéristiques pour définir cette zone de déplétion. Tout d'abord, l_{bif}, longueur liée au champ E_{bif}, définie par :

$$l_{bif}^2 = \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{2\,|e|\,N_0} \times \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|} \right) \tag{4.13}$$

Cette grandeur caractérise l'extension de la profondeur de la zone de déplétion. La longueur de Debye, quant à elle, caractérise le profil du bord de cette zone de déplétion :

$$l_{Debye}^2 \cong \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0 \cdot k_B \cdot T}{q^2 \cdot N_0} \tag{4.14}$$

Considérant un taux de dopage estimée à $N_0 \approx 3,1 \times 10^{17} ent.cm^{-3}$ pour le GaAs dopé Zn de type p, q la charge de l'électron, $k_B T$ l'énergie thermique, la température ambiante $T = 300K$, on évalue cette grandeur à $l_{Debye} \approx 8nm$.

Schématiquement, cette distribution de charge $Q(z)$ sera représentée par la figure **4.10**.

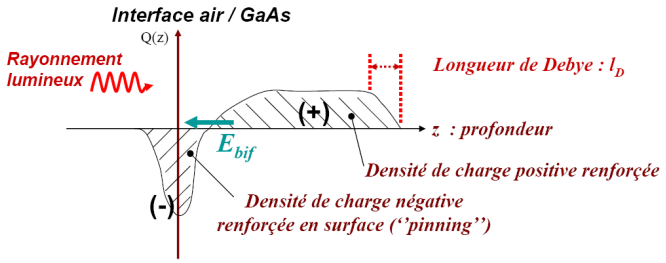


FIGURE 4.10 – Distribution de charge Q(z) en fonction de la profondeur z

La loi de poisson (modèle *linéaire* de distribution présenté en figure **4.11**) permet de déterminer l'expression de $E_{bif}(z)$. On verra dans la suite (expression **(4.89)**) que $E_{bif}(z) = \left(1 - \frac{z}{l_{bif}}\right) \times E(0)$ avec $E(0) > 0$ pour les échantillons de type p et $E(0) < 0$ pour les échantillons de type n.

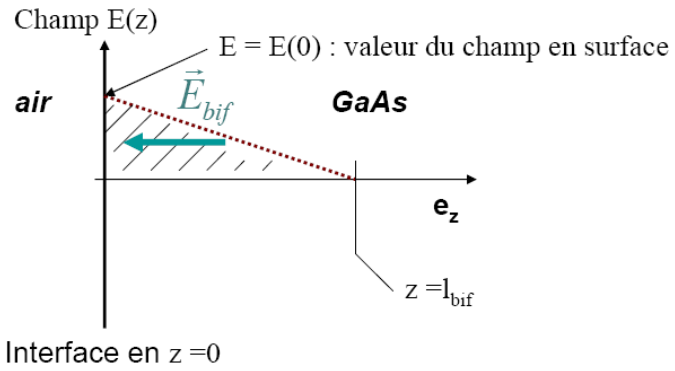


FIGURE 4.11 – Distribution linéaire du champ de reconstruction (*build in field*) ; modélisation de type linéaire

4.8 Analyse et discussion théorique

4.8.1 Expression du déplacement longitudinal $u(z,t)$

Il va tout d'abord être établi l'expression du spectre en fréquence des impulsions acoustiques générées par mécanisme de déformation de potentiel, en présence du champ de Dember E_D et de la présence d'un champ d'écrantage $E'(z,t)$ (E_c) particulier. Plusieurs équations sont utilisées afin d'établir l'expression du spectre en fréquence des phonons acoustiques générés par l'existence d'une contrainte σ_{eh}, considérant l'existence du champ de Dember E_D (figure **4.12**) et de E_{ec}, champ électrique écrantant le champ de reconstruction.

Il est utilisé une méthode basée sur les transformations intégrales, permettant une résolution de l'équation d'onde inhomogène :

$$\rho\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}(z,t) - \rho \cdot C_a^2 \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}(z,t) = \frac{\partial \sigma}{\partial z}(z,t) \tag{4.15}$$

où $u(z,t)$ étant un déplacement mécanique selon l'axe $\vec{e}_z$, ρ la densité du milieu matériel (kg.m^{-3}), et σ la contrainte photo-induite (en N.m^{-2}).

Par ailleurs, la contrainte de déformation de potentiel s'écrit :

$$\sigma_{eh}(z,t) = d_{eh} \cdot N_e(z,t) \tag{4.16}$$

pour la densité $N_e(z,t)$ d'électrons photo-excité.

On introduit aussi la concentration N en plasma dans le matériau, qui représente aussi la densité de charges électroniques photo-induite, dèsignée par $N_e(z,t)$ [10] :

10. $N_h(z,t)$ représente la densité de trous

$$N \approx N_e \approx N_h \tag{4.17}$$

La contrainte de piézo-électricité est donc donnée par :

$$\sigma_D = p_{e_z} \cdot E \tag{4.18}$$

où p_{e_z} est le module effectif de piézo-électricité selon l'axe de profondeur dans l'épaisseur du matériau (axe e_z). E correspond soit à E_D soit à $E_{bif} + E'$.

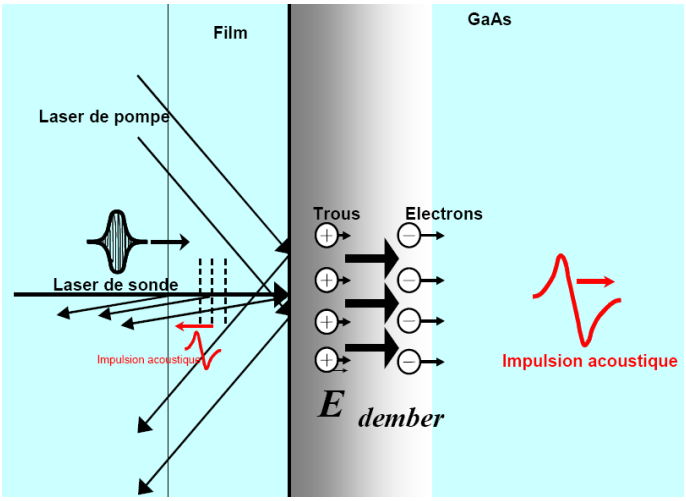


FIGURE 4.12 – Champ électrique de Dember ; visualisation de la séparation des charges sous l'effet du laser de pompe ; cas où il existe un film déposé en surface du substrat de GaAs

L'expression de $\tilde{\eta}(\omega)$ (spectre de l'impulsion acoustique quittant la surface en z= 0, lieu de la photo-génération) en fonction de $\hat{\sigma}(\omega; \pm\frac{i\omega}{C_a})$ est calculable, en utilisant la transformée de Fourier, la transformation de Laplace, les conditions aux frontières des domaines (ici, en z = 0), l'intégration des résidus, et des conditions sur l'existence ou non du rayonnement lumineux à la profondeur z.

On aura donc :

$$\tilde{\eta}(\omega) = -\frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \cdot \left\{ \hat{\sigma}(\omega; +\frac{i\omega}{C_a}) - \hat{\sigma}(\omega; -\frac{i\omega}{C_a}) \right\} \tag{4.19}$$

avec

$$\hat{\sigma}(\omega; p) = \int_0^\infty \tilde{\sigma}(\omega, z) \cdot e^{-pz} \cdot dz \tag{4.20}$$

qui est une transformée de Laplace de paramètre p et de pulsation ω, et avec

$$\tilde{\sigma}(\omega;z) = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma(z,t)\cdot e^{i\omega t}\cdot dt \tag{4.21}$$

qui est une transformée de Fourier de la contrainte photo-induite $\sigma(\omega;z)$, fonction de la profondeur z par rapport à l'interface air/GaAs (absence de dépôt) définie par z= 0 et du temps t.

Le déplacement longitudinal (mode L) acoustique est alors donné par :

$$u(z,t) = \frac{1}{4\pi\rho C_a^2}\cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\hat{\sigma}(\omega;-\frac{i\omega}{C_a}) - \hat{\sigma}(\omega;+\frac{i\omega}{C_a})\right)\cdot e^{-i\omega(t-\frac{z}{C_a})}\cdot d\omega \tag{4.22}$$

Cette expression **(4.22)**, solution de **(4.15)**, est une expression générale valable pour toute forme de contrainte σ.

L'expression du champ de Dember E_D donnée par **(4.10)** est une expression valide pour décrire le champ électrique existant dans le plasma électron-trou (e^-/h^+), considérant l'approximation sur les densités $N_e \approx N_h$, mais cette approximation peut se révéler inexacte près de la surface, dans la région où existe le champ de reconstruction.

4.8.2 Spectre des phonons et contribution du champ de Dember

On se place tout d'abord dans le cas où le champ de Dember est dominant ($E_D >> E_{bif}$) ; c'est à dire dans le cas où $E \cong E_D$.

1. Faible influence du champ électrique de reconstruction (*built-in-field*) sur la diffusion ambipolaire, ce qui implique la validité de l'équation **(4.10)** sur le domaine de profondeur de $z = 0$ à $z \to \infty$. On fera l'hypothèse :

$$\left\|\vec{E}_{bif}\right\| << \left\|\vec{E}_D\right\| \tag{4.23}$$

   La longueur caractéristique l_{bif} liée au champ de reconstruction est de même très inférieure à la longueur de diffusion ambipolaire du plasma électron-trou (e^-/h^+) notée l_{dif} :

$$l_{bif} << l_{dif} \tag{4.24}$$

2. On considérera dans la suite que si $\left\|\vec{E}_{bif}\right\| \to 0$, on trouve alors les signaux générés par l'existence des contraintes σ_{eh} et σ_D. n(z = 0 ; t), concentration en porteurs de charges photo-induites en surface, sera supposé pouvoir être déterminé dans notre analyse, et les effets de l'interaction entre cette concentration de charges photo-excités et le champ de reconstruction (E_{bif}) seront supposés pouvoir être déterminés aussi.

3. La concentration en plasma photo-généré N' sera considérée beaucoup plus petite que la concentration initiale en dopant N_0 [11]. Ainsi, si

$$N = N_0 + N' \tag{4.25}$$

alors on considérera que

$$N' << N_0 \tag{4.26}$$

Cette hypothèse sera utilisée lors des comparaisons des efficacités des différents mécanismes, mécanismes générés à la pulsation Brillouin ω_B.

L'expression de la contrainte de déformation de potentiel en fonction de N' s'écrit :

$$\sigma_{eh} \cong d_{eh} \cdot N' \tag{4.27}$$

En utilisant **(4.18)**, **(4.10)**, **(4.25)**, on trouve l'expression de la contrainte de piézo-électricité liée au champ de Dember :

$$\sigma_D = -\frac{(D_e - D_h)}{(\mu_e + \mu_h)} \times \frac{p_{e_z}}{N_0 + N'} \times \frac{\partial}{\partial z}(N_0 + N') \tag{4.28}$$

Vu que $\frac{\partial N_0}{\partial z} = 0$ et que $N_0 \cdot (1 + \frac{N'}{N_0}) \approx N_0$, on trouvera la forme linéarisée (4.33) :

$$\sigma_D \cong -\frac{(D_e - D_h)}{(\mu_e + \mu_h)} \times \frac{p_{e_z}}{N_0} \times \frac{\partial}{\partial z} N' \tag{4.29}$$

Par utilisation de **(4.27)** dans **(4.19)**, on obtient le spectre de déformation acoustique généré par le mécanisme de déformation de potentiel :

$$\tilde{\eta}_{eh}(\omega) = -i\frac{\omega \cdot d_{eh}}{2\rho C_a^3} \cdot \left\{ \hat{N}'(\omega; +\frac{i\omega}{C_a}) - \hat{N}'(\omega; -\frac{i\omega}{C_a}) \right\} \tag{4.30}$$

Par utilisation de la transformation de Laplace et des équations **(4.19)** et **(4.29)**, on trouve :

$$\tilde{\eta}_D(\omega) = -i\frac{\omega}{2\rho C_a^3} \cdot (-\frac{(D_e - D_h)}{(\mu_e + \mu_h)}) \cdot (\frac{p_{e_z}}{N_0}) \left\{ \frac{\partial \hat{N}'}{\partial z}(\omega; +\frac{i\omega}{C_a}) - \frac{\partial \hat{N}'}{\partial z}(\omega; -\frac{i\omega}{C_a}) \right\} \tag{4.31}$$

d'où par dérivation :

$$\tilde{\eta}_D = \frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \times \frac{(D_e - D_h)}{(\mu_e + \mu_h)} \times \frac{p_{e_z}}{N_0} \times \frac{i\omega}{C_a} \times \left\{ \hat{N}'(\omega; \frac{i\omega}{C_a}) + \hat{N}'(\omega; -\frac{i\omega}{C_a}) \right\} \tag{4.32}$$

11. C'est une hypothèse, mais parfois elle peut être mise en défaut, pour certains matériaux, on aura $N' \cong N_0$

4.8.3 Expression de la fonction de distribution de plasma $\hat{N}'(\omega, p)$

L'obtention de l'expression de la réflectivité transitoire $\frac{\Delta R}{R}$ nécessite la connaissance de la distribution du plasma $\hat{N}'(\omega, p)$. Cette expression de $\hat{N}'(\omega; p)$ s'obtient par transformation de Fourier sur ω et transformation de Laplace sous paramètre p, ceci appliqué à l'équation de continuité **(4.33)** :

$$\frac{\partial N'}{\partial t} + \frac{1}{\tau_R} \cdot N' = D_{eh} \cdot \frac{\partial^2 N'}{\partial z^2} + \frac{\alpha_{opt}^{pompe} \times (1 - R^{pompe})}{h\upsilon_L^{pompe}} \times I_L \times e^{-\alpha_{opt}^{pompe} z} \times f(t) \quad (4.33)$$

avec la condition aux limites suivante :

$$D_{eh} \times \frac{\partial N'}{\partial z}(z = 0) = 0 \quad (4.34)$$

où τ_R est le temps de recombinaison (dans le *bulk*), D_{eh} le coefficient de diffusion ambipolaire, α_{opt}^{pompe} le coefficient de réflexion en énergie du faisceau laser de pompe, R^{pompe} le coefficient en énergie du faisceau laser de pompe, I_L l'intensité laser de ce laser de pompe, et $f(t)$ le profil temporel du laser de pompe. Dans la suite, par souci de simplification des écritures , on posera $\alpha_{opt}^{pompe} = \alpha$. On posera :

$$\frac{\alpha_{opt}^{pompe} \times (1 - R^{pompe})}{h\upsilon_L^{pompe}} \times I_L = N_t \quad (4.35)$$

qui correspond au taux d'excitation de paires électrons-trous en $m^3.s^{-1}$. On posera aussi $\omega_R = \frac{1}{\tau_R}$. La transformation de Fourier en ω et de Laplace de paramètre p de **(4.33)** donne :

$$(-i\omega + \omega_R) \cdot \hat{N}'(\omega, p) = D_{eh} \times \left\{ -\frac{\partial \tilde{N}}{\partial z}(\omega, 0) - p \cdot \tilde{N}(\omega, 0) + p^2 \cdot \hat{N}(\omega, p) \right\} + \frac{N_t}{p + \alpha} \times \hat{f}(\omega) \quad (4.36)$$

avec la relation de conditions aux limites :

$$D \times \frac{\partial \hat{N}'}{\partial t}(\omega, p = 0) = 0 \quad (4.37)$$

En regroupant les termes liés à $\hat{N}'(\omega, p)$ d'un coté et en $\tilde{N}'(\omega, 0)$ de l'autre coté dans l'équation **(4.36)**, on trouve :

$$(-i\omega + \omega_R - p_e^2 D_{eh}) \cdot \hat{N}(\omega, p) = D_{eh} \times \left\{ -\frac{\partial \tilde{N}}{\partial z}(\omega, 0) - p \cdot \tilde{N}(\omega, 0) \right\} + \frac{N_t}{p + \alpha} \times \tilde{f}(\omega) \quad (4.38)$$

En utilisant **(4.34)**, on trouve :

$$(-i\omega + \omega_R - p^2 \cdot D_{eh}) \cdot \hat{N}(\omega, p) = D_{eh} \times \left\{-p \cdot \tilde{N}(\omega, 0)\right\} + \frac{N_t}{p+\alpha} \times \tilde{f}(\omega) \tag{4.39}$$

On trouve donc :

$$\hat{N'}(\omega, p) = \frac{p \times \tilde{N'}(\omega, 0) - \frac{1}{D_{eh}} \times \frac{N_t}{p+\alpha} \times \tilde{f}(\omega)}{p^2 - \left(\frac{\omega_R}{D_{eh}} - i\frac{\omega}{D_{eh}}\right)} \tag{4.40}$$

En introduisant la racine $p_{DR} \equiv \sqrt{\frac{\omega_R}{D_{eh}} - i\frac{\omega}{D_{eh}}}$, on trouve que :

$$\hat{N'}(\omega, p) = \frac{p \times \tilde{N'}(\omega, 0) - \frac{1}{D_{eh}} \times \frac{N_t}{p+\alpha} \times \hat{f}(\omega)}{(p - p_{DR})(p + p_{DR})} \tag{4.41}$$

La transformée de Laplace inverse, notée $L^{-1}\left\{\hat{N'}(\omega, p)\right\}$, permet la détermination de $\hat{N'}(z, t)$, ceci pour des distances très supérieures à l_{pen}, distance caractéristique de génération des ondes diffusionnelles. Par ailleurs, par respect des conditions théoriques, le pole $p = p_{DR}$ ne doit pas être comprise comme solution de **(4.36)**. En conséquence, on annulera le numérateur de **(4.40)** pour cette valeur particulière de p. D'où :

$$\left[p \times \tilde{N'}(\omega, 0) - \frac{1}{D_{eh}} \times \frac{N_t}{p+\alpha} \times \tilde{f}(\omega)\right]\Bigg|_{p=p_{DR}} = 0 \tag{4.42}$$

On trouve alors la valeur du spectre de la concentration en plasma ($\tilde{N'}(\omega, 0)$) à la surface, c'est-à-dire en z = 0. On trouve que :

$$\tilde{N'}(\omega, 0) = \frac{1}{D_{eh}} \times \frac{N_t}{(p_{DR} + \alpha) \times p_{DR}} \times \tilde{f}(\omega) \tag{4.43}$$

En remplaçant **(4.42)** dans **(4.41)**, on obtient donc l'expression mathématique de $\tilde{N'}(\omega, p)$:

$$\hat{N'}(\omega, p) = \frac{N_t \cdot \tilde{f}(\omega)}{D_{eh}(p - p_{DR})(p + p_{DR})} \times \left\{\frac{p}{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha)} - \frac{1}{p+\alpha}\right\} \tag{4.44}$$

On réécrit cette expression en réduisant l'accolade au même dénominateur, et en simplifiant :

$$\hat{N'}(\omega, p) = \frac{N_t \cdot \tilde{f}(\omega)}{D_{eh} \cdot (\alpha + p_{DR}) \cdot p_{DR}} \times \left\{\frac{p \cdot (p+\alpha) - p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha)}{(p + p_{DR}) \cdot (p - p_{DR}) \cdot (p+\alpha)}\right\} \tag{4.45}$$

qui se simplifie en :

$$\hat{N'}(\omega, p) = \tilde{N}(\omega, z = 0) \times \left(\frac{1}{p+\alpha}\right) \times \left(1 + \frac{\alpha}{p + p_{DR}}\right) \tag{4.46}$$

4.8.4 Calcul de la différence normalisée des valeurs des densités de plasma pris aux pôles $+p$ et $-p$

Cette expression de la densité de charges photo-excité dans le matériau va permettre d'évaluer les déformations engendrées, ceci par le calcul de différence, et de somme de $\hat{N}'(\omega, +\frac{i\omega}{C_a})$ et de $\hat{N}'(\omega, -\frac{i\omega}{C_a})$. **(4.46)** est donc très importante.

L'expression **(4.30)** est liée à une différence de $\hat{N}'(\omega, +\frac{i\omega}{C_a})$ et de $\hat{N}'(\omega, -\frac{i\omega}{C_a})$. On évalue donc cette différence normalisée à $\hat{N}'(\omega, p=0)$ selon :

$$\begin{cases} \hat{N}'(\omega, +\frac{i\omega}{C_a}) = \tilde{N}(\omega, z=0) \times \left(\frac{1}{+\frac{i\omega}{C_a}+\alpha}\right) \times \left(1 + \frac{\alpha}{+\frac{i\omega}{C_a}+p_{DR}}\right) \\ \hat{N}'(\omega, -\frac{i\omega}{C_a}) = \tilde{N}(\omega, z=0) \times \left(\frac{1}{-\frac{i\omega}{C_a}+\alpha}\right) \times \left(1 + \frac{\alpha}{-\frac{i\omega}{C_a}+p_{DR}}\right) \end{cases} \tag{4.47}$$

On obtient donc :

$$\frac{\tilde{N}'(\omega,p) - \tilde{N}'(\omega,-p)}{\tilde{N}'(\omega,0)} = -\frac{\frac{2i\omega}{C_a}}{\left(\alpha^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2\right)} \times \left\{1 + \frac{\alpha \cdot (\alpha + p_{DR})}{\left(p_{DR}^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2\right)}\right\} \tag{4.48}$$

4.8.5 Calcul de la somme normalisée des valeurs des densités de plasma pris aux pôles $+p$ et $-p$

On évalue de même la somme de $\tilde{N}'(\omega, +\frac{i\omega}{C_a})$ et de $\tilde{N}'(\omega, -\frac{i\omega}{C_a})$, normalisée à $\tilde{N}'(\omega, 0)$, qui permet d'exprimer :

$$\frac{\hat{N}'(\omega,p) + \hat{N}'(\omega,-p)}{\hat{N}'(\omega,0)} = \frac{2\alpha}{\left(\alpha^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2\right)} \times \left\{1 + \frac{\alpha \times \left(p_{DR} - \frac{\omega^2}{\alpha \cdot C_a^2}\right)}{\left(p_{DR}^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2\right)}\right\} \tag{4.49}$$

Ces deux résultats (**(4.48)** et **(4.49)**) permettent la comparaison en amplitude de la contribution provenant du champ de Dember E_D et de la contribution issue du phénomène de déformation de potentiel, comparaison qui sera effectuée en terme de normes de déformation acoustique.

4.8.6 Rapport des champs de déformation $\tilde{\eta}_{eh}$ et $\tilde{\eta}_D$

Ainsi, en utilisant les expressions de $\tilde{\eta}_{eh}$ **(4.32)** et de $\tilde{\eta}_D$ **(4.30)**, pour le paramètre de Laplace complexe valant $p = \frac{i\omega}{C_a}$, on calculera le rapport entre les deux déformations

d'origine différentes, expression permettra ainsi de quantifier la prédominance relative d'un mécanisme sur l'autre.

$$\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D} = -\frac{N_0 \cdot d_{eh}}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right) \times p_{e_z} \times \left(\frac{D_e - D_h}{\mu_e + \mu_h}\right)} \times \frac{\left\{\hat{N}'(\omega, p) + \hat{N}'(\omega, -p)\right\}\Big|_{p=\frac{i\omega}{C_a}}}{\left\{\hat{N}'(\omega, p) - \hat{N}'(\omega, -p)\right\}\Big|_{p=\frac{i\omega}{C_a}}} \tag{4.50}$$

En utilisant les expressions de différence et de somme obtenues en **(4.49)** et en **(4.48)**, on trouve donc :

$$\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D} = \left(\frac{N_0 \cdot d_{eh}}{\alpha \cdot p_{e_z} \cdot \left(\frac{D_e - D_h}{\mu_e - \mu_h}\right)}\right) \times \left(\frac{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha) + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2 + \alpha^2}{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha)}\right) \tag{4.51}$$

Considérant un faisceau de pompe à 395 nm, on aura donc $\lambda^{pompe} = 395$ nm, ce qui correspond à une énergie $E_L^{pompe} = h\nu_L^{pompe} \approx 3,15\ eV$. D'après l'étude réalisée et présentée par [44], on trouve par *interpolation linéaire* entre 3,100 eV et 3,200 eV, pour la partie réelle de l'indice de réfraction.

Numériquement, ce coefficient d'absorption optique sera pris égal à $7,08 \times 10^7 m^{-1}$, ce qui correspond à une profondeur de pénétration optique de 14,1 nm. Par ailleurs, le coefficient de diffusion ambipolaire D_{eh} est choisi à environ $3cm^2.s^{-1}$ ($3 \times 10^{-4} m^2.s^{-1}$ d'après [49]). Le produit de D_{eh} par le coefficient d'absorption optique vaut donc :

$$\alpha \times D_{eh} \approx 21,3 \times 10^3 m.s^{-1} \tag{4.52}$$

La vitesse du son dans la direction [111] pour le GaAs valant $C_a(GaAs) = 5,4 \times 10^3 m.s^{-1}$, on aura donc :

$$\frac{\alpha \times D_{eh}}{C_a(GaAs)} \approx 4 \tag{4.53}$$

A partir de cette constatation **(4.53)**, et dans un but de simplification de l'expression de **(4.51)**, on peut réfléchir en termes de pulsations caractéristiques. La fréquence Brillouin typique des oscillations observées sur les relevés expérimentaux est de 50 GHz, ce qui donne une pulsation Brillouin valant :

$$\omega_B = 2\pi f_B = 2\pi \times 50 \times 10^9 Hz = 3,14 \times 10^{11} rad.s^{-1} \tag{4.54}$$

Calculons le temps caractéristique τ_R lié à cette pulsation :

$$\tau_R \approx \frac{1}{\omega_B} = 3,2ps \tag{4.55}$$

D'après [77], on a $B \approx 1,6 \times 10^8 cm^3.s^{-1}$, d'où la valeur de la densité N', exprimée en nombre d'entités par unité de volume ($ent.cm^{-3}$) :

$$\tau_R \cong \frac{1}{B \times N'} \quad \Rightarrow \quad N' \cong \frac{1}{B \times \tau_R} \approx 2 \times 10^{19} ent.cm^{-3} \tag{4.56}$$

Or, suite au résultat de ce calcul, on constate que le résultat $N' \approx 2 \times 10^{19} ent.cm^{-3}$ n'est pas une valeur de densité pouvant être atteinte pour les fluences des expériences réalisées (résultat non réaliste). A basse fluence, zone où prédomine η_{piezo}, on a :

$$\begin{cases} \omega \approx \omega_B \\ \omega_B > \omega_R \end{cases} \tag{4.57}$$

on peut simplifier l'expression de p_{DR}^2 :

$$p_{DR}^2 = \frac{1}{D_{eh}} \times (\omega_R - i\omega_B) \approx \frac{-i}{D_{eh}} \times \omega_B \tag{4.58}$$

En terme de normes, toujours dans le cas où $\frac{\omega_R}{\omega_B} << 1$, une estimation de p_{DR} (en utilisant la valeur de D_{eh} donné pour le GaAs intrinsèque par [49] : $D_{eh} \leq 12 cm^2.s^{-1}$) donne :

$$|p_D| \approx \sqrt{\frac{\omega_B}{D_{eh}}} = 1,6 \times 10^7 m^{-1} << \alpha \tag{4.59}$$

$|p_D|$ étant la norme de p_{DR} dans le cadre de l'approximation $\frac{\omega_R}{\omega_B} << 1$

On constate par ailleurs que :

$$\frac{|p_D|}{\alpha} << 1 \tag{4.60}$$

Cette inégalité permet encore de simplifier **(4.51)**.

4.8.7 Hypothèses supplémentaires de simplification de l'expression du rapport $\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D}$ et valeur numérique de ce rapport

On introduit les hypothèses supplémentaires suivantes :

$$\begin{cases} \omega \approx \omega_B \\ \omega_R << \omega_B \end{cases} \tag{4.61}$$

On effectue des simplifications de l'expression suivante :

$$\frac{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha) + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2 + \alpha^2}{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha)} \tag{4.62}$$

qui est présente dans **(4.51)**. En utilisant $p_{DR} \approx p_D$ (conséquence de $\omega_R << \omega_B$), et en utilisant $\frac{|p_D|}{\alpha} << 1$, conséquence de cette même inégalité $\omega_R << \omega_B$, on trouve :

$$\frac{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha) + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2 + \alpha^2}{p_{DR} \cdot (p_{DR} + \alpha)} \approx \frac{\alpha^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2}{p_{DR} \cdot \alpha} \tag{4.63}$$

Une évaluation numérique donne alors, en introduisant la longueur d'onde acoustique $\lambda_a = \frac{\omega}{C_a}$:

$$\frac{\alpha^2 + \left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2}{\alpha \cdot p_D} \underset{\omega_R \approx \omega_B}{\approx} \frac{\alpha^2 + \lambda_a^2}{\alpha \cdot p_D} \approx 7,4 \tag{4.64}$$

On en déduit donc le rapport (donné en **(4.51)**) $\left|\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D}\right|$ approximé et évalué en $\omega = \omega_B$. D'où :

$$\left|\frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D}\right| \approx \frac{d_{eh} \cdot N_0}{p_{e_z} \cdot \left(\frac{D_e - D_h}{\mu_e - \mu_h}\right) \cdot \alpha} \times \frac{\alpha^2 + \lambda_a^2}{\alpha \cdot p_D} \tag{4.65}$$

On pose par hypothèse, concernant les coefficients de diffusion ambipolaire et de mobilité de l'électron et du trou :

$$\begin{cases} D_e \geq D_h \\ \mu_e \geq \mu_h \end{cases} \tag{4.66}$$

On a par ailleurs la relation d'Einstein, où k_B est la constante de Boltzmann, T la température absolue et $|e| = 1,6 \times 10^{-19} C$ la charge électronique élémentaire :

$$\frac{D_e}{\mu_e} = \frac{k_B T}{|e|} \tag{4.67}$$

On rappelle par ailleurs :

$$d_{eh} = B \times \left|\frac{\partial E_g}{\partial P}\right| \tag{4.68}$$

où $B = 7,5 \times 10^{10} N.m^{-2}$ est le *bulk modulus* (exprimé en $N.m^{-2}$ ou Pa), et $\left|\frac{\partial E_g}{\partial P}\right| = 9 \times 10^{-11} eV.Pa^{-1}$, pour la transition en vallée de bande conduction Γ du GaAs.

On aura de même $p_{e_z}(< 111 >) = \frac{2}{\sqrt{3}} \times e_{14} \approx \left(\frac{2}{\sqrt{3}} \times 0,16\right) C.m^{-2}$ pour le GaAs dans la direction cristallographique [111]. Ces valeurs numériques permettent d'évaluer le premier terme de **(4.65)** :

$$\left(\frac{B \times \left|\frac{\partial E_g}{\partial P}\right| \times N_0}{\frac{2}{\sqrt{3}} \times e_{14} \cdot \left(\frac{D_e}{\mu_e}\right) \cdot \alpha}\right) \cong \left(\frac{B \times \left|\frac{\partial E_g}{\partial P}\right| \times N_0}{\frac{2}{\sqrt{3}} \times e_{14} \cdot \left(\frac{k_B T}{|e|}\right) \cdot \alpha}\right) \cong 3,2 \times 10^{-18} \times N_0 (ent.cm^{-3}) \tag{4.69}$$

où N_0 est introduit directement en $ent.cm^{-3}$ dans **(4.69)**.

Ceci implique, pour les échantillons de GaAs 111 dopé Zn de type P où $N_0(ent.cm^{-3}) = 3,2 \times 10^{17} ent.cm^{-3}$, une valeur de $9,9 \times 10^{-1} SI$, pour le rapport donné en **(4.69)** [12]. La valeur du rapport des contributions issues du champ de Dember et de déformation de potentiel vaut alors :

$$\left| \frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D} \right| \approx 7,3 \tag{4.70}$$

4.8.8 Bilan relatif à l'expression du rapport en norme de η_{eh} sur η_D ; constatations

En conclusion sur cette partie, qui nous a permis de comparer le poids relatif de η_{eh} par rapport à η_D, on peut donc dire :

- Le phénomène de déformation de potentiel posséde un poids de contribution plus important que celui du champ de Dember, en particulier pour le cas pris en compte, à savoir dans le cas d'une recombinaison de surface inexistante.

$$\left| \frac{\tilde{\eta}_{eh}}{\tilde{\eta}_D} \right| >> 1 \tag{4.71}$$

- Le champ de Dember E_D sature pour $N' \geq N_0(GaAs\ 111\ Zn\ P) = 3,1 \times 10^{17} ent.cm^{-3}$ alors que la déformation de potentiel ne sature pas. La contribution du champ de Dember et sa saturation ne permettent pas d'expliquer les effets observés dans le GaAs 111 dopé Zn de type p. La contribution dûe à la déformation de potentiel ne permet pas non plus d'expliquer les formes de courbes obtenues dans ce même GaAs 111 dopé Zn de type p. Il est alors nécessaire d'évaluer la contribution (effets) provenant du champ de reconstruction (E_{bif}) qui écrante dans le matériau.

Dans les paragraphes qui suivent, nous allons établir l'expression de la concentration en plasma électron-trou à la surface, et l'expression du champ E' dit polarisant près de la surface, afin d'exprimer η_{ec} et η_D.

12. Version du 29/10/2010.Marque d'authentification

4.8.9 Spectre des phonons acoustiques dans le cas du champ E_{bif} dominant

Equation de Poisson et champ électrique global

On étudie maintenant le cas où il existe un champ écrantant (dit de polarisation) E' tel que $E = E_{bif} + E'$ [13]. La figure **4.13** donne une idée de la distribution de champ de reconstruction.

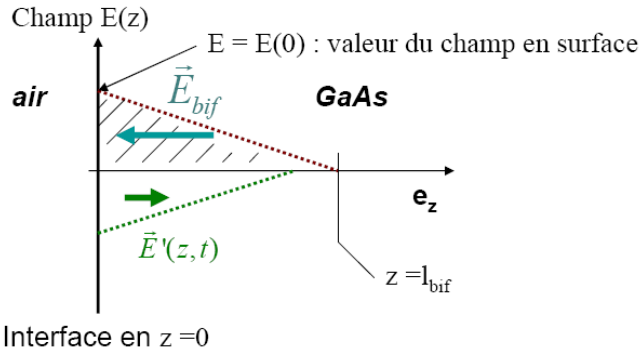


FIGURE 4.13 – Distribution linéaire du champ de reconstruction (*build in field*) et du champ de polarisation E'(z,t) écrantant

Ce champ E' est décrit en utilisant l'équation de Poisson, en l'absence de source électrostatique ni magnétique dans le matériau. On a alors :

$$\begin{cases} \Delta V' + \frac{\rho}{\varepsilon_r(GaAs)\cdot\varepsilon_0} = 0 \\ \vec{E'} = -\frac{dV'}{dz}\cdot\vec{e}_z \end{cases} \tag{4.72}$$

La densité volumique de charge ρ est définie par :

$$\rho(z,t) = |e| \cdot (N_e(z,t) - N_h(z,t)) \tag{4.73}$$

où $|e|$ est la charge élémentaire de l'électron, N_e [resp. N_h] la densité en charges électroniques [resp. en trous], $\epsilon_r(GaAs)$ la permittivité diélectrique du matériau GaAs aux fréquences acoustiques ($\epsilon_r(GaAs) = 12,9$) en régime quasi-statique, et ϵ_0 la permittivité diélectrique du vide. On utilisera dans la suite $\epsilon_r(GaAs) = \epsilon_r$ par souci de simplification.

L'équation de Poisson fournit :

$$\Delta V' + \frac{\rho}{\varepsilon_r\varepsilon_0} = 0 \;\Rightarrow\; -\frac{d}{dz}\left\{-\frac{dV'}{dz}\right\} = -\frac{\rho}{\varepsilon_r\varepsilon_0} \;\Rightarrow\; \frac{d}{dz}\{E'\} = -\frac{\rho}{\varepsilon_r\varepsilon_0} \tag{4.74}$$

d'où une relation reliant les densités de charges au champ E' :

13. E_{bif} (*built in field*) correspond toujours au champs de reconstruction

$$\frac{dE'}{dz} = -\frac{|e|}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \cdot (N_e - N_h) \tag{4.75}$$

Equations de populations relatives aux électrons et aux trous

Les équations spatio-temporelles régissant les densités de trous et d'électrons sont alors données par :

$$\begin{cases} \frac{\partial N_e}{\partial t} - \mu_e \cdot \frac{\partial}{\partial z}(N_e.E) - D_e \cdot \frac{\partial^2 N_e}{\partial z^2} + \frac{N_e}{\tau_{R_e}} = G_e(z,t) \\ \frac{\partial N_h}{\partial t} + \mu_h \cdot \frac{\partial}{\partial z}(N_h.E) - D_h \cdot \frac{\partial^2 N_h}{\partial z^2} + \frac{N_h}{\tau_{R_h}} = G_h(z,t) \end{cases} \tag{4.76}$$

où :

$$G_e(z,t) = G_h(z,t) = \frac{\alpha \cdot (1-R)}{h\nu_L} \times I_L \times f(t) \times e^{-\alpha z} \tag{4.77}$$

Les termes de recombinaison sont négligés :

$$\begin{cases} \frac{N_e}{\tau_{R_e}} \to 0 \\ \frac{N_h}{\tau_{R_h}} \to 0 \end{cases} \tag{4.78}$$

Le champ électrique global est ainsi donné par la somme de E_{bif} et du champ $E'(z)$:

$$E = E_{bif}(z) + E'(z) \tag{4.79}$$

avec E_{bif} champ électrique de reconstruction. Les équations spatio-temporelles décrivent la diffusion ambipolaire du plasma électron-trous, qui, pour une échelle de temps $\Delta t = \omega_B^{-1}$, existe sur une échelle spatiale plus étendue que la profondeur de pénétration optique ξ et que la longueur l_{bif} caractérisant la localisation du champ de reconstruction E_{bif}. On a alors :

$$|p_D| = \sqrt{\frac{\omega_B}{D_{eh}}} << \alpha = \xi^{-1} \tag{4.80}$$

avec $|p_D|^{-1} \leq l_{bif}$ (voir **(4.59)**)

Expression de E_{bif} et de $E'(z)$

En conséquence de l'hypothèse précédente, on a :

1. La concentration moyenne en plasma électron-trou dans le champ de reconstruction E_{bif} près de la surface (pour $z \leq l_{dif}$) est contrôlée par la valeur de $N'(t, z=0)$ en surface ou près de cette surface et donnée par la forme :

$$\tilde{N}(\omega;0) = \frac{N_t}{D_{eh} \cdot p_{DR} \cdot (\alpha + p_{DR})} \cdot \tilde{f}(\omega) \tag{4.81}$$

2. La diffusion et la dérive des porteurs de charges (sur une échelle $z \leq l_{bif}$) est si rapide (évaluation d'un régime supersonique) que la distribution des électrons et des trous est considérée comme figée de manière quasi-instantanée. Les distributions N_e etN_h peuvent être considérées comme statiques au temps t et valant $n(t, z = 0)$. Qualitativement, le profil de densité de la population des électrons est quasi homogène sur la zone de 0 à $z \approx l_{dif}$ (figure **4.14**) :

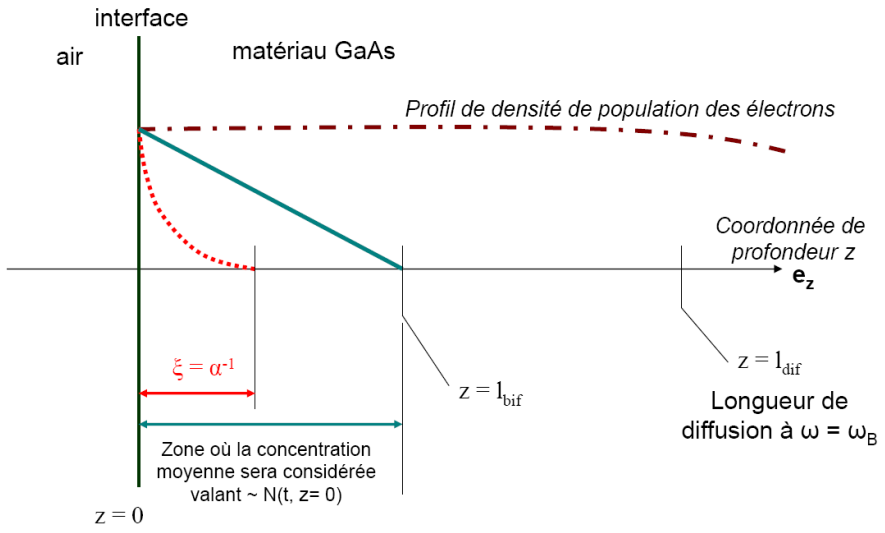


FIGURE 4.14 – Longueurs caractéristiques prises en compte ; longueur de diffusion l_{dif} ; longueur où existe le champ E_{bif} noté l_{bif} et ξ profondeur de pénétration optique

Le modèle proposé ici considère que l'on prendra la valeur $N' \cong N'(t, z = 0)$ sur une longueur caractéristique bien plus grande que la longueur associée à la diffusion l_{dif}, et bien plus grande que la longueur caractéristique associée au champ de reconstruction l_{bif} ; on aura donc une densité de porteurs de charge considérée comme constante sur la bande entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$. Un second modèle permet de prendre en compte la dynamique de séparation des charges, avant obtention par diffusion hypersonique d'un niveau de densité assimilé à $N'(t, z = 0)$. On aura dans ce modèle une évolution qui pourra être décrite par la figure **4.15**.

On considèrera de plus que, au delà d'un certain temps, on a $l_{dif} >> l_{bif} >> \xi = \alpha^{-1}$, en terme de distances caractéristiques.

Les quantités $\frac{\partial N_e}{\partial t}$ et $\frac{\partial N_h}{\partial t}$ variant peu en régime quasi-statique (faible gradient temporel), on aura donc

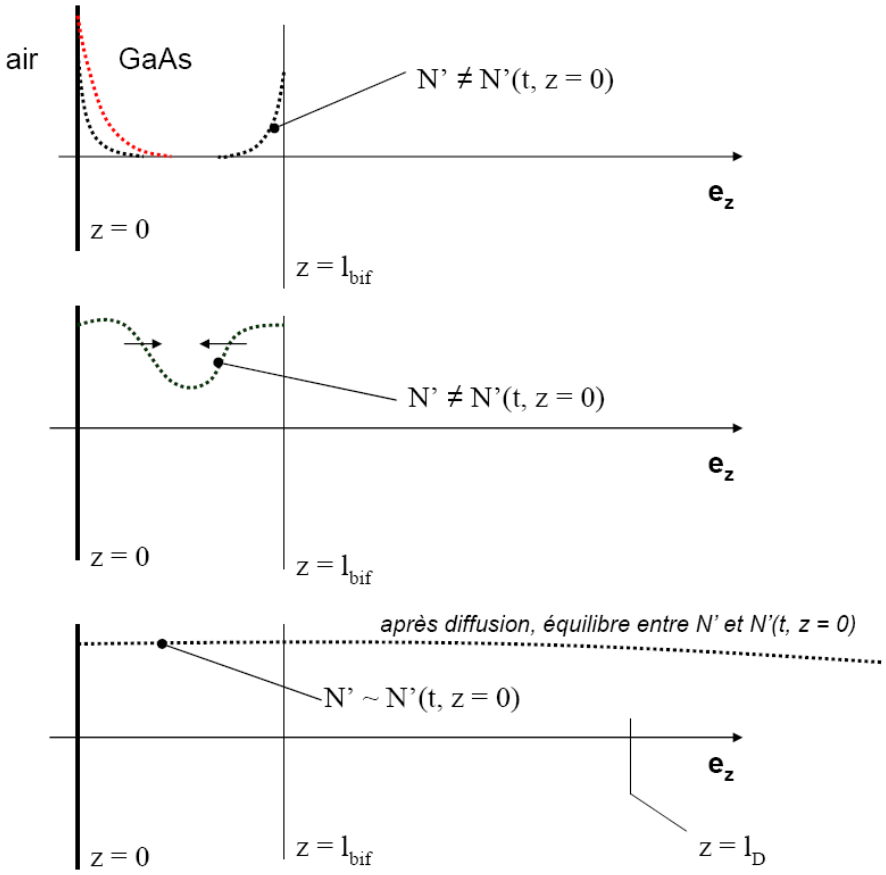


FIGURE 4.15 – Evolution dynamique avant création d'une densité assimilée comme constante entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$, ceci après diffusion

$$\begin{cases} -\mu_e \cdot \frac{\partial}{\partial z}(N_e.E) - D_e \cdot \frac{\partial^2 N_e}{\partial z^2} = 0 \\ +\mu_h \cdot \frac{\partial}{\partial z}(N_h.E) - D_h \cdot \frac{\partial^2 N_h}{\partial z^2} = 0 \end{cases} \tag{4.82}$$

Ces deux équations traduisent le fait qu'il existe un équilibre entre le flux lié à la dérive des porteurs de charges et le flux lié à la diffusion (condition dite statique). On a de plus la condition additionnelle :

$$\int_{z=0}^{z=l_{bif}} N_e(z,t) \cdot dz = \int_{z=0}^{z=l_{bif}} N_h(z,t) \cdot dz = N(z=0,t) \cdot l_{bif} \tag{4.83}$$

On réécrit **(4.82)** sous une forme compacte **(4.84)**, où l'on a D_i (avec $i = \{e; h\}$), coefficient de diffusion des électrons et des trous respectivement, et $\mu_i = \{\mu_e; \mu_h\}$ mobilités des électrons et des trous respectivement.

$$\mp\mu_i \cdot \frac{\partial}{\partial z}(N_i.E) - D_i \cdot \frac{\partial^2 N_i}{\partial z^2} = 0 \tag{4.84}$$

Par intégration selon la variable z de la forme compacte **(4.84)**, on trouve, en prenant une hypothèse d'absence de flux via et à la surface z = 0, ceci pour les entitées électron et trous :

$$\mp \mu_i \cdot N_i.E - D_i \cdot \frac{\partial N_i}{\partial z} = 0 \quad avec \quad i = \{e, h\} \tag{4.85}$$

et en introduisant la relation d'Einstein,

$$\frac{D_i}{\mu_i} = \frac{k_B T}{|e|} \tag{4.86}$$

on a donc, via une seconde intégration de variable z, et considérant μ_i et D_i constant par rapport à cette intégration :

$$[Ln\,|N_i(z)|]_{z=0}^{z} = \mp \frac{|e|}{k_B T} \times \int_{z=0}^{z} E(z'') \cdot dz'' \tag{4.87}$$

ce qui donne *in-fine*, pour une zone où z est situé entre 0 (surface) et l_{bif} :

$$N_i(z) = N_i(z=0) \cdot \exp\left\{ \mp \tfrac{|e|}{k_B T} \times \int_{z=0}^{z} E(z'') \cdot dz'' \right\} \tag{4.88}$$

Ainsi, il est possible via les équations **(4.84)** et **(4.88)** de décrire le champ de polarisation $E'(z)$ dans le matériau. Un premier modèle pour décrire la distribution spatiale du champ de reconstruction entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$ est un modèle linéaire ; si E(0) est la valeur du champ de reconstruction existant en surface, on aura la situation de la figure **4.16**.

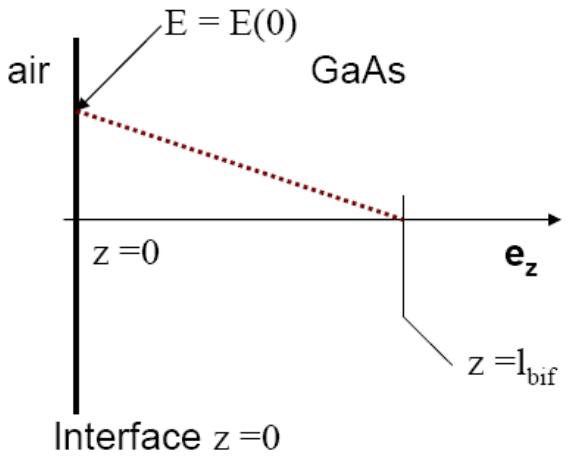


FIGURE 4.16 – Modélisation linéaire du profil spatial de champ de reconstruction E_{bif} entre la surface et $z = l_{bif}$

La forme linéaire du champ électrique de reconstruction E_{bif} sera ainsi donnée par :

$$E_{bif}(z) = -\frac{E(0)}{l_{bif}} \times z + E(0) \tag{4.89}$$

soit, en factorisant, avec $E(0) > 0$ pour les échantillons dopés de type p, on a :

$$E_{bif}(z) = E(0) \times \left(1 - \frac{z}{l_{bif}}\right) \tag{4.90}$$

Cette expression est utilisable pour intégrer les équations linéarisées, utilisant l'approximation la plus simple, c'est-à-dire en considérant un champ médian (figure **4.17**).

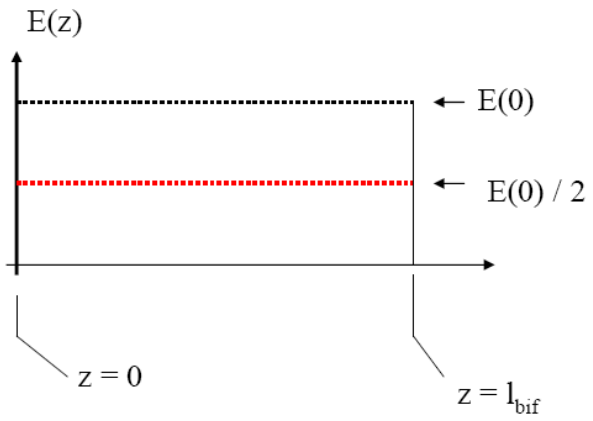


FIGURE 4.17 – Approximation du champ de reconstruction E_{bif}

Expression des niveaux de populations $N'_i(z,t)$ des trous et des électrons

Pour les niveaux de fluence d'excitation laser bas, on considérera que :

$$|E'| << |E_{bif}| \tag{4.91}$$

On négligera alors E' dans les solutions de **(4.84)** :

$$N'_i(z,t) = N'_i(z=0) \cdot e^{\mp \frac{|e|}{k_B T} \cdot E(0) \cdot z} \;\; avec \;\; i = \{e,h\} \tag{4.92}$$

En posant $p_E \equiv \frac{|e|}{k_B T} \times E(0)$ et en remplaçant cette expression dans **(4.92)**, on trouve :

$$N_i(z,t) = N_i(z=0) \cdot e^{\mp p_E \cdot z} \;\; avec \;\; i = \{e,h\} \tag{4.93}$$

Par ailleurs, en remplaçant **(4.93)** dans **(4.83)**, on trouve :

$$N'(t, z=0) \cdot l_{bif} = \int_{z=0}^{z=l_{bif}} N_i(z=0) \cdot e^{\mp p_E \cdot z} \cdot dz \tag{4.94}$$

soit,

$$N'(t, z=0) \cdot l_{bif} = N'_i(z=0) \cdot \int_{z=0}^{z=l_{bif}} e^{\mp p_E \cdot z} \cdot dz = N_i(z=0) \cdot \frac{1}{\mp p_E} \cdot \left[e^{\mp p_E \cdot z}\right]_{z=0}^{z=l_{bif}} \quad (4.95)$$

Considérant les bornes d'intégration, on trouve :

$$N(t, z=0) \cdot l_{bif} = N_i(z=0) \cdot \left(\frac{e^{\mp p_E \cdot l_{bif}} - 1}{\mp p_E}\right) \quad (4.96)$$

A partir de la théorie des remplissages des niveaux de Fermi dans les semi-conducteurs (*pinning*), on a :

$$\begin{cases} E^2(0) = \frac{2|e|N_0}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \cdot \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|}\right) \\ l_{bif}^2 = \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{2|e|N_0} \cdot \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|}\right) \end{cases} \quad (4.97)$$

où U_{bif} est le potentiel de reconstruction (*built in field*), et N_0 concentration en dopant dans le matériau. Le produit $E(0) \cdot l_{bif}$ se calcule comme suit :

$$E(0) \cdot l_{bif} = \sqrt{\frac{2\,|e|\,N_0}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \cdot \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|}\right)} \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{2\,|e|\,N_0} \cdot \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|}\right)} \quad (4.98)$$

On calcule le produit $p_E \times l_{bif}$ par :

$$p_E \times l_{bif} = \frac{|e| \cdot E(0)}{k_B T} \times l_{bif} = \frac{|e|}{k_B T} \times (E(0) \cdot l_{bif}) \quad (4.99)$$

d'où l'expression de ce produit, en utilisant **(4.98)**,

$$p_E \times l_{bif} = \frac{2\,|e|}{k_B T} \times \left(U_{bif} - \frac{k_B T}{|e|}\right) = 2 \cdot \left(\frac{|e| \cdot U_{bif}}{k_B T} - 1\right) = 2 \cdot \left(\frac{U_{bif}}{\frac{k_B T}{|e|}} - 1\right) \quad (4.100)$$

L'évaluation des rapports $\frac{k_B T}{|e|}$ et la valeur de U_{bif} permet d'affirmer que l'on a :

$$p_E \times l_{bif} >> 1 \quad (4.101)$$

Cette relation **(4.101)** permet d'introduire des simplifications dans la suite.

4.8.10 Distribution en densité des électrons et des trous

Considérant les relations compactes **(4.92)** et **(4.96)**, on trouve les deux relations relatives aux électrons et aux trous suivantes :

$$\begin{cases} N_e(z,t) = N_e(0,t) \cdot l_{bif} \cdot (-p_E) \cdot \frac{1}{\left(e^{-p_E \cdot l_{bif}} - 1\right)} \cdot e^{-p_E \cdot z} \\ N_h(z,t) = N_h(0,t) \cdot l_{bif} \cdot (+p_E) \cdot \frac{1}{\left(e^{+p_E \cdot l_{bif}} - 1\right)} \cdot e^{+p_E \cdot z} \end{cases} \tag{4.102}$$

En considérant l'approximation **(4.101)**, on obtient :

$$\begin{cases} N_e(z,t) \approx N_e(0,t) \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot e^{-p_E \cdot z} \\ N_h(z,t) \approx N_h(0,t) \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot e^{-p_E \cdot (l_{bif} - z)} \end{cases} \tag{4.103}$$

4.8.11 Distribution spatiale de densité des électrons et des trous en fonction de la profondeur dans le matériau

Ces expressions, dans le cadre de l'approximation **(4.101)**, montrent que la localisation spatiale des électrons et des trous se fait selon deux coordonnées particulières ($z = 0$; $z = l_{bif}$). La distribution des électrons est gouvernée par $e^{-p_E \cdot z}$, qui est équivalent à $e^{-\frac{k_B T}{|e|} \cdot E(0) \cdot z}$; ainsi si E(0) est fort, la distribution des électrons est fortement piquée sur z = 0. Ce sera aussi le cas si la température T augmente. La distribution des trous sera alors centrée sur $z = l_{bif}$, ce qu'illustre la figure **4.18**.

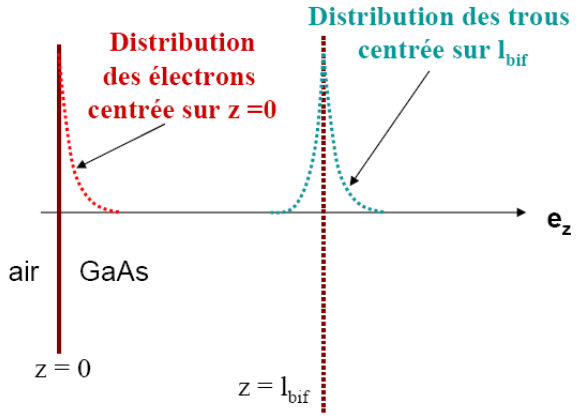


FIGURE 4.18 – Distribution spatiale des électrons et des trous dans la tranche de profondeur entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$

Les expressions des densités de **(4.103)** permettent de calculer la différence $N_e(z,t) - N_h(z,t)$:

$$\begin{aligned} &N_e(z,t) - N_h(z,t) \approx ... \\ &... \approx \left\{N_e(0,t) \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot e^{-p_E \cdot z}\right\} - \left\{N_h(0,t) \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot e^{+p_E \cdot z} \cdot e^{-p_E \cdot l_{bif}}\right\} \end{aligned} \tag{4.104}$$

En utilisant $N_e(z=0,t) = N_h(z=0,t) = N(z=0,t) \ \ \forall t$, on trouve, en utilisant **(4.104)** :

$$N_e(z,t) - N_h(z,t) \approx N(z=0,t) \times l_{bif} \times p_E \times \left(e^{-p_E z} - e^{-p_E \cdot (z - l_{bif})}\right) \tag{4.105}$$

4.8.12 Expression du champ écrantant de polarisation $E'(z,t)$

En utilisant **(4.105)** dans **(4.75)**, on trouve :

$$\begin{array}{l} \frac{dE'}{dz}(z,t) = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot \{N_e(z,t) - N_h(z,t)\} = ... \\ \quad ... = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot N(z=0,t) \cdot \left\{e^{-p_E \cdot z} - e^{+p_E \cdot z} \cdot e^{-p_E \cdot l_{bif}}\right\} \end{array} \tag{4.106}$$

Par intégration de variable de profondeur z dans l'épaisseur du matériau, on trouve :

$$\int_0^z dE'(z,t) = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot N(z=0,t) \cdot \int_0^z \left(e^{-p_E \cdot z} - e^{+p_E \cdot z} \cdot e^{-p_E \cdot l_{bif}}\right) \cdot dz \tag{4.107}$$

On considèrera que $E'(z=0,t) = 0$ en surface.

$$E'(z,t) = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot l_{bif} \cdot p_E \cdot N(z=0,t) \cdot \left\{ \left[\frac{e^{-p_E \cdot z}}{-p_E}\right]_0^z - \left[e^{-p_E \cdot l_{bif}} \cdot \frac{e^{+p_E \cdot z}}{+p_E}\right]_0^z \right\} \tag{4.108}$$

En développant la parenthèse de **(4.108)**, on a :

$$\left\{ -\frac{1}{p_E} \times \left(e^{-p_E \cdot z} - 1\right) - \frac{1}{p_E} \times e^{-p_E \cdot l_{bif}} \times \left(e^{+p_E \cdot z} - 1\right) \right\} \tag{4.109}$$

ce qui entraine donc, pour un secteur entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$:

$$E'(z,t) = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot N(t, z=0).p_E \cdot l_{bif} \cdot \left\{ \frac{(e^{-p_E \cdot z} - 1)}{-p_E} - \frac{e^{-p_E \cdot l_{bif}} \times (e^{+p_E \cdot z} - 1)}{+p_E} \right\} \tag{4.110}$$

En utilisant la relation **(4.101)** permettant d'approximer **(4.110)**, on trouve une forme de champs E'(z,t) constante entre $z = 0$ et $z = l_{bif}$. Cette situation est illustrée par la figure **4.19**.

A des fluences de pompe laser faibles, le plasma possède un comportement électrostatique proche de celle d'un condensateur (système capacitif à polarisation selon les armatures d'un condensateur). On introduit alors une fonction "marche" définie par :

$$\Theta(z) = \left\{ 0 \ \ si \ \ z \notin [0, l_{bif}] \ , \ 1 \ \ si \ \ z \in [0, l_{bif}] \right\} \tag{4.111}$$

d'où :

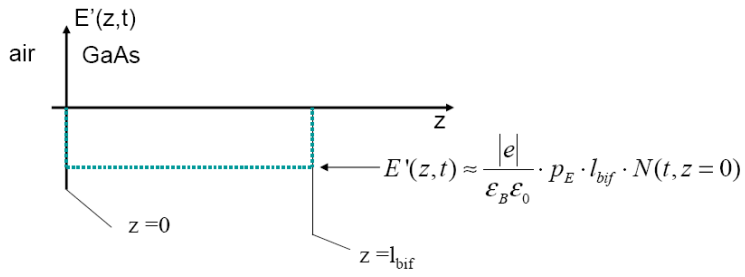


FIGURE 4.19 – Champ électrique quasi-constant dans l'approximation $p_E \times l_{bif} >> 1$

$$E'(z,t) = -\frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot N(t, z=0) \cdot l_{bif} \cdot \{\Theta(z) - \Theta(z - l_{bif})\} \tag{4.112}$$

On évalue alors la transformée de Laplace $\hat{E}'(\omega, p)$ de paramètre complexe p du champ électrique $E'(z,t)$ défini par l'expression spatio-temporelle **(4.112)**, qui se transforme alors en :

$$\hat{E}'(\omega, p) = \frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \times l_{bif} \times \frac{\hat{N}(\omega, z=0)}{p} \times \left(e^{-p \cdot l_{bif}} - 1\right) \tag{4.113}$$

4.8.13 Expression du champ de déformation $\tilde{\eta}_{ec}$

En utilisant **(4.19)**, et en appliquant cette forme au champ d'écrantage, on a :

$$\hat{\eta}_{ec}(\omega, p) = -\frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \times \{\hat{\sigma}_{ec}(\omega, p) - \hat{\sigma}_{ec}(\omega, -p)\} \tag{4.114}$$

où σ_{ec} est la contrainte liée au champ d'écrantage E'. Cette contrainte est définie par :

$$\hat{\sigma}_{ec}(z,t) = p_{e_z} \cdot \hat{E}'(\omega, p) \tag{4.115}$$

où p_{e_z} est le module piézo-électrique du matériau.

En utilisant l'expression du champ écrantant (champ de polarisation) donnée par **(4.113)**, on trouve :

$$\hat{\eta}_{ec}(\omega, p) = -\frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \times p_{e_z} \times \left\{\hat{E}_{ec}(\omega, p) - \hat{E}_{ec}(\omega, -p)\right\}\Big|_{p=\frac{i\omega}{C_a}} \tag{4.116}$$

ce qui donne donc :

$$\hat{\eta}_{ec}(\omega, p) = \frac{i\omega}{2\rho C_a^3} \cdot p_{e_z} \cdot \frac{|e|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \cdot \frac{l_{bif}}{p} \cdot \tilde{N}(\omega, p=0) \cdot \left\{(1 - e^{-p \cdot l_{bif}}) + (1 - e^{+p \cdot l_{bif}})\right\}\Big|_{p=\frac{i\omega}{C_a}} \tag{4.117}$$

En utilisant des formules de trigonométrie, on trouve que :

$$\hat{\eta}_{ec}(\omega,p)=\frac{i\omega}{2\rho C_a^3}\cdot p_{e_z}\cdot\frac{4\left|e\right|}{\varepsilon_0\varepsilon_r}\cdot\frac{l_{bif}}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right)}\cdot\tilde{N}(\omega,p=0)\cdot Sin^2\left(\frac{1}{2}\cdot\frac{\omega\cdot l_{bif}}{C_a}\right) \tag{4.118}$$

ce qui donne en rassemblant les termes,

$$\hat{\eta}_{ec}(\omega,p)=\frac{i\omega}{2\rho C_a^3}\cdot\frac{4|e|\cdot l_{bif}\cdot p_{e_z}}{\varepsilon_0\varepsilon_r}\cdot\frac{Sin^2\left(\frac{1}{2}\cdot\frac{\omega\cdot l_{dif}}{C_a}\right)}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right)}\cdot\tilde{N}(\omega,p=0) \tag{4.119}$$

4.8.14 Comparaison en normes des contributions $\tilde{\eta}_{ec}$ et $\tilde{\eta}_D$

On effectue maintenant une comparaison entre la contribution au champ de déformation provenant du champ de Dember ($\tilde{\eta}_D$) et la contribution provenant du champ d'écrantage ($\tilde{\eta}_{ec}$). Pour cela, on utilisera **(4.32)**, formule qui laisse apparaitre l'expression d'une somme **(4.49)**.

L'expression du champ de déformation relatif à la contribution du champ de Dember E_D est alors donné par :

$$\tilde{\eta}_D\cong\frac{(-i\omega)}{2\rho C_a^3}\times\frac{k_BT}{|e|}\times\frac{p_{e_z}}{N_0}\times\frac{2\alpha^2p_D}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right)\left(\left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2+\alpha^2\right)}\times\hat{N}'(\omega,0) \tag{4.120}$$

(4.119) et **(4.120)** permettent l'évaluation du rapport des deux déformations (d'origine différente : champ de Dember et du champs $E'(z,t)$ écrantant :

$$\left|\frac{\tilde{\eta}_{ec}}{\tilde{\eta}_D}\right|\cong\frac{\frac{i\omega}{2\rho C_a^3}\times\frac{4|e|\cdot l_{bif}\cdot p_{e_z}}{\varepsilon_0\varepsilon_r}\times\frac{Sin^2\left(\frac{\omega\cdot l_{bif}}{2C_a}\right)}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right)}\times\tilde{N}'(\omega,0)}{\frac{(-i\omega)}{2\rho C_a^3}\times\frac{k_BT}{|e|}\times\frac{p_{e_z}}{N_0}\times\frac{2\alpha^2p_D}{\left(\frac{i\omega}{C_a}\right)\left(\left(\frac{\omega}{C_a}\right)^2+\alpha^2\right)}\times\tilde{N}'(\omega,0)} \tag{4.121}$$

qui donne en définitive,

$$\left|\frac{\tilde{\eta}_{ec}}{\tilde{\eta}_D}\right|\cong-\frac{2\left|e\right|^2\cdot l_{bif}\cdot N_0}{\varepsilon_0\varepsilon_r\cdot k_BT\cdot p_D}\times\left(\left(\frac{\omega}{\alpha C_a}\right)^2+1\right)\times Sin^2\left(\frac{\omega\cdot l_{bif}}{2C_a}\right) \tag{4.122}$$

Et en considérant l'approximation relative au potentiel U_{bif}, on trouve :

$$U_{bif}>>k_BT \tag{4.123}$$

on trouve que :

$$l_{bif}=\sqrt{\frac{2\varepsilon_0\varepsilon_r}{|e|\cdot N_0}\times\left(U_{bif}-\frac{k_BT}{|e|}\right)}\approx\sqrt{\frac{2\varepsilon_0\varepsilon_r}{|e|\cdot N_0}\times U_{bif}} \tag{4.124}$$

et donc :

$$E(0) \approx \frac{|e| \cdot N_0 \cdot l_{bif}}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \tag{4.125}$$

ce qui induit donc (en rappelant que $p_E = \frac{|e|}{k_B T} \cdot E(0)$), considérant la précédente expression **(4.122)** :

$$\left|\frac{\tilde{\eta}_{ec}}{\tilde{\eta}_D}\right| \cong -2 \cdot \frac{p_E}{p_D} \times \left(\left(\frac{\omega}{\alpha C_a}\right)^2 + 1\right) \times Sin^2\left(\frac{\omega \cdot l_{bif}}{2C_a}\right) \tag{4.126}$$

Evaluons maintenant les différents ordres de grandeurs des différentes quantitées présentes dans cette expression.

Considérant $\omega_B = 2\pi \times 50 \times 10^9 rad.s^{-1}$, et $D_{eh} = 12 \times 10^{-4} m^2 \cdot s^{-1}$, on calcule donc :

$$p_D = \sqrt{\frac{\omega_B}{D_{eh}}} = 1,62 \times 10^7 m^{-1} \tag{4.127}$$

Par ailleurs, on a :

$$\left(\frac{\omega_B}{\alpha C_a}\right)^2 = 6,71 \times 10^{-1} \tag{4.128}$$

et

$$\left(\frac{\omega_B}{C_a}\right) = 5,82 \times 10^7 m^{-1} \tag{4.129}$$

On évalue ensuite l_{bif} avec la formule **(4.124)**, et pour le cas où la densité de dopants est donné par N_0 et vaut $N_0(GaAs\ 111\ /Zn/p) = 3,1 \times 10^{17} ent.cm^{-3}$ pour le matériau GaAs de direction cristallographique 111, dopé Zn de type p. On calcule dès lors (en $\omega = \omega_B$), l'argument contenu dans la fonction sinus :

$$sin^2\left(\frac{\omega \cdot l_{bif}}{2C_a}\right) \approx 1 \tag{4.130}$$

Ainsi, en conséquence de **(4.130)** et **(4.126)**, il ressort clairement que :

$$|\tilde{\eta}_{ec}| >> |\tilde{\eta}_D| \tag{4.131}$$

et donc, considérant **(4.71)**, par comparaison avec la contribution provenant de la déformation de potentiel, que :

$$|\tilde{\eta}_{ec}| >> |\tilde{\eta}_{eh}| \tag{4.132}$$

Le phénomène de saturation observable pour les échantillons de GaAs dopé Zn de type p et de direction cristallographique 111 est dû à la saturation du phénomène d'écrantage. Le seuil de saturation pourra être évalué par la donnée de $N'(t,0)$ et l'utilisation d'un modèle non linéaire.

4.9 Bilan du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons réalisé des expériences de photogénération et photodétection de phonons acoustiques dans le GaAs d'orientation [111]. Selon cette orientation cristallographique, le semiconducteur GaAs est piézoélectrique. Nous avons étudié comment évoluait l'amplitude des phonons photogénérés en fonction de la puissance optique d'excitation. Nous avons clairement montré qu'en régime de forte excitation, l'amplitude des modes acoustiques (modes centrés sur la fréquence Brillouin proche de 50 GHz) variait linéairement en fonction de la densité de porteurs photo-excités en accord avec le mécanisme de déformation de potentiel. En revanche, dans le régime de basse excitation, une forte non-linéarité sur la dépendance de l'amplitude en fonction de la densité de porteurs a été observée. Un fort effet du dopage a été constaté sur l'ampleur de cette non-linéarité ainsi qu'un effet d'orientation cristallographique [111]/[-1-1-1], témoignant avec une bonne confiance de l'origine piézoélectrique de ce phénomène. Un calcul théorique est venu conforter ce résultat en confirmant par ailleurs que le champ de reconstruction de surface avait un rôle primordial par rapport au champ électrique de Dember. Les résultats obtenus viennent renforcer très significativement certains travaux de la littérature suggérant cet effet piézoélectrique [88]. L'étude réalisée ici ouvre des voies prometteuses, car nous avons aussi pu montrer que ce mécanisme était très efficace devant le mécanisme de déformation de potentiel non seulement pour générer des ondes longitudinales mais aussi tranverses (dans le cas du cristal de GaAs orienté selon [411]). Il restera, bien sûr, à étendre ces études à d'autres modes acoustiques, et notamment tenter de voir s'il existe des composantes hautes fréquences. La structure complexe de la zone de déplétion laisse entrevoir que le travail sera encore important à réaliser, mais la richesse de la dynamique des porteurs photoexcités plongés dans un champ électrique offrira très certainement d'autres phénomènes intéressants.

Chapitre 5

Conclusion générale et perspectives

"La lumière résultait des vibrations d'un fluide universel extrêmement subtil, agité par les mouvements rapides des particules des corps lumineux, de la même façon que l'air est ébranlé par les vibrations des corps sonores "

Fresnel, Instit. Mém. scienc. 1821 et 1822, t. V, p. 340

Dans ce travail de thèse, nous avons étudié les processus de photogénération et photodétection de phonons acoustiques cohérents par spectroscopie pompe-sonde femtoseconde dans le semiconducteur piézoélectrique GaAs. Transformer l'énergie lumineuse en énergie mécanique repose sur une bonne compréhension des couplages *photon-électron* et *électron-phonon*. Les techniques pompe-sonde employées étant des techniques dites *tout optique*, la compréhension des mécanismes de détection s'est avérée tout aussi essentielle. Le travail réalisé a permis de mettre en lumière le rôle tout particulier de deux types de couplages électrons-phonons à savoir le couplage dit par déformation de potentiel (ou pression électronique) et par effet piézoélectrique inverse.

Pour la gamme d'excitation optique proche du gap direct (Eg=1.43eV, vallée Γ), nous avons montré tout d'abord que le mécanisme de déformation de potentiel était bien le mécanisme prédominant pour la photogénération de phonons acoustiques cohérents pour le GaAs d'orientation cristallographique [100]. En supprimant tout processus intrabande responsable du chauffage du cristal (effet thermoélastique), il est apparu en effet possible, par une simple modification de la population électronique au niveau du gap direct de créer une contrainte suffisante pour faire naître une onde acoustique (44 GHz). Une confrontation des résultats expérimentaux à une étude théorique a par ailleurs montré que la compréhension du spectre des phonons observés était possible grâce à une modélisation des processus de génération et détection. Ces expériences ont été réalisées au travers de

l'étude de la seule composante à 44GHz qui correspond au signal communément appelé signal Brillouin.

Dans un second temps, et afin d'étudier les phonons plus haute fréquence, grâce à un système composé d'une ligne à retard transparente de ZnO déposée sur une substart de GaAs [100], nous avons mené des expériences « temps de vol », où les phonons photo-générés dans le GaAs, se propageaient dans ZnO et au retour étaient à nouveau détectés dans GaAs. Cette configuration permet d'étudier un spectre de phonons plus large que la simple géométrie dite « Brillouin » vue précédemment. Nous avons pu mettre en évidence, par le biais de ces expériences qu'un choix astucieux de la longueur d'onde du faisceau sonde permettait de détecter des phonons haute fréquence ($100 - 200$ GHz), alors même que le faisceau pompe excitateur était très pénétrant, avec une composante spectrale majeure centrée sur 7 GHz. Ce résultat est tout à fait original et n'avait pas été encore rapporté dans la littérature. Nous avons montré qu'un faisceau sonde (400 nm) pénétrant très peu dans le substrat de GaAs permettait en effet de disposer d'une fonction de transfert de détection dite large bande.

Dans la dernière partie de ces travaux, nous avons étudié les processus de piézogénération photo-induite dans le GaAs orienté selon [111] qui est une direction piézoactive. Différents semiconducteurs possédant des niveaux de dopages variables ont été étudiés. Nous avons étudié un seul mode longitudinal acoustique centré sur 45GHz (mode Brillouin). Nous avons étudié l'évolution de l'amplitude de cette composante spectrale en fonction de la puissance du faisceau pompe excitateur. Il est apparu, pour certains échantillons, que pour les domaines dits de haute fluence, une dépendance linéaire apparaissait tout à fait en accord avec un processus de génération de phonons par le mécanisme de déformation de potentiel. En effet, dans ce mécanisme, la contrainte est proportionnelle à la densité de porteurs électron-trous photo-induits. En revanche, une forte non-linéarité a été observée à basse fluence, alors même que pour ce même régime d'excitation, une linéarité était toujours observée pour le GaAs [100]. Pour d'autres échantillons (dopage p), il a même été observé que, sur tout le domaine d'étude, que seul un comportement non-linéaire existe. Un fort effet de saturation est apparu dans ces derniers cas. Aussi, cette forte non-linéarité associée à un effet de saturation, absolument absente dans le GaAs [100], témoigne très clairement d'une signature de piézogénération. L'effet du dopage, qui conditionne directement les propriétés de la zone de dépletion de surface (valeur du champ de reconstruction, extension de la zone de dépletion, ..) est un élément fort de notre démonstration. Par extrapolation linéaire, nous avons observé que l'amplitude du signal était jusqu'à 5 fois plus importante que celle provenant de la déformation de potentiel. Un calcul théorique reposant sur une description complète du champ de déformation acoustique photoinduit a été

mené ensuite, où la contribution des différents champs électriques possibles ainsi que la dynamique des porteurs écrantant ce champ ont été étudiées. Nous en avons conclu que le champ électrique moteur était celui de reconstruction de surface très probablement lié aux défauts de surfaces (pinning). Ce champ est bien connu dans le GaAs et les valeurs que nous avons pu estimer aux travers de l'analyse de ces expériences sont en bon accord avec la littérature. Ces résultats ont été aussi confirmés et étendus à une symétrie cristalline plus basse puisqu'une étude réalisée sur un échantillon d'orientation [411] a permis en effet d'illustrer la piézogénération photoinduite à la fois de modes longitudinaux et transverses. Ce dernier résultat avait été observé une fois dans la littérature, mais la nature du couplage piézoélectrique n'avait cependant pas été établi. Notre étude systématique, et reposant sur une comparaison des résultats obtenus pour des symétries cristallines non-piézo [100] et piézoactives [111] et [411], conforte très raisonnablement le rôle majeur de la piézogénération.

L'ensemble de ces travaux de thèse ouvre donc quelques perspectives tout à fait prometteuses. Nous avons montré de façon claire que l'effet piézoélectrique était un mécanisme juqu'à 5 fois plus efficace que celui émanant de la déformation de potentiel. Actuellement, la photogénération de phonon acoustique n'a été réalisée qu'au travers de l'écrantage d'un champ électrique interne préexistant et seule la composante à 45 GHz a été étudiée. Il sera donc intéressant et important d'explorer à la fois cet effet par le biais d'un champ électrique externe appliqué et aussi de décrire plus en détails le contenu du spectre de phonons en effectuant des expériences à des longueurs d'onde de sonde différentes et dans des configurations type « temps de vol » afin de détecter des impulsions plus fautes fréquences. Par ailleurs, à la lumière de ces nouveaux résultats, il sera aussi intéressant de mener, avec cette même stratégie, des études dans les super-réseaux piézoélectriques pour dégager plus clairement les différents régimes où la déformation de potentiel et l'effet piézoélectrique dominent.

Chapitre 6

Annexes

"La couleur provoque une vibration psychique."

Wassily Kandinsky, Du spirituel dans l'art et dans la peinture en particulier, 1911

6.1 Définitions analogues du coefficient photo élastique

Toutes les définitions de coefficient photo-élastique [95] présentées dans ce qui suit sont équivalentes entre elles :

– En utilisant le tenseur élasto optique P_{ijkl}, on aura :

$$\Delta\left(\varepsilon^{-1}\right) = P_{ijkl} \times \eta_{kl} \tag{6.1}$$

– En utilisant le tenseur photo élastique k_{ijkl}, on aura :

$$\Delta\left(\varepsilon_{ij}\right) = k_{ijkl} \times \eta_{kl} \tag{6.2}$$

– En utilisant le tenseur piézo optique q_{ijkl}, on aura :

$$\Delta\left(\varepsilon^{-1}\right) = q_{ijkl} \times \sigma_{kl} \tag{6.3}$$

– En utilisant le tenseur piézo-diélectrique d_{ijkl}, on aura :

$$\Delta\left(\varepsilon_{ij}\right) = d_{ijkl} \times \sigma_{kl} \tag{6.4}$$

6.2 Temps caractéristiques de relaxation

Cette figure est tirée de [42].

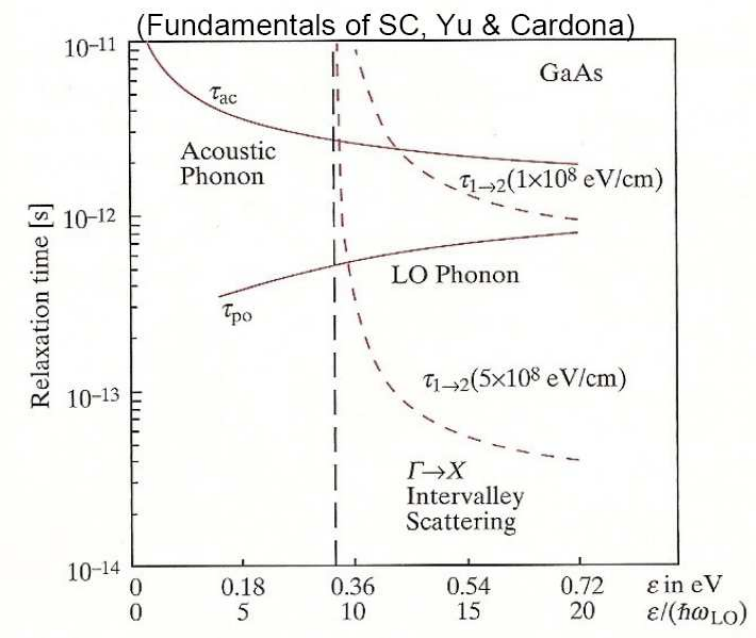


FIGURE 6.1 – Temps de relaxation caractéristiques en fonction de l'énergie ϵ(eV) ; données tirées de [42]

6.3 Transformation de repère par rotation des axes cristallographiques principaux

On présente ici dans ce point d'annexe la transformation mathèmatique permmettant de passer d'un repère où l'axe de direction cristallographique principale $< 001 >$ correspond à l'axe de profondeur, à un repère où cette axe de profondeur coïncide avec la direction cristallographique secondaire $< 111 >$. La figure **(6.2)** décrit ce changement de repère.

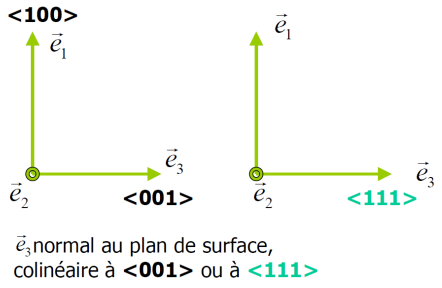


FIGURE 6.2 – Description du changement de repère

Le passage à un repère où $\vec{e}_3$ est colinéaire à la direction crisatllographique <111> (c'est-à-dire que le plan de surface est alors le plan [111]) transforme les composantes du tenseur e_{ijk} en $e_{i'j'k'}$ selon :

$$e_{ijk} = \frac{\partial x_{i'}}{\partial x_i}\frac{\partial x_{j'}}{\partial x_j}\frac{\partial x_{k'}}{\partial x_k} \times e_{i'j'k'} \tag{6.5}$$

Le nouveau système de coordonnées est celui où $\vec{e}_3$ et $<111>$ sont deux directions colinéaires. Or $e_{i'j'k'}$ est connu pour le cas où les directions $\vec{e}_3$ et $<100>$ sont colinéaires entre elles. La notation $e_{i'j'k'}$ concerne les anciennes composantes. La relation entre les anciennes composantes $x_{m'}$ et les nouvelles composantes x_m est donnée par :

$$\begin{cases} z' = \frac{1}{\sqrt{3}}z - \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}}x \\ x' = \frac{1}{\sqrt{3}}z + \frac{1}{\sqrt{6}}x - \frac{1}{\sqrt{2}}y \\ y' = \frac{1}{\sqrt{3}}z + \frac{1}{\sqrt{6}}x + \frac{1}{\sqrt{2}}y \end{cases} \tag{6.6}$$

ce qui induit pour x_3,

$$e_{333} = \frac{\partial x_{i'}}{\partial x_3}\frac{\partial x_{j'}}{\partial x_3}\frac{\partial x_{k'}}{\partial x_3} \times e_{i'j'k'} \tag{6.7}$$

Les composantes non nulles sont :

$$e_{i'j'k'} = \left\{ e_{123} = e_{132} = e_{14}\ ;\ e_{213} = e_{231} = e_{23} = e_{14}\ ;\ e_{312} = e_{321} = e_{36} = e_{14} \right\} \tag{6.8}$$

D'où,

$$\begin{aligned} e_{333} = &\left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right)\left(\frac{\partial y'}{\partial x_3}\frac{\partial x'}{\partial x_3} + \frac{\partial x'}{\partial x_3}\frac{\partial y'}{\partial x_3}\right)\cdot e_{333} + \left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right)\left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\frac{\partial z'}{\partial x_3} + \frac{\partial z'}{\partial x_3}\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right)\cdot e_{231} + ... \\ &... + \left(\frac{\partial z'}{\partial x_3}\right)\left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\frac{\partial y'}{\partial x_3} + \frac{\partial y'}{\partial x_3}\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right)\cdot e_{321} \end{aligned} \tag{6.9}$$

et en utilisant $e_{132} = e_{231} = e_{321} = e_{14}$, on trouve :

$$e_{333} = 6 \cdot \left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right)\left(\frac{\partial y'}{\partial x_3}\right)\left(\frac{\partial z'}{\partial x_3}\right)\cdot e_{14} \tag{6.10}$$

Par utilisation de **(6.6)**, on a[1] :

$$\left(\frac{\partial x'}{\partial x_3}\right) = \left(\frac{\partial x'}{\partial z}\right) = \frac{1}{\sqrt{3}} = \left(\frac{\partial y'}{\partial x_3}\right) \equiv \left(\frac{\partial z'}{\partial x_3}\right) \tag{6.11}$$

d'où :

$$e_{333} = 6 \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{3}}\right)^3 \cdot e_{14} \tag{6.12}$$

ceci induit donc :

1. en utilisant la correspondance $z = x_3$

$$e_{333} = \frac{2}{\sqrt{3}} e_{14} \neq 0 \tag{6.13}$$

Des calculs similaires relatifs aux deux autres composantes e_{3j3} donnent :

$$e_{313} = e_{323} = 0 \tag{6.14}$$

Dans ces deux cas, la génération des ondes de cisaillement est alors impossible.

6.4 Conditions de verrouillages de mode du MIRA 900

6.4.1 Condition de phase des ondes

Il y a nécessité d'une interférence positive de l'onde lumineuse avec elle même après un aller retour $(2L)$ dans la cavité où se situe le milieu amplificateur. Si q est le mode $(q \in \aleph)$, Φ un retard de phase valant $2q\pi$, L est la longueur de la cavité rectiligne, n l'indice du milieu et c la célérité de la lumière, on a alors la relation qui définie υ_q, valeur de la fréquence disponible dans la cavité laser et correspondant au mode q :

$$\upsilon_q = q \times \left(\frac{c}{2nL}\right) \tag{6.15}$$

6.4.2 Sélection des modes cavités

Le laser sans verrouillage de mode oscille sur tous les modes de la cavité pour lesquels le gain est supérieur aux pertes cavités (régime multimodes à phase aléatoire). Le titane dopé saphir, milieu actif utlisé dans le MIRA 900 répond à ce critère car c'est un milieu amplificateur à gain optique élevé. Si on définit υ_0, fréquence du mode central, $\Delta\upsilon$ la différence de fréquence entre 2 modes consécutifs, φ_q la phase du mode q, $A(t)$ l'amplitude complexe de l'onde, et $E(t)$ le champ électrique, alors le champ électrique total de l'onde lumineuse s'écrit (pour l'ensemble des modes Q) dans la cavité laser :

$$\begin{aligned} E(t) &= \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi(\nu_0 + q.\Delta\upsilon).t + \varphi_q)} = \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t + \varphi_q)} = \\ &= e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t + \varphi_q)} = e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times A(t) \end{aligned} \tag{6.16}$$

Le laser oscille donc sur tous les modes de la cavité pour lesquels le gain est supérieur aux pertes cavités ; il s'agit alors d'un régime multimode à phase aléatoire. La mise en phase des modes de la cavité se fait en fixant une phase référence :

$$\varphi_q(t) = 0 \ \forall t \ \forall q \tag{6.17}$$

On parle alors de laser à verrouillage de mode par fixation de la phase relative φ_q(t) des nombreux modes dans la cavité, et le champ électrique de l'onde lumineuse s'écrit alors :

$$\begin{aligned} E(t) &= \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi(\nu_0+q.\Delta\nu).t)} = \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t)} = \\ &= e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t)} = e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times A(t)_{\varphi_q=0} \end{aligned} \tag{6.18}$$

6.4.3 Ecart temporel et largeur à mi-hauteur des pulses

L'intensité en sortie de cavité est mesurable par une photodiode fixée dans la cavité MIRA 900. On l'évalue à :

$$A(t)_{\varphi_q=0} = \sum_{q=0}^{Q-1} E_0.e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t)} \Rightarrow \left|A(t)_{\varphi_q=0}\right|^2 = E_0^2.\frac{Sin^2(Q.\pi.\Delta\nu.t)}{Sin^2(\pi.\Delta\nu.t)} \tag{6.19}$$

Les simulations suivantes correspondent bien à ce qui est observé à l'oscilloscope.

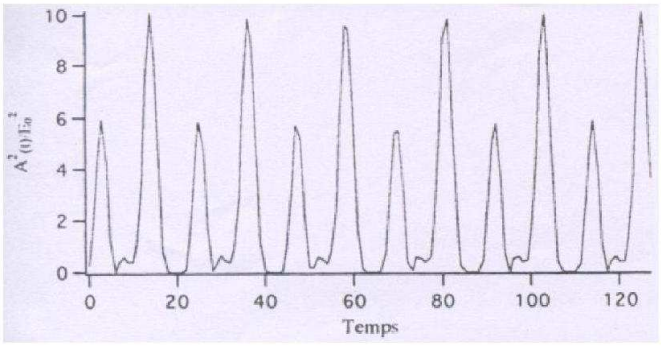


FIGURE 6.3 – Simulation sans fixation de phase relative entre modes q. Régime multimode à phase aléatoire (tiré de [115])

L'écart τ_{pulse} ou τ_e entre 2 impulsions est ainsi donné par :

$$\tau_{pulse} = \frac{1}{\Delta\nu} \equiv \frac{2nL}{c} \tag{6.20}$$

La largeur à mi hauteur des impulsions est alors définie par :

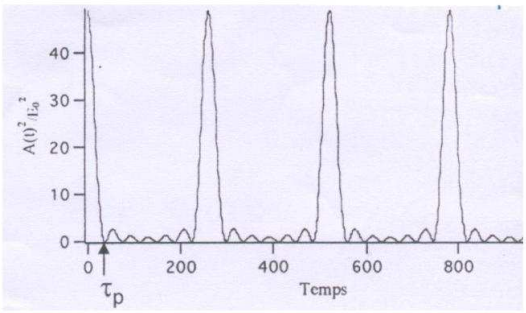


FIGURE 6.4 – Simulation avec fixation de phase relative entre modes q. Situation de verrouillage de modes (tiré de [115])

$$Q.\pi.\Delta nu.\tau_{pulse} = \pi \tag{6.21}$$

ce qui conduit à :

$$\tau_{pulse} = \frac{1}{Q.\Delta\nu} \tag{6.22}$$

Le rapport nL/c détermine alors le taux de répétition fixée pour le MIRA 900 à 76 MHz. La longueur de cavité L est donc un paramètre déterminant pour fixer le taux de répétition.

6.4.4 Avantages des cavités titane saphir : le *self mode locking*

Le cristal de titane saphir est un milieu actif amplificateur efficace car à fort gain optique G (condition $G > \sqrt{R_1 \cdot R_2}$ où R_2 et R_1 sont les coefficients de réflexion en énergie des miroirs de fonds de cavité). C'est de plus un milieu à bande d'amplification très étendue (τ_{pulse} faible en raison d'une largeur à mi-hauteur $\delta\omega_0$ de la distribution gaussienne centrée en ω_0 grande)[2].

Il s'agit d'un milieu dit à *passive mode locking*[3]. Il n'y a donc pas nécessité dans le cas de ce cristal de faire passer le faisceau multimode dans un absorbant passif saturable (colorant à durée de vie courte) où seul le pic le plus intense passerait et serait amplifié, ou de faire passer ce même faisceau "multimode" par un cristal électro-optique (cellule de

2. Cette propriété n'existe pas seulement dans le cas des milieux Ti :Saphir
3. *Kerr Mode Locking*

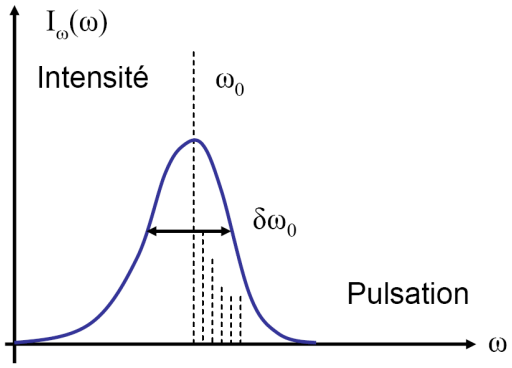


FIGURE 6.5 – Loi de distribution gaussienne centrée sur la valeur de pulsation ω_0, de largeur $\delta\omega_0$, contenant une infinité de modes superposés dont l'amplitude suit une loi de distribution gaussienne

Pockels + polariseur) où l'on ajusterait une fréquence de variation de l'indice en fonction de $\Delta\nu$ (méthode active), différence de fréquence entre deux modes successifs.

N.B. Considérant la pulsation du mode q $\omega_q = 2\pi\nu_q$, l'expression du champ $E(t)$ de l'onde lumineuse peut s'écrire comme suit :

$$E\left(t\right) = e^{i(2\pi\nu_0 t)} \times \sum_{q=0}^{Q-1} E_0 \times e^{i(2\pi.q\Delta\nu.t)} \equiv \sum_{-\infty}^{+\infty} E_0 \times e^{i\omega_q t} \times e^{-\left(\frac{2q.\delta\omega}{\delta\omega_0}\right)^2 \times Ln2} \tag{6.23}$$

On obtient alors une expression différente de la durée du pulse τ_{pulse} ; $\delta\omega_0$ étant la largeur à mi-hauteur de la gaussienne dans l'espace des pulsations ω [116] :

$$\tau_{pulse} = \frac{2.\sqrt{2}}{\pi.\delta\omega_0} \times Ln2 \tag{6.24}$$

6.5 Caractéristiques physiques et toxicologiques du GaAs

Masse moléculaire de 144,64 g.mol^{-1}. Apparence extérieure dans son état standard ($CNTP$) : cristaux cubiques gris foncés. Insoluble dans le solvant eau. Point de fusion à 1238 °C. Densité sous CNTP : 5,31. Produit de décomposition : fumées très toxiques de As ; pouvant réagir avec des acides pour relacher des gaz toxiques. *Cristal* natif *incompatible* avec la chaleur, les acides, les fumées acides, *la vapeur d'eau et l'humidité*, donnant dans ces cas des arsines très toxiques. Moyens d'extinction incendie : CO_2 ou graphite. Limite de toxicité : 0,01 mg.cm^{-3}. Numéro CAS : 1303-00-0. Risques : irritation stomachale,

de l'intestin avec nausées et diarrhées. Effets vomitifs avec dépôts sanguins, perte de connaissance, choc, sueurs froides, coma et mort. Perturbation du système digestif avec perte d'appétit, crampes, constipation et diarrhées. Allergies cutanées, dermatites, goût métallique en bouche en atmosphére de vapeurs de As (sous fusion avec le laser).

Bibliographie

[1] Bonello B., Armand F., Pradeau J.-P., Perez H., B. Perrin et Louis G. « **Evidence for the alteration of an organic/metal interface resulting from the formation of a broad interfacial layer** » , *J. Appl. Phys.* ***86****, 9*, 28 Juillet 1999 page 4959

[2] Antonelli G.A., Perrin B., Daly B.C. et Cahill D. **Characterization of mechanical and thermal properties using ultrafast optical metrology** « » , *Mat. Res. Soc.*, Août 2006

[3] Rullière C. « **Femtoseconde laser pulses : principles and experiments** » , *Springer*, 1988

[4] Eesley G.L. « **Generation of nonequilibium electron and lattice temperatures in copper by picosecond laser pulses** » , *Phys. Rev. B****33****, 2144*, 1986

[5] Brorson S.D., Kazeroonian A., Moodera J.S., Face D.W., Cheng T.K., Ippen E.P., Dresselhaus M.S. et Dresselhaus G. « **Femtosecond room temperature measurement of the electron-phonon coupling constant λ in metallic semiconductor** » , *Phys. Rev. Lett.****64****, 2172*, 1990

[6] Gusev V.E. and Wright O. B « **Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals** » , *Phys. Rev B*, 1998, pages 2878, volume 57

[7] Cho G.C., Kutt W. et Kurz H. « **Sub-picosecond time resolved coherent phonon oscillations in GaAs** » , *Phys. Rev. Lett.* ***65***, 1990, pages 764-766

[8] Cheng T.K., Brorson S.D., Kaseroonian A.S., Moodera J.S., Dresselhaus G., Dresselhaus M.S. et Ippen E.P. « **Impulsive excitation of coherent phonons observed in reflection in bismuth and antimony** » , *Appl. Phys. Lett.* ***57***, 1990, page 1004

[9] Thomsen C., Grahn H.T., Maris H.J ;, et Tauc J. « **Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses** » , *Phys. Rev. B****34***, 1986, pages 4129-4138

[10] Eesley G. L., Clemens B. M. et Paddock C. A. « **Generation and detection of picosecond acoustic pulses in thin metal films** » , *App. Phys. Lett.* ***50***, March 1987, pages 717-719 (12)

[11] Wiesenfeld J.M. « **Acoustic phonon generation in the picosecond dynamics of dense electron-hole plasma in InGaAsP** » , *Appl. Phys. Lett.* ***47***, 1985, page 143

[12] Thomsen C., Strait J., Vardeny Z., Maris H.J ;, Tauc J. et Hauser J.J. « **coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses** » , *Phys. Rev. Lett.****53***, 1984, page 989

[13] Thomsen C., Grahn H.T., Tauc J. et Maris H.J. « **Picosecond interferometric technique for study of phonons in the Brillouin frequency range** » , *Opt. Comm.* ***60***, 1986, pages 55-58

[14] Cavalleri A., Dekorsy T., Chong H.H.W., Kieffer J.C. et R.W. Schoenlein « **Evidence for a structurally-driven insulator-to-metal transition in** VO_2 » , *Phys. Rev. B* ***70***, 2004, page 161102(R)

[15] Collet E., Lemée-Cailleau M.H., Buron-Lecointe M., Cailleau H., Wulff M., Luty T., Koshihara S ;-Y., Meyer M., Toupet L., Rabiller P. et Techert S « **Laser-induced ferroelectric structural order in organic charge-transfer crystal** » , *Science* ***300 (5619)***, 2003, page 612-615

[16] Perrin B. « **Acoustique picoseconde. Systèmes femtosecondes** » , *Publication de l'Université de Saint Etienne*, 2000

[17] Del Fatti N. et Vallée F. « **Spectroscopie femtoseconde de nano-objets : les agrégats métalliques** » , *Article CNRS Edition, Images de la Physique*, 2002

[18] Bonello B., Perrin B., Romatet E et Jeannet J.-C. « **Interferometric detection of hypersounds waves in modulated structures** » , *Ultrasonics* ***35***, 1997, page 223

[19] Grahn H.T., Maris H.J., Tauc J. et Hatton K.S., *Phys. Rev. Lett.****53***, 1988, page 2281

[20] Grahn H.T., Maris H.J. et Tauc J. « **Picosecond ultrasonics** » , *IEEE J. Quantum Electronics****25***, 1989, page 2562-2569

[21] Gusev V. et Karabutov A. « **Laser Optoacoustics** » , *AIP New York*, 1993

[22] Akhmanov S.A. et Gusev V.E. « **Laser excitation of ultrashort acoustic pulses : New possibilities in solid-state spectroscopy, diagnostics of fast processes and nonlinear acoustics** » , *Sov. Phys. Usp.****35***, 1992, pages 153-191 (3)

[23] Merlin R. « **Generating coherent THz phonons with light pulses** » , *Sol. State. Com.* ***102***, 1997, pages 207-220

[24] Hase M., Ishioka K., Demsar J., Ushida K. et Kitajima M. « **Ultrafast dynamics of coherent optical phonons and nonequilibrium electrons in transition metals** » , *Phys. Rev. B* ***71***, 2005, page 184301

[25] Cho G.C., Bakker H.J., Dekorsy T. et Kurz H. « **Time-resolved observation of coherent phonons by Franz-Keldysh effect** » , *Phys. Rev. B* ***53***, 1996, page 6904

[26] Yan Y.X., Gamble E.B., Nelson Jr et Nelson K.A. « **Impulsive stimulated scattering : general importance in femtosecond laser pulse interactions with, and spectroscopic applications** » , *J. Chem. Phys.****83***, 1985, page 5391

[27] Wollman J., Profunder D.M., Meier A.H., Dobeli M. et Dual J. « **Pulse laser acoustics for the characterization of inhomogeneities at interface of nanostructure** » , *Ultrasonics* ***42***, 2004, page 657

[28] Daillant J. et Gibaud A. « **X-ray and neutron reflectivity : principle and applications** » , *Springer, New York* ***4***, 1999

[29] Rothenberg J.E. « **Observation of the transient expansion heated surfaces by picosecond photothermal deflection spectroscopy** » , *Optics Lett.****13****, 9*, 1998 pages 713-715

[30] Wright O.B. et Kawashima K. « **Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations** » , *Phys. Rev. Lett.* ***69***, 1992, pages 1668-1671

[31] Wright O.B. et Gusev V. « **Acoustic generation in crystalline silicon with femtosecond optical pulses** » , *Appl. Phys. Lett.****66***, 1995, pages 1190

[32] Devos A. et Lerouge C. « **Evidence of laser wavelength effect in picosecond ultrasonics : possible connection with interband transitions** » , *Phys. Rev. Lett.* ***86***, 2001, pages 2669-2672

[33] Devos A. et Le Louarn A. « **Strong effect of interband transitions in the picosecond ultrasonics response of metallic thin films** » , *Phys. Rev. Lett.* ***68***, 2003, page 045405

[34] Devos A. et Côte R. « **Strong oscillation detected by picosecond ultrasonics in silicon : evidence for an electronic structure effect** » , *Phys. Rev. B* ***70***, 2004, page 125208

[35] Mechri C., Ruello P., Breteau J.-M., Baklanov M.-R., Verdonck P. et Gusev V. « **Depth-profiling of elastic inhomogeneities in transparent nanoporous**

low-k materials by picosecond ultrasonic interferometry » , *Appl. Phys. Lett.**95**, 9*, 2009, page 091908

[36] Yamamoto A., Tomobumi M et Masumoto Y « **Coherent oscillation of zone folded phonon modes in GaAs-AlAs** » , *Phys. Rev. Lett.**73**, Issue 5*, 1994 pages 740-743

[37] Bell A. « **Production of sound by radiant energy** » , *Journals : Manufacturer and builder**13***, Issue 7, pages 156-158 Juillet 1881

[38] White R.M. « **Generation of elastic waves by transient surface heating** » , *J. Appl. Phys.**34***, 1963, page 2123

[39] Kieffer J., Audibert P., Chaker, et Pepin H., *Phys. Rev. Lett.**62***, 1989, page 155

[40] Bourbie T., Coussy O. et Zinszner B. « **Acoustique des milieux poreux** » , *TECNIP Editeur, n°27, Publications de l'Institut Français du Pétrole*, 1986, 172102

[41] Blackmore J.S. « **Semi-conducting and other major properties of gallium arsenide** » , *J. Appl. Phys. **53***, 1982, (10)

[42] Yu P.Y. et Cardona M. « **Fundamentals of semi-conductors** » , *Springer Verlag Editeur*, 2001

[43] Ashcroft Neil W., Mermin N. David, Saunders College, Philadelphia « **Solid state physic** » , 1976

[44] Aspnes D.E. et Studna A.A. « **Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaSb, InP, InAs and InSb from 1.5 eV to 6.0 eV** » , *Phys. Rev. B.**27***, 1983, page 985-1009 (2)

[45] Camescasse F.-X., Alexandrou A., Hulin D., Bányai L., Tran Thoai D.-B. and Haug H. « **Ultrafast electron redistribution through Coulomb scattering in undoped GaAs : experiment and theory** » , *Phys. Rev. Lett.**77***, 1996, page 5429-5432

[46] Saito T., Matsuda O. et Wright O.B. « **Picosecond acoustic phonon pulse generation in nickel and chromium** » , *Phys. Rev. B.**67***, 2003, page 205421

[47] Morath C.J. et Maris H.J. « **Attenuation in amorphous solids studied by picosecond ultrasonics** » , *Phys. Rev. B**54***, 1996 pages 203-213

[48] Tas G. et Maris H.J. « **Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics** » , *Phys. Rev. B**49***, 1994, page 15046

[49] Wright O. B., Perrin B., Matsuda O. et Gusev V.E. « **Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond acoustic pulses** » , *Phys. Rev B*, 2001, pages 64 :081 202 (R)

[50] Akhmanov S.A. et Gusev V.E. « **Laser excitation of ultrashort acoustic pulses : new possibilities in solid-state spectroscopy, diagnostics of fast processes and nonlinear acoustics** » , *Usp. Fiz. Nauk* ***162***, March 1992, page 35 (3-87)

[51] Langot P., Tommasi R. et Vallée F. « **Nonequilibrium hole relaxation dynamics in an intrinsic semiconductor** » , *Phys. Rev. B****54***, 1996, page 1775

[52] Nie S., Wang X., Park H., Clinite R. et Cao J. « **Measurement of the electronic Gruneisen constant using femtosecond electron diffraction** » , *Phys. Rev. Lett.****96***, 2006, page 025901

[53] Fan H.Y. « **Temperature dependence of the energy gap in semi-conductors** » , *Phys. Rev.* ***82***, 1951 page 900

[54] Chigarev N.V., Paraschuk D.Y. et Pan X.Y. « **Coherent phonon emission in the supersonic expansion of photoexcited electron-hole plasma in Ge** » , *Phys. Rev. B****61***, 2000, page 15837

[55] Rothwarf A. et Taylor B.N. « **Measurement of recombinaison lifetimes in superconductors** » , *Phys. Rev. Lett.****19****, 27*, 1967

[56] Macheleidt G. « **The influence of piezo-electric coupling on material constants determining Brillouin scattering** » , *Acta Cryst.* ***31***, 11 Février 1975, pages 801-803

[57] Telenkov S.A., Zhang X.R. et Gusev V.E. « **Piezoexcitation of Rayleigh-type acoustic waves induced by near-surface absorption of laser pulses** » , *Appl. Phys. Lett.* ***60****, 7*, 1992 pages 813-815

[58] Gusev V., Picart P., Mounier D. et Breteau J.-M. « **On the possibility of ultrashort shear acoustic pulse excitation due to the laser-induced electrostrictive effect** » , *Optics Comm.* ***204***, 2002, page 229-236

[59] Nelson d.F. et Lax M. « **New symmetry for acousto-optic scattering** » , *Phys. Rev. Lett.****24****, Issue 8*, 23 Février 1969, pages 379-380

[60] Hlinka J. et Klotins E. « **Application to elasto-static Green function tensor technique to electro-striction in cubic, hexagonal and orthorhombic cristals** » , *J. of Physics, Institute of Physics, Cristal Condensed Matter* ***15***, 2003, pages 5755-5764

[61] Freysz E., Ducasse A. et Pouligny B. « **Milieux hétérogènes et interfaces : manipulation par laser de structures formées par des tension-actifs en solution** » , *Article CNRS Edition, Images de la Physique* ***18***, 1989 pages 86-91

[62] Jean-jean B., Freysz E., Ducasse A. et Pouligny B. « **Thermo-diffusive and electro-strictive optical non linearities in critical micro-emulsions** » , *Eur. Phys. Lett.* ***7***, 1988 pages 219-224

[63] Nelson K.A. « **Stimulated Brillouin scattering and optical excitation of coherent shear waves** » , *J. Appl. Phys.* ***53****, 9*, 1982

[64] Adachi S. « **Phyical properties of III-IV semiconductor compounds : InP, InAs, GaAs, GaP, InGaAs, InGaAsP** » , *Wiley VCH,*, 1992, réédition en 2004 ISBN-13 : 978-0-471-57329-6

[65] Babilotte P., Morozov E., Ruello P., Mounier D., Edely M., Breteau J.-M., Bulou A. et Gusev V. « **Physical mechanism of coherent acoustic phonons generation in GaAs semiconductor** » , *J. of Physics : Conf. series* ***92****, 012019*, 2007

[66] Gusev V.E. « **Laser hypersonics in fundamental and applied research** » , *Acta Acustica* ***82***, 1996, page 537

[67] Sonehara T. et Hajine T. « **Forced brillouin spectroscopy using frequency tunable continous wave laser** » , *Phys. rev. Lett.****75***, 04 Décembre 1995, pages 4234-4238

[68] Mounier D., Morozov E., Edely M., Babilotte P., Mechri C., Breteau J.-M. et Gusev V. « **Application of transient femtosecond polarimetry / ellipsometry technique in picosecond laser ultrasonics** » , *J. of Phys., Conference Series****92***, 2007, page 012179

[69] « **Verdi V-2/V-5 Laser Operator's Manual** » , *Coherent Corporation*, USA 2001, pages 2.1-2.4

[70] Dekorsy T., Taubert R., Hudert F., Bartels A., Cerna R., Kotaidis V., Plech A., Köhler K., Schmitz J. et Wagner J. « **High-speed asynchronous optical sampling for high-sensitivity detection of coherent phonons** » , *J. Conf. Series*, 2007

[71] Perrin B. Bonello B., Jeannet J.-C. et Romatet E. « **Interferometric detection of hypersounds waves in modulated structures** » , *Prog. Natur. Sc.* ***6***, 1996, pages S444-S448

[72] Perrin B., Rossignol C., Bonello B. et Jeannet J.C. « **Interferometric detection in picosecond ultrasonics** » , *Physica B : Condensed Matter****66***, 1999, page 1190

[73] Hurley D. H. et Wright O. B. « **Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer** » , *Opt. Lett.*, 1999, pages 1305-1307

[74] Avanesyan S.M., Gusev V.E., et Zheludev N.I. *Appl. Phys. A* ***40***, 1986, page 163

[75] Hudert F., Bartells A., Dekorsy T. et Kolher « **Influence of doping profiles on coherent acoustic phonon detection and generation in semi-conductors** » , *J. Appl. Phys.**104***, 2008, page 123509

[76] Bartels A., Dekorsy T., Kurz H. et Kohler K. « **Coherent zone folded longitudinal acoustic phonons in semi-conductors superlattices : excitation and detection** » , *Phys. Rev. Lett. **82***, 1999, (5)

[77] Shah J., Leheny R.F. et Lin C. « **Dynamic Burstein shift in GaAs** » , *Solid State Comm. **18***, 1976, pages 1035-1037

[78] Christensen N.E. « **Electronic structure of GaAs under strain** » , *Phys. Rev. **B30***, 1984, page 5753

[79] Rousse A. « **Sources de rayonnement X ultrabrefs générés par interaction laser-matière et leurs applications** » , *Habilitation à diriger de recherches, Université Paris Sud XI, LOA, CNRS, ENSTA*, 26 avril 2004

[80] Séraphin B.O. et Bottka N. « **Band structure analysis from electroreflectance studies** » , *Phys. Rev. B **145***, 1966, (2)

[81] Morozov E., Laamiri Y., Ruello P., Mounier D. et Gusev V. « **Influence of the absorbed optical quanta energy on GHz ultrasound generation in GaAs** » , *Eur. Phys. J. Special Topics**153***, 2008, pages 239-241

[82] Marvin D.C., Beck S.M., WesselJ.E. et Rollins J.G. *IEEE J. **QE25***, 1980, page 1064

[83] Etchegoin P., KircherJ., Cardona M., Grein C. et Bustarret E. « **Piezo-optics of GaAs** » , *Phys. Rev. **B46***, 1992, page 15139

[84] Feldman A. et Waxler R.M. *J. Appl. Phys. **53***, 1982, page 1477

[85] Tell B., Worlock J.-M. et Martins R.-J. « **Enhancement of elasto-optic constants in the neighborhood of a band gap in ZnO and CdS** » , *Appl. Phys. Lett.**6***, 1965, page 123

[86] Carlotti G., Socino G. et Verona E. « **Photoelastic characterization of ZnO films** » , *IEEE Ultrasonics Symposium **0090-5607***, 1988, pages 427-430

[87] Pezeril T., Chigarev N., Ruello P., Gougeon S., Mounier D., Breteau J.-M., Picart P. et Gusev V.E. *Phys. Rev B **73***, 2006, page 132301

[88] Matsuda O., Wright O.B., Hurley D.H., Gusev V.E. et Shimizu K. *Phys. Rev. Lett. **93***, 2004, page 095501

[89] Hemphill R.B. *Appl. Phys. Lett.**9***, 1966, page 35

[90] McLean D.G, Roe M.G., D'Souza A.I. et Wigen P.E. « **Picosecond recombinaison of charged carriers in GaAS** » , *App. Phys. Lett.* ***48***, 1986, page 992 (15)

[91] Hoffman C.A., Gerritsen H.J. et Nurmikko A.V. *J. Appl. Phys.****51***, 1980, page 1603 (3)

[92] Offsey S.D., Woodal J.M., Warren A.C., KirchnerP.D., ChappellT.I. et Pettit G.D. *Appl. Phys. Lett.****48***, 1986, page 475 (7)

[93] Beck S.M. et Wessel J.E. « **Picosecond transient reflectivity of unpinned gallium arsenide [100] surface** » , *Appl. Phys. Lett.****50***, 1987, page 149 (3)

[94] Vedam K. et Davis T.A. « **Pressure dependance of the refractive indices of the hexagonal crystals beryl, α-CdS, α-ZnS and ZnO** » , *Phys. Rev.****181***, 1969, page 1196

[95] Dixon R.W. « **Photoelastic properties of selected materials and their relevance for applications to acoustic light modulators and scanners** » , *J. Appl. Phys.****38***, 1967, page 5149

[96] Wright O.B. « **Thickness and sound velocity measurement in thin transparent film with laser picosecond acoustics** » , *J. Appl. Phys.****71***, 1992, page 1617

[97] Landolt Burstein « **Semiconductors** » , *Springer Verlag Editeur*

[98] Luu-Gen Hwa, Chung-Ling Lu et Li-Chi Liu « **Elastic moduli of calcium alumino-silicate glasses studied by Brillouin scattering** » , *Mat. Res. Bull.****35***, 2000 page 1285-1292

[99] Biegelsen D.K et Zesch J.C. « **Optical frequency dependence of the photoelastic coefficients of fused silica** » , *J. Appl. Phys.****47***, 1976, page 4024

[100] Kent A., Beardsley R., Akimov A. et Henini M. « **Coherent phonons in semiconductor superlattice under DC electrical bias** » , *J. Acoust. Soc. Am.****123****, 3548*, 2008

[101] Wen Y.C., Chou L.C., Lin H.H., Gusev V.E., Lin K.H. et Sun C.K. « **Efficient generation of coherent acoustic phonons in [111] InGaAs/GaAs multiple quantum wells through piezoelectric effects** » , *Appl. Phys. Lett.* ***90***, 2007, page 172102

[102] Kung-Hsuan Lin, Cheng-Ta Yu, Yu-Chieh Wen et Chi-Kuang Sun « **Generation of picosecond acoustic pulses using a p-n junction with piezoelectric effects** » , *Appl. Phys. Lett.* ***86****, 2*, 2005 page 093110

[103] Moss D.M., Akimov A.V., Kent A.J., Glanin B.A. , Kappers M.J., Hollander J.L., Moram M.A. et Humphreys C.J. « **Coherent terahertz acoustic vibration in polar and semi-polar gallium nitride based super-lattices** » , *Appl. Phys. Lett.* ***94****, 2*, 2009 page 011909

[104] Ketchen M.B, Grischkowsky D., Chen T.C., Chi C.-C., Duling I.N., Halas I.I.I.N.J., Halbout J.-M., Kash J.A. et Li G.P. « **Generation of subpicosecond electrical pulses on coplanar transmission lines** » , *Appl. Phys. Lett.* ***48****, 12*, 1986 pages 751-753

[105] Telenkov S.A., Gusev V.E. et Avanesyan S.M. « **Nonlinear regime of laser-induced piezoexcitation of the Rayleigh acoustic wave in $CdS_{1-x}Se_x$ crystal** » , *J. Appl. Phys.* ***75****, 7*, 1994 pages 3692-3694

[106] Telenkov S.A., Gusev V.E. et Avanesyan S.M. « **Laser-induced piezoexcitation of plane shear bulk acoustic pulses** » , *J. Acoust. Soc. Am.* ***97****, 2*, 1995 page 1326-1328

[107] Yue-Kai Huang, Gia-Wei Chern et Chi-Kuang Sun « **Generation of coherent acoustic phonons in strained GaN thin films** » , *Appl. Phys. Lett.* ***79****, 20*, 2001 pages 3261-3263

[108] Ralph Stephen E. et Grischkowsky « **Trap-enhanced electric fields in semi-insulators : The role of electrical and optical carrier injection** » , *Appl. Phys. Lett.* ***59****, 16*, 1991 pages 1972-1974

[109] Heesel H., Hunsche S., Mikkelsen H., Dekorsy T., Leo K. et Kurz H. « **Dynamics of electric field screening in a bulk GaAs modulator** » , *Phys. Rev. B****47****, 16*, 1993 page 16000

[110] Zallen R. et Paul W. « **Effect of pressure on interband reflectivity spectra of germanium and related semi-conductors** » , *Phys. Rev.****155***, 15 Mars 1967, (703)

[111] Zallen R. et Paul W. « **Generation of picosecond acoustic pulses using a p-n junction with piezoelectric effects** » , *Appl. Phys. Lett.****86***, 2005, page 093110

[112] Bruchhausen A., Fainstein A., Soukiassian A., Schlom D.G., Xi X.X., Bernhagen M., Reiche P. et Uecker « **Ferroelectricity induced coupling between light and terahertz frequency acoustic phonons in $BaTiO_3/SrTiO_3$ superlattices** » , *Phys. Rev. Lett.* ***101****, 197402*, 2008

[113] Korff Schimsing C.V., Harpoeth A., Zhavoronkov N., Ansari Z., Aku Leh C., Woerner M., Elsaesser T., Bargheer M., Schmidbauer M., Vrejoiu I., Hesse D. et Alexe M.

« **Ultrafast magnetostriction and phonon-mediated stress in a photoexcited ferromagnet** » , *Phys. Rev. B* ***78****, 060404*, 2008

[114] Naranjo B., Gimzewski J.K. et Putterman S. « **Observation of nuclear fusion driven by a pyroelectric crystal** » , *Nature* ***434****, 1115*, 28 Avril 2005

[115] Changenet P. « **Physique des Lasers** » , *Cours de Master 2 Recherche, Université Paris Sud XI Orsay*, 2006

[116] Poinsotte F. « **Des phonons pour caractériser des nano-objets : passage de l'espace des fréquences au domaine temporel** » , *Rapport Réseau Technologies Femtosecondes/RTF*, 2006, page 3

Abstract

Utilisation of the technology of ultrashort (femtoseconde) laser pulses is an efficient approach to generate and detect very high frequency acoustic waves. The pump-probe technique is presently the most broadly used one. Characteristics of the very high frequency acoustic waves can be controlled through the opto-acoustic transduction process, depending on the optical wavelength, absorption characteristics of the material and laser intensity. Briefly, the photo-induced phenomena in the interaction of the incident pump laser radiation with a semiconductor can be described as follows : the optical absorption leads to creation of electron-hole pairs inducing stress due to both thermal relaxation and electronic deformation potential and also shifting the equilibrium configuration of the lattice. These processes in turn lead to generation of coherent acoustic and optical phonons. Optical emission due to radiative recombination usually takes place on a longer time scale. Typical wavelengths of the excited coherent acoustic phonons span from tens to hundreds of nanometers. Therefore this ultrasonic source is an efficient tool for characterization of nanostructured materials with a sub-micrometric picosecond echo-graphic technique, which is based on the laser excitation of coherent acoustic waves and detection of the acoustic echo arrived at the surface. Severals mecanisms corresponding to severals photo-induced stresses have been detailled in this work : thermo-elastic stress, potential deformation stress, electrostrictive stress and piezo-inverse stress. Experimental study have been conduced, for differents configuration of pump and probe beams, and differents cristallographic orientations or dopant rates. Complete simulation have been made to try to reproduce the experimental signals obtained. Theoritical explanations are presentated linked with GHz frequency signals measured.

Key-words : laser-matter interaction, picosecond ultrasonic, pretersonics, Brillouin scattering, GaAs, piezo-elasto-acousto-effects in condensed matter, ultrafast pump-probe technic

Mots-clefs : interaction laser matière, acoustique picoseconde, prétersonique, diffusion Brillouin, GaAs, effets piézo-élasto-acoustiques dans la matière condensée, montage pompe-sonde ultrarapide