



Acoustique - étude et utilisation de nouvelles sources et transducteurs aux longueurs d'onde nanométriques.

Romain Legrand

► To cite this version:

Romain Legrand. Acoustique - étude et utilisation de nouvelles sources et transducteurs aux longueurs d'onde nanométriques.. Acoustique [physics.class-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013. Français. NNT: . tel-00945558

HAL Id: tel-00945558

<https://theses.hal.science/tel-00945558v1>

Submitted on 12 Feb 2014

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.

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

École Doctorale de Physique de la Région Parisienne
(ED107)

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Pierre et Marie Curie

Présentée par

Romain Legrand

soutenue le 21 octobre 2013

Sujet de la thèse :

**Acoustique - étude et utilisation de
nouvelles sources et transducteurs aux
longueurs d'onde nanométriques.**

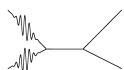
Directeur de thèse :

Bernard Perrin

préparée à l'**Institut des NanoSciences de Paris**

Jury :

<i>Rapporteurs :</i>	Benoit Rufflé	-	Université Montpellier 2
	Sebastian Volz	-	Ecole Centrale Paris (Châtenay Malabry)
<i>Examineurs :</i>	Pascal Ruello	-	Université du Maine (Le Mans)
	Matteo D'Astuto	-	Université Paris 6
	Raphaël Butté	-	École polytechnique Fédérale de Lausanne



Résumé

Ce manuscrit porte sur l'étude de transducteur acoustique couvrant la plage de fréquence allant de 100 GHz à 1 THz. Un laser impulsionnel pico-seconde est à l'origine de ces hautes fréquences. Les structures utilisées pour la génération sont un empilement bicouches *GaAs/AlAs*. La sensibilité de génération et de détection d'onde acoustique en fonction de la longueur d'onde est étudiée expérimentalement. Afin d'améliorer l'efficacité de transduction, une micro-cavité optique est utilisée pour augmenter l'interaction entre le rayonnement laser et le super-réseau. Ces transducteurs opto-acoustiques sont utilisés pour mesurer les temps de vie des phonons subterahertz et terahertz. Une anomalie dans le comportement en fréquence des temps de vie a été mise en évidence dans l'arséniure de gallium. L'utilisation de courbes de dispersion issues de calculs *ab initio* associée à l'approche de Landau-Rumer pour les temps de vie ultra-sonores permet d'expliquer ce comportement inattendu.

Mots-clefs : Transducteur - opto-acoustique - phonon - terahertz - gigahertz - super-réseau - puits quantiques - cavité optique - photo-luminescence - Landau-Rumer - temps de vie - *ab initio* - méthode numérique - arséniure de gallium.

Abstract

This study focuses on acoustic transduction in frequencies ranging from 100 GHz to 1 THz. A picosecond pulsed laser was used to generate and detect high frequency phonons. These transducers are a two-layers pileup of *GaAs/AlAs* gathered in one superlattice. The optical wave-length sensitivity was experimentally studied. To improve the transduction efficiency, an optical micro cavity was used to increase the interaction between radiation and superlattice. These light-to-sound transducers were used to measure subterahertz and terahertz phonons' lifetime. An anomaly in lifetime frequency dependence was observed in gallium arsenide. Dispersion relation from *ab initio* calculation coupled with Landau-Rumer phonon lifetime theory fully explain this unexpected anomaly.

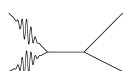
Key words : Transducer - light-to-sound - phonon - terahertz - gigahertz - superlattice - quantum well - optical cavity - photoluminescence - Landau-Rumer - lifetime - *ab initio* - computational method - gallium arsenide.



0	Remerciements	7
1	Introduction	11
1	Historique : du <i>Photophone</i> à l'acoustique picoseconde.	15
1.1	Les prémisses de la transduction ultra-sonore.	15
1.2	De Bell à Brillouin	15
1.3	1960 : La révolution laser	15
1.4	L'essor des techniques femtosecondes	17
1.5	Les techniques d'acoustiques picosecondes	17
1.6	Applications de l'acoustique picoseconde	18
2	Guide de lecture	20
2	Génération et détection d'ultrasons	25
1	Modèle de génération photo-thermique	29
1.1	Hypothèses	29
1.2	Contrainte et équation de propagation d'une déformation générée par effet photo-thermique	31
1.3	Déplacement de surface issu d'une déformation générée par effet photo-thermique.	33
2	Le potentiel de déformation	33
2.1	Origine de la contrainte	33
2.2	Expression mathématique de la contrainte	35
3	Modèle de détection des ondes acoustiques	36
3.1	Déplacement de surface	37
3.2	Variation de réflectivité due à l'effet photo-élastique	37
3.3	Application au cas d'une déformation causée par un écho acoustique	40
4	Conclusion	41

TABLE DES MATIÈRES

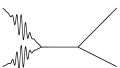
3	Dispositifs expérimentaux	43
1	Instruments utilisés	47
1.1	Laser femtoseconde	47
1.2	Cube séparateur	47
1.3	Modulation acousto-optique	48
1.4	Détection synchrone	49
1.5	Ligne à retard	50
1.6	Pont de diodes	50
1.7	Spectroscope	51
1.8	Schéma de principe d'une expérience pompe-sonde	51
2	Mesure en réflectométrie	53
3	Mesure en interférométrie	54
4	Asynchrone	56
5	Conclusion	59
4	Transduction opto-acoustique dans les super-réseaux	61
1	Généralité sur les super-réseaux	66
1.1	Structure	66
1.2	Super-réseaux et puits quantiques	67
2	Relation de dispersion acoustique dans un super-réseau	69
2.1	Matrice de transfert acoustique d'une bicouche	69
2.2	Relation de dispersion	69
3	Génération au sein d'un multicouche	70
3.1	Rôle de la longueur d'onde pompe pour la génération dans un super-réseau d'arséniure de gallium	71
4	Détection au sein d'un multicouche	74
4.1	Réflexivité r_0 d'un empilement multicouches	74
4.2	Variation relative de réflectivité : $\frac{\Delta r}{r_0}$	75
4.3	Mode de détection au sein d'un super-réseau	75
4.4	Rôle de la longueur d'onde sonde dans la détection des super-réseaux d'arséniure de gallium	77
5	Génération et détection avec des super-réseaux	78
5.1	Les doubles super-réseaux	78
5.2	Vers les super-réseaux à cavité optique	78
6	Conclusion	82
5	Super-réseau inclus dans une cavité optique	83
1	Présentation de l'échantillon	87
1.1	Miroir de Bragg	88
1.2	Mode de résonance de la cavité Fabry-Pérot	90
1.3	Champ électromagnétique au sein de la cavité	91
2	Caractérisation de l'échantillon	92
2.1	Mode de cavité	92
2.2	Photoluminescence du super-réseau	93



3	Résultats	95
3.1	Modes acoustiques au sein de la micro-cavité optique	95
3.2	Échos acoustiques	95
3.3	La technique pompe-sonde asynchrone	99
3.4	Dépendance en longueur d'onde pompe	100
3.5	Dépendance en longueur d'onde sonde	100
3.6	Sensibilité de la cavité au sens de propagation de l'onde acoustique	103
4	Conclusion	106
6	Théorie de l'atténuation ultra-sonore	109
1	Introduction	112
2	Cadre mathématique	114
2.1	Situation expérimentale	114
2.2	Théorie de Landau-Rumer	115
2.3	Les régimes d'approximation dans la théorie de Landau-Rumer	120
2.4	L'approximation des grandes longueurs d'onde	121
3	Généralité sur les processus à trois phonons	125
3.1	Dépendance en température des processus à trois phonons	126
3.2	Les processus de collision : $p_0 + p_1 \longrightarrow p_2$	127
3.3	Les processus de fission : $p_0 \longrightarrow p_1 + p_2$	135
4	Densité d'état à deux phonons : cas linéaire et isotrope	137
5	Conclusion	138
7	Résultat expérimentaux sur l'atténuation	139
1	Les différentes causes d'atténuation des ondes mécaniques dans les cristaux	143
1.1	Divergence du faisceau acoustique	143
1.2	Causes extrinsèques de l'atténuation	143
1.3	Causes intrinsèques : anharmonicité de réseau	143
2	Les mesures d'atténuation avec la technique pompe-sonde	144
2.1	Mesures absolues de l'atténuation dans l'arséniure de gallium (A. J. Kent).	144
2.2	Mesure relative de l'atténuation : contribution des processus d'interaction à trois phonons.	144
2.3	Les différentes configurations de mesure	145
3	Résultats de l'atténuation dans un substrat d'arséniure de gallium	148
3.1	Dépendance en température	148
3.2	Dépendance en fréquence	148
3.3	Conclusions	151
8	Procédure numérique	153
1	Description de la procédure numérique	157
1.1	Conservation du vecteur d'onde	157
1.2	Sommation sur la zone de Brillouin	158
1.3	Coefficient de couplage $ \mathfrak{M} ^2$	159

TABLE DES MATIÈRES

1.4	Conservation de l'énergie et évaluation de $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$	161
1.5	Relations de dispersion	163
2	Paramètres utilisés pour les calculs	166
2.1	Fonction de substitution pour $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$	166
2.2	Relation de dispersion et fréquence de coupure	167
2.3	Contrôle des calculs	168
3	Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement	170
3.1	Processus de collision	170
3.2	Processus de Herring	170
3.3	Autres processus de collision : $La + Tf \rightarrow La$ et $La + Ts \rightarrow La$	175
3.4	Les processus de fission : $La \rightarrow X + Y$	175
3.5	Contribution totale à l'atténuation et accords expérimentaux pour l'arséniure de gallium	178
3.6	Dépendance en température	180
3.7	Résultats à basse température et processus de diffusion isotopique	181
3.8	Directions [110] et [111]	184
3.9	Conclusions	184
4	Atténuation pour un phonon polarisé transversalement	186
4.1	Paramètres de simulation pour l'atténuation des phonons polarisés transversalement	186
4.2	Processus de collisions $T_{s,f} + X \rightarrow Y$	186
4.3	Processus d'Herring pour la polarisation transverse	189
4.4	Conclusion	189
5	Application au cristal de silicium	190
5.1	Relation de dispersion et densité d'états du silicium	190
5.2	Densité d'états à deux phonons	192
5.3	Processus de Herring et plateau haute fréquence	192
5.4	Conclusion	193
6	Conclusion générale	193
9	Conclusions et perspectives	195
A	Expression du changement relatif de réflectivité	199
B	Détails de la procédure numérique	207
C	Paramètres pour le calcul numérique	211
	Bibliographie	219



CHAPITRE 0

REMERCIEMENTS

N. Bouvier

C'est la contemplation silencieuse des atlas, à plat ventre sur le tapis, entre dix et treize ans, qui donne ainsi l'envie de tout planter là. Songez à des régions comme le Banat, la Caspienne, le Cachemire, aux musiques qui y résonnent, aux regards qu'on y croise, aux idées qui vous y attendent. . . Lorsque le désir résiste aux premières atteintes du bon sens, on lui cherche des raisons. Et on en trouve qui ne valent rien. La vérité, c'est qu'on ne sait comment nommer ce qui vous pousse. Quelque chose en vous grandit et détache les amarres, jusqu'au jour où, pas trop sûr de soi, on s'en va pour de bon.

Un voyage se passe de motifs. Il ne tarde pas à prouver qu'il se suffit à lui-même. On croit qu'on va faire un voyage, mais bientôt c'est le voyage qui vous fait, ou vous défait.

Voici sans doute l'exercice le plus périlleux d'un manuscrit de thèse, la rédaction des remerciements. Je vais essayer de n'oublier personne, mais c'est une tâche ardue !

Je m'en voudrais de ne pas remercier Bernard Perrin en premier pour ces trois années passées à l'INSP. Je me souviens encore du jour où, jeune enseignant, je poussais la porte de son bureau encore à Boucicaud pour lui demander si, par hasard, son équipe proposait des sujets de thèse. Trois ans et beaucoup d'aventures plus tard, me voilà à soutenir dans les murs de Jussieu.

Je veux aussi remercier les membres de l'équipe d'acoustique pour les nanosciences, Emmanuel pour les discussions scientifiques acharnées, Laurent cette espèce de dépoussiéreur de cailloux, rarement à court d'histoire de fouille archéologique (et qui fut d'un

CHAPITRE 0. REMERCIEMENTS

grand soutien lors de la rédaction), Eric qui fut d'une aide très précieuse et un bon compagnon tant en salle de manip' qu'autour d'un verre, Serge dont les connaissances en électronique me surprennent encore, et bien sur tous les autres membres de l'équipe avec qui j'ai eu le plaisir de partager quelques cafés : Bernard, Jean-Yves et Jean-Yves, Olga, Daniel, Danielle (A croire qu'avoir un prénom d'un membre de l'équipe est un plus pour venir ici), Jean-Louis etc.

Je serai un piètre docteur si j'oubliais les collègues de bureau qui d'année en année ont assisté à mon affaïssement derrière les écrans : Xin Feng, Xu Feng, Antoine, Rémy, Wilson, Mathieu, Diego aux longues dents, Clémence dite "La Balle", Nicolas dit le Chuecos et dont la démarche n'est pas sans rappeler celle d'un oiseau de proie et bien sur Juliette notre doyenne !

Beaucoup d'autres personnes ont compté pour moi ces dernières années. Il y a d'abord les amis du club d'escrime de l'ASPTT qui ont été d'un réel soutien : Nicolas, Bruno, Philippe, Geoff', Sébastien et tous ceux qui ont su trouver les mots pour m'aider. Et puis il y a les amis, profs pour la plupart, que je n'ai pas vu assez ces dernières années, mais dont la présence a compté : Nicolas, Aurélie, Vincent, Boris, Julien, Laure, Adrien et puis pour la CCCC : Eva, Claire, Mathieu, Jessica, Nicolas, Coraline, Caroline, Maxime (qui va être bientôt papa), David, Yoann, Lucille, Vincent ...

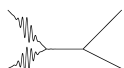
Un grand merci au HSbis. Havre qui à défaut d'être de paix, a le mérite d'être n'importe quoi et de satisfaire un besoin de lire, découvrir, écouter autre chose que de la physique.

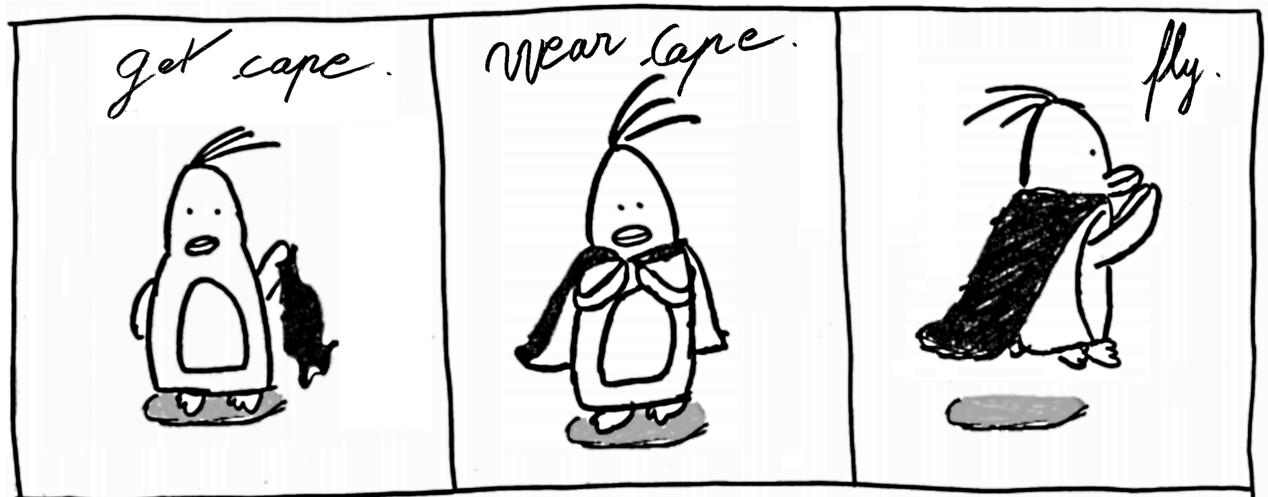
Il y a la famille, présente dans les moments difficiles : mes parents, ma soeur que je ne vois pas assez, je vous dis un grand merci !

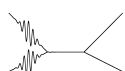
Enfin, Diane, je pense que cette thèse aurait été bien différente et terne sans toi. Merci de m'avoir soutenu, aidé et fait sourire chaque fois que tu en avais l'occasion ! Je ne sais pas ce que l'avenir nous réserve, mais maintenant je peux affronter d'autres montagnes !

Et à tous ceux que j'ai oubliés aujourd'hui et dont je me rappellerai le lendemain de l'impression, un grand merci pour toutes ces paroles bienveillantes.

Romain Legrand





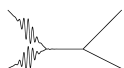


CHAPITRE 1

INTRODUCTION GÉNÉRALE À L'ACOUSTIQUE PICOSECONDE

Sommaire

1	Historique : du <i>Photophone</i> à l'acoustique picoseconde.	15
1.1	Les prémisses de la transduction ultra-sonore.	15
1.2	De Bell à Brillouin	15
1.3	1960 : La révolution laser	15
1.4	L'essor des techniques femtosecondes	17
1.5	Les techniques d'acoustiques picosecondes	17
1.6	Applications de l'acoustique picoseconde	18
2	Guide de lecture	20



R. Feynman

Le scientifique a une grande expérience de l'ignorance, du doute, de l'incertitude... Nous tenons pour acquis qu'il est parfaitement cohérent de ne pas être sûr, qu'il est possible de vivre et de ne pas savoir. Mais je ne sais pas si quelqu'un se rend compte que c'est vrai.

L'acoustique picoseconde est un domaine dont l'essor est largement lié à l'apparition d'une nouvelle classe de laser dans les années 1980 : les lasers femtosecondes. Ces derniers autorisent des processus d'excitation permettant la génération d'ondes acoustiques de très hautes fréquences (allant du gigahertz au térahertz). Par conséquent, les longueurs d'ondes acoustiques mises en jeu sont de l'ordre du nanomètre et ouvrent la voie à l'étude des propriétés mécaniques des matériaux à très petites échelles (films minces de quelques couches atomiques, boîtes quantiques, nano-objets dont les modes propres de vibrations sont de l'ordre du THz, solutions colloïdales de nanoparticules, etc.). L'acoustique picoseconde par sa capacité à générer et détecter des ondes acoustiques à des fréquences correspondant à des longueurs d'onde nanométrique joue alors un rôle majeur dans l'étude des objets créés par la nano-ingénierie.

L'utilisation de lasers pulsés femtosecondes en acoustique nous vient des travaux du groupe de H. J. Maris et datent de 1984 [1]. Il s'agit d'utiliser une technique expérimentale dite pompe/sonde pour générer et détecter les ondes acoustiques. Une première impulsion laser de forte puissance - appelée pompe - est envoyée sur l'échantillon ; celle-ci va générer une impulsion acoustique qui provoquera des changements d'indice optique et des déplacements d'interfaces au sein du matériau étudié. Une autre impulsion - appelée sonde -

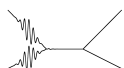
CHAPITRE 1. INTRODUCTION

de faible puissance et décalée dans le temps viendra mesurer les variations des propriétés optiques du matériau sous l'effet de l'onde acoustique. Le retard entre la pompe et la sonde est maîtrisé en faisant varier la distance parcourue par la sonde au moyen d'une ligne à retard, et permet de suivre l'évolution de l'impulsion acoustique au cours du temps.

Les applications de l'acoustique picoseconde sont celles offertes par l'étude spectroscopique des phonons à hautes fréquences. De nombreuses techniques de mesures peuvent être mises en œuvre et dépendent largement de la structure étudiée : par exemple, l'étude des échos acoustiques permet de remonter à la structure des échantillons multicouches, aux états des interfaces, aux propriétés mécaniques via les modules élastiques. Le plus grand apport de cette technique concerne le contrôle non destructif de couches déposées sur des *wafers*¹ de silicium dans le domaine de la micro-fabrication des circuits intégrés ou des mémoires. L'ouverture industrielle des procédés de fabrication des nano-objets ne fait que renforcer le besoin et le nombre d'applications de l'acoustique picoseconde au contrôle non destructif de ces derniers.

Une autre application, plus fondamentale, est l'étude des temps de vie des phonons dans des régimes de fréquences et températures encore inexplorés. Jusqu'à présent, le seul accès à ces temps de vie se faisait par l'intermédiaire des mesures de conductivité thermique permettant de remonter à des grandeurs moyennées sur l'énergie et la direction de propagation. Une connaissance plus précise de la dynamique de ces temps de vie sur de larges gammes de température et de fréquence ouvrirait la voie vers une meilleure compréhension des forces inter-atomiques en jeu au sein de cristaux.

1. galettes ou plaques de semi-conducteur



1 Historique : du *Photophone* à l'acoustique picoseconde.

1.1 Les prémisses de la transduction ultra-sonore.

La génération d'ondes acoustiques ultra-sonores est une longue histoire débutant par la découverte de l'effet piézoélectrique par les frères Curie en 1881 [2] dans un cristal de quartz ; cette découverte restera une curiosité de laboratoire pendant une quarantaine d'années, jusqu'à ce que Paul Langevin et ses collaborateurs ne développent le sonar pendant la première guerre mondiale et utilisent des cristaux de quartz comme transducteurs acoustiques [3].

Ces transducteurs piézoélectriques permettent de générer des ondes mécaniques jusqu'à 10 GHz. La méthode la plus courante pour la transduction de modes ultra-sonore dans les solides (mais aussi les liquides) consiste à déposer ou coller des cristaux piézoélectriques à la surface de l'échantillon. Cependant, la nécessité d'un contact mécanique entre le transducteur et l'échantillon, et les limites en bande passante ont poussé les chercheurs à remplacer dès les années 1960 les transducteurs piézoélectriques par le rayonnement laser.

1.2 De Bell à Brillouin

L'idée de produire du son avec de la lumière nous vient de A. G. Bell en 1881 [4]. Ce dernier transmet du son sur une grande distance en modulant en intensité un faisceau lumineux focalisé sur une surface sombre, et produit des ondes acoustiques audibles par échauffement de l'air en surface : c'est l'invention du *photophone*.

Il faut cependant attendre 1921 pour que Léon Brillouin émette l'idée d'un couplage entre les ondes acoustiques et électromagnétiques [5, 6] "Un liquide traversé par une onde acoustique de faible longueur d'onde, se comporterait comme un réseau de diffraction pour la lumière".

La diffusion "Brillouin" sera observée 10 ans plus tard en 1931 par Lucas et Biquard en France [7] et par Debye et Sear [8] suivies par de nombreuses études menées en particulier par Raman et Nath [9].

1.3 1960 : La révolution laser

En dépit des performances de cette méthode pour la spectroscopie acoustique, il faut attendre l'arrivée des lasers en 1960 [10] pour assister à une révolution expérimentale. Ces derniers –en créant un faisceau d'ondes électromagnétiques, directionnel, de haute énergie et focalisable sur de petites surfaces– a permis d'accroître les possibilités concernant les méthodes optiques de génération et de détection d'ondes acoustiques.

En 1962, R. Hellworth et F. McClung développent le laser pulsé en produisant un rayonnement pulsé microseconde de puissance crête bien supérieur au laser à rubis classique [11].

En 1963, R. White aux USA [12], et Askar'yan en URSS [13] montrent que le rayonnement issu d'un laser à rubis à commutation Q permet la génération d'ondes acoustiques

CHAPITRE 1. INTRODUCTION

par échauffement dans un liquide. Ils émettent l'idée de générer aisément des ondes acoustiques de plus haute fréquence (de l'ordre du mégahertz) et ainsi d'accéder à des méthodes de mesures optiques des propriétés élastiques et thermiques des matériaux. Lee et White en 1968 utilisent un film d'aluminium pour générer des ondes de surface² qui seront ensuite détectées après propagation sur du verre de silice et du quartz.

Finalement, des ondes de volumes sont générées et propagées dans une couche métallique de 18 mm d'épaisseur par Hutchins en 1981 [14]. La génération se fait grâce à un laser Nd-YAG en commutation Q générant des pulses laser de 17 ns, tandis que la détection se fait à l'aide d'un transducteur capacitif.

Les progrès de la technologie laser ont conduit à des impulsions de plus en plus courtes, permettant ainsi d'approfondir les mécanismes de génération d'ultra-son via l'échauffement de surface [15, 16, 17]. Malgré ces efforts, les technologies optiques ne permettent toujours pas de gains significatifs en sensibilité ou en fréquence par rapport aux capteurs piézoélectriques.

C'est avec l'arrivée des premiers lasers pulsés basés sur le blocage de mode³, dont les descendants seront les lasers femto-seconde dans les années 1980 que des progrès significatifs ont lieu.

En 1984, C. Thomsen et H.J. Maris exploitent cette nouvelle technologie et démontrent qu'il est possible de détecter des ondes mécaniques excitées par une impulsion laser avec une autre impulsion laser retardée [1]. L'utilisation d'un montage dit pompe-sonde permet de créer une onde acoustique très haute fréquence par brusque dilatation thermique d'une couche métallique brièvement éclairée par l'impulsion pompe de forte puissance ; tandis qu'une impulsion sonde de faible puissance vient mesurer les variations de propriétés optiques du matériau après un délai fixé par l'expérimentateur.

En 1986, une théorie des processus de génération et de détection dans les films métalliques complétée d'une étude de divers cas expérimentaux sera publiée par la même équipe [19]. Le groupe de H. J. Maris vient ainsi de fonder l'acoustique picoseconde.

Il en résultera un brevet industriel déposé aux États-Unis [20] sous la désignation "*Optical generator and detector of stress pulses*". Il faudra cependant attendre les développements industriels des lasers Titane-Saphir impulsionnels pour connaître l'essor commercial de cette méthode : c'est ainsi que la société Rudolph Technologie Inc. a développé un dispositif de mesure de couches d'épaisseur nanométrique. De nombreuses applications industrielles ont vu le jour en particulier dans le domaine de la nano-fabrication de composants électroniques tels que les microprocesseurs ou les mémoires informatiques nécessitant un contrôle précis de l'épaisseur des couches minces déposées sur les plaques⁴ de silicium.

2. Onde de Rayleigh

3. Logan Hargrove [18]

4. ou plus souvent appelées *Wafer*.



1.4 L'essor des techniques femtosecondes

Les lasers impulsionnels femtosecondes se sont rapidement répandus à de nombreux domaines scientifiques :

- Fusion par confinement inertiel (Projet Laser Mégajoule)
- La femtochimie permettant de suivre les mouvements atomiques mis en jeu lors d'une réaction chimique (Le prix Nobel de chimie 1999 a été décerné à A.H. Zewail pour ses travaux sur le sujet)
- L'imagerie à deux photons en microbiologie, permettant l'observation et la localisation de molécules fluorescentes avec une très grande précision au sein de cellules vivantes
- La photographie femtoseconde
- L'usinage industriel de pièces.

1.5 Les techniques d'acoustiques picosecondes

Trente années après son invention, la communauté scientifique s'est largement appropriée les techniques d'acoustique picoseconde. Vis à vis des transducteurs piézoélectriques, les avantages de l'acoustique picoseconde sont nombreux :

- L'absence de contacts mécaniques ouvrant de nombreuses possibilités aux tests non destructifs
- L'accès à de très hautes fréquences, jusqu'au térahertz alors que les transducteurs piézoélectriques sont limités au gigahertz
- Technique résolue temporellement et spatialement. L'absence de contact, et la possibilité de changer rapidement la position de la zone sondée permet de réaliser des cartographies spatiales de l'échantillon dont la résolution peut atteindre le micromètre

Les premières expériences d'acoustique picoseconde réalisées par Maris et ses collaborateurs ont été réalisées par mesure pompe-sonde en transmittance et réflectance[1]. Par la suite, le montage en réflectométrie fut plus communément utilisé. Il permet de mesurer les variations de réflectivité engendrées par une onde acoustique. Par la suite, un montage basé sur la déflexion du faisceau sonde fut mis au point par O. Wright et K. Kawashima [21] permettant de mesurer les déplacements de surface de films opaques (jusqu'à 0.1 THz). Cette technique possède une grande sensibilité aux inhomogénéités de surface jusqu'à l'échelle atomique.

Un autre montage basé sur l'interférométrie de deux faisceaux sondes, qui fut mis au point par B. Perrin en 1996, permet de mesurer les composantes réelles et imaginaires de la réflectivité. Les interféromètres de Mach-Zehnder et de Michelson sont utilisés dans un premier temps [22, 23], mais l'interféromètre de Sagnac [24, 25, 26, 27] sera retenu pour sa grande stabilité mécanique ; associé à une détection synchrone, ces dispositifs sont capables de mesurer des déplacements de surface de l'ordre de la dizaine de femtomètres.

Une autre amélioration consiste à coupler la technique pompe-sonde avec la microscopie optique en champ proche [28, 29] ; elle permet d'atteindre des résolutions spatiales de l'ordre de $\lambda/20$.

1.6 Applications de l'acoustique picoseconde

Diffusion thermique et photo-génération

Un des premiers axes de recherche fut la compréhension des phénomènes de génération. White et son modèle de génération photo-thermique [30] mena aux premières analyses expérimentales [19] dans les films minces (a-As₂Te₃, *cis*-polyacetylene). Les phénomènes de diffusion thermique et électronique furent ensuite étudiés par l'équipe de Maris [31, 32] dans des films d'aluminium, et par celle de Wright [33, 34, 35, 36] dans le chrome, l'argent et le cuivre.

Spectroscopie de nano-objet

La dimension des zones sondées (de l'ordre de quelques micromètres) avec les techniques d'acoustique picoseconde permet l'étude vibrationnelle de nano-objets. L'excitation des modes résonnants de systèmes nanostructurés font de l'acoustique picoseconde un outil de choix pour la spectroscopie vibrationnelle (étude des modes de résonance de poutres d'or, d'aluminium ou de cuivre suspendues ou non [32, 37, 38]). Plus récemment, L. Belliard a mis en évidence les modes de vibrations d'un nano fil de cuivre suspendu.

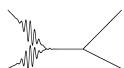
L'étude d'objets enfouis dans une matrice tels que des boîtes quantiques [39, 40] peut désormais se faire grâce à des techniques vibrationnelles d'acoustique picoseconde. Les boîtes quantiques sont directement excitées avec un laser impulsif, les vibrations émises seront ensuite détectées après propagation dans le substrat.

Multicouches métalliques et semi-conducteurs

Les premières études concernant les structures multi-couches ont été réalisées par Maris [41, 42]. Ces échantillons périodiques à base de *Ge/Si* ou de *Al/Ag* permettent de mettre en évidence des modes de surface vibrant à des fréquences de l'ordre de la centaine de gigahertz et de mesurer l'influence de l'état de surface sur ces modes.

Par la suite, des structures multicouches métalliques ont été étudiées à l'INSP par l'équipe de B. Perrin [43, 44] mesurant ainsi les propriétés élastiques de ces systèmes en fonction de la période. Premier pas vers les transducteurs opto-acoustiques très hautes fréquences, ces derniers ont permis d'atteindre des fréquences de 810 GHz pour un mode propagatif.

Ces dernière années, l'utilisation de semi-conducteur à base d'alliage d'arséniure de gallium/aluminium $Al_xGa_{1-x}As$ pour la fabrication de super-réseaux acoustiques s'est généralisée. *GaAs* et *AlAs* ont la propriété d'avoir une structure cristalline et un paramètre de maille presque identique permettant des opérations de croissance cristalline par épitaxie moléculaire. La fabrication de multicouches *GaAs/AlAs* [45, 46] couplée à des techniques d'acoustique picoseconde ont permis pour la première fois de générer des ondes mécaniques cohérentes se propageant sur de grandes distances dans le domaine du terahertz.



Non linéarité et solitons

Les déformations atteintes en acoustique picoseconde sont suffisantes pour déplacer les atomes sur des distances comparables aux distances inter-atomiques. Dans ces conditions, il est possible de sentir les effets de la non linéarité des forces inter-atomiques.

Maris et Hao montre en 2000 et 2001 la possibilité d'étudier les effets de la dispersion dans différentes structures cristallines telles que le silicium, le germanium, l'arséniure de gallium, le quartz et le saphir [47, 48].

Des solitons sont observés à la même période par Maris. Cette découverte ouvre la voie à l'étude expérimentale des non-linéarités au sein des structures cristallines. En 2004, des solitons acoustiques sont détectés dans l'oxyde de magnésium [49].

Les temps de vie de phonons dans le régime sub-terahertz

Bien que très longtemps balbutiantes, les mesures de temps de vie n'ont pas attendu l'avènement des techniques picosecondes pour exister. Les premières estimations remontent aux calculs de conductivité thermique⁵[50, 51, 52].

Les temps de vie des phonons de très basses énergies ont été étudiés par R.I. Cottam et G.A. Saunders [53] ; ces derniers ont mesuré l'atténuation ultra-sonore entre 2 K et la température ambiante sur une plage fréquentielle allant de 40 MHz à 320 MHz.

En acoustique picoseconde, la diffusion Brillouin permet de générer et détecter des trains d'onde dans des régimes de fréquences inatteignables par des techniques conventionnelles utilisant des transducteurs piézoélectriques ou des bolomètres⁶. La figure 1.1 est une représentation de la relation de dispersion dans l'arséniure de gallium en échelle logarithmique, les domaines fréquentiels atteints par les différentes techniques d'étude des phonons y sont représentés.

La diffusion Brillouin permet d'atteindre des fréquences d'une dizaine de gigahertz [55] mais nécessite des cristaux transparents pour mesurer précisément les temps de vie.

Les mesures via diffusion Raman font aussi parties des techniques disponibles pour évaluer les temps de vie [56]. Malgré la fiabilité des mesures, la diffusion Raman ne peut explorer la totalité de la zone de Brillouin.

Enfin, la diffusion de neutrons permettrait en principe de mesurer les temps de vie dans toute la zone de Brillouin, mais la précision de mesure a fortement limité cette approche.

Enfin, les techniques d'acoustique picoseconde utilisant des films minces comme transducteur opto-acoustique ont permis à Chen et Maris [57] de mesurer l'atténuation à 56 GHz dans l'arséniure de gallium.

Il fallut attendre l'utilisation de super-réseaux pour lever les limitations en fréquences des films minces et atteindre des fréquences de l'ordre du terahertz [46] et couvrir l'espace de la zone de Brillouin alors inaccessible pour les mesures d'atténuation (figure 1.1).

5. A basse température, la conductivité thermique fait intervenir le transport de chaleur via les phonons, et donc fait intervenir leur libre parcours moyen lié au temps de vie.

6. L'utilisation de bolomètres est envisageable à très basse température uniquement [54].

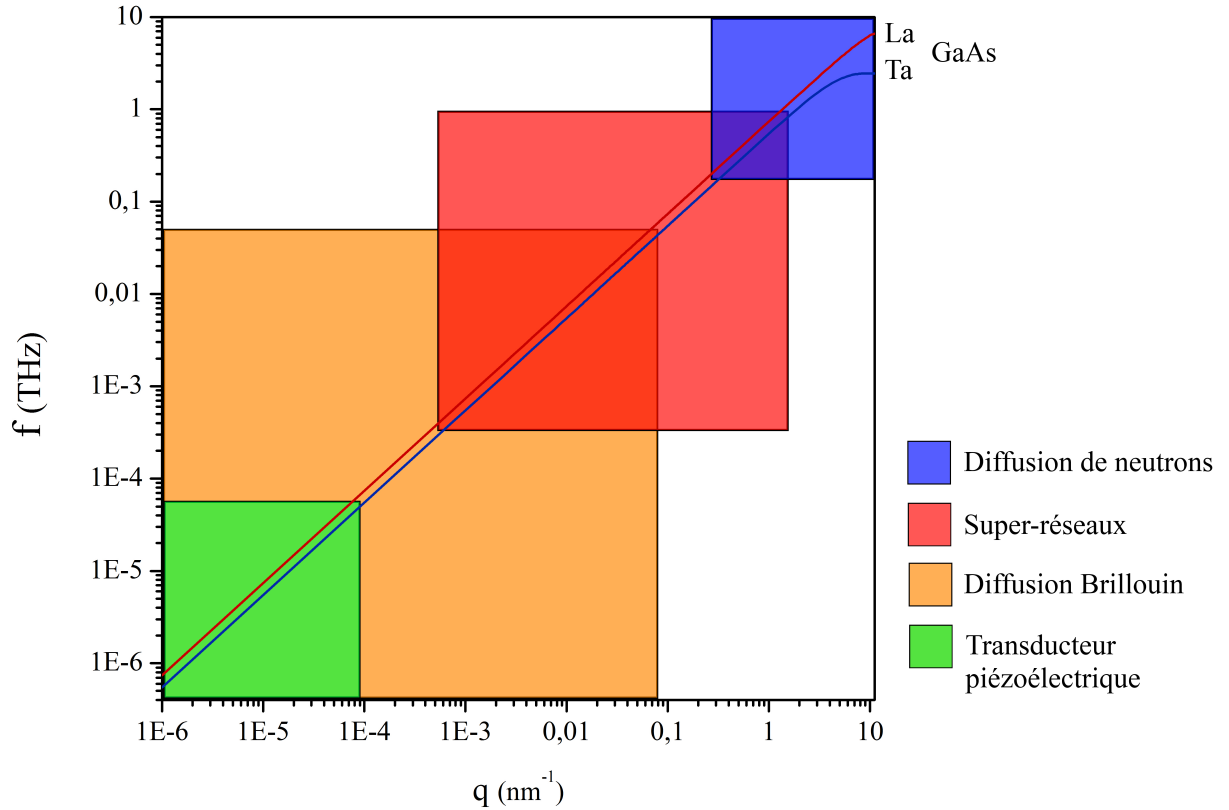


FIGURE 1.1 – Domaine fréquentiel atteint par les différentes techniques pour l'étude des phonons.

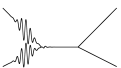
2 Guide de lecture

Deux parties largement indépendantes constituent ce manuscrit :

- les chapitres 2, 3, 4 et 5 constituent les développements théoriques et expérimentaux de l'acoustique picoseconde appliqués au multicouches de type *GaAs/AlAs*
- d'autre part, les chapitres 6, 7 et 8 concernent la théorie de l'atténuation ultrasonore dans l'approche de Landau-Rumer ainsi que les résultats expérimentaux au régime subterahertz de l'atténuation dans l'arséniure de gallium.

Le chapitre 2 est une introduction aux mécanismes sous-jacents de génération et de détection spécifique à l'acoustique picoseconde. Le mécanisme de déformation photo-thermique dans un milieu semi-infini y est décrit, ainsi qu'une expression de la variation relative de la réflectivité d'un milieu soumis à une perturbation mécanique.

Le chapitre 3 donne une description des techniques expérimentales d'acoustique picoseconde. En partant d'un schéma de montage pompe-sonde classique permettant des mesures de réflectivité, nous verrons comment l'utilisation d'un interféromètre de Sagnac



donne accès à la composante imaginaire de la variation de réflectivité. Un montage pompe-sonde dit asynchrone permettant de découpler les longueurs d'onde des faisceaux pompe et sonde y est décrit.

Les spécificités de la génération et de la détection au sein de multicouches sont développées dans le chapitre 4. Les super-réseaux possèdent des niveaux d'énergie électronique s'apparentant à ceux d'un puit quantique. La capacité de génération et de détection d'un super-réseau est fortement corrélée à ces niveaux d'énergie. Il y est présenté des résultats expérimentaux montrant le rôle de la longueur d'onde dans l'efficacité de transduction des super-réseaux.

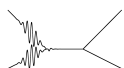
Le chapitre 5 est le dernier consacré aux super-réseaux. Il porte sur l'étude expérimentale d'un super-réseau placé dans une cavité acoustique ; cette dernière modifie largement les capacités de transduction opto-acoustique du super-réseau, rendant ce dernier bien plus efficace pour la génération et la détection d'échos acoustiques en réflexion. Cette structure possède une dépendance en longueur d'onde complexe : le rôle des longueurs d'onde sonde et pompe y est expérimentalement étudié.

La seconde partie de ce manuscrit concerne une des applications des techniques d'acoustique picoseconde : la mesure du temps de vie des phonons dans l'arséniure de gallium.

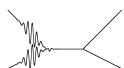
Un développement de la théorie de Landau-Rumer est donné au chapitre 6. Les processus d'interaction multi-phonons est au coeur de cette théorie. Les régimes de fréquences et températures explorés expérimentalement dans cette thèse nous permettent d'appliquer cette théorie dans le cadre de l'interaction à trois phonons. L'anisotropie cristalline ainsi que la dispersion jouent un grand rôle dans les règles de sélection. Couplant efficacement des phonons de basse énergie avec des phonons de haute énergie, le processus de Herring est dominant à basse fréquence mais possède un comportement inattendu à haute fréquence.

Les mesures expérimentales des temps de vie sont détaillées dans le chapitre 7. Les temps de vie sont reliés aux variations relatives de l'atténuation ultra-sonore en fonction de la température dans un régime de fréquences sub-terahertz et terahertz. Le comportement en fréquence présente une anomalie entre 0,7 THz et 1 THz.

Le dernier chapitre de ce manuscrit est consacré aux calculs d'atténuation dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer. L'utilisation de courbes de dispersion réalistes issues de calculs *ab initio* permet de rendre de compte de l'anomalie expérimentale observée dans le cadre simple des interactions à trois phonons.



Acoustique picoseconde dans les super-réseaux



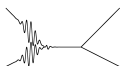
CHAPITRE 2

MODÈLES DE GÉNÉRATION ET DE DÉTECTION D'ULTRA-SONS AU MOYEN DE LASER IMPULSIONNEL

Sommaire

1	Modèle de génération photo-thermique	29
1.1	Hypothèses	29
1.2	Contrainte et équation de propagation d'une déformation générée par effet photo-thermique	31
1.3	Déplacement de surface issu d'une déformation générée par effet photo-thermique.	33
2	Le potentiel de déformation	33
2.1	Origine de la contrainte	33
2.2	Expression mathématique de la contrainte	35
3	Modèle de détection des ondes acoustiques	36
3.1	Déplacement de surface	37
3.2	Variation de réflectivité due à l'effet photo-élastique	37
3.3	Application au cas d'une déformation causée par un écho acoustique	40
4	Conclusion	41

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS



F. Herbert

Le temps s'étirait tout autour d'eux. La falaise semblait ne jamais grandir. Et celle qu'ils avaient quittée se dressait toujours au-dessus de leurs têtes.

Foum ! Foum ! Foum ! Foum !

Le bruit de tambour s'élevait de la falaise, derrière eux.

"Le marteleur", souffla Paul.

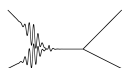
Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux mécanismes de génération et de détection d'ondes ultra-sonores dans les solides au moyen d'impulsions lasers femto-secondes.

Nous détaillerons deux processus de génération :

- L'absorption photo-thermique : la contrainte mécanique initiale est créée par échauffement du réseau cristallin sous l'effet du pulse laser. La dilatation ainsi occasionnée crée une contrainte se propageant dans le milieu sous forme d'onde mécanique.
- Le potentiel de déformation : la génération de la contrainte mécanique s'appliquant sur le réseau cristallin a pour origine une modification de population électronique sous l'effet d'une excitation par l'impulsion laser.

Le dernier point abordé concernera la détection. Nous y aborderons les mécanismes permettant de lier la variation de réflectivité à la propagation d'ondes élastiques.

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS



1 Modèle de génération photo-thermique

1.1 Hypothèses

La génération d'ondes ultra-sonores dans un métal se fait par éclaircissement de la surface par une impulsion électromagnétique ultra brève provoquant une déformation par dilatation thermique via l'absorption de cette impulsion.

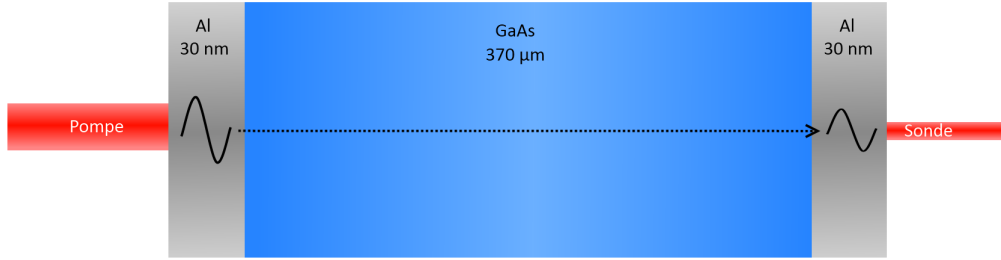


FIGURE 2.1 – Schéma de principe d'une mesure d'acoustique pico-seconde en transmission : l'onde est générée et détectée de part et d'autre de l'échantillon.

Nous allons fournir un modèle moyennant quelques hypothèses simplificatrices afin d'obtenir une solution analytique du phénomène.

- Le diamètre de la tache de focalisation du laser sur l'échantillon ($d_{\varnothing} = 50 \mu\text{m}$) est beaucoup plus grand que la longueur d'onde acoustique (pour 10 GHz dans l'arséniure de gallium $\lambda = \frac{v}{f} \approx 0,4 \mu\text{m}$) : les phénomènes de diffraction du faisceau d'onde acoustique sont donc négligés.
- L'impulsion laser est beaucoup plus courte que les échelles de temps caractéristiques des diffusions thermique et électronique (figure 2.2).
- L'impulsion laser est beaucoup plus courte que le temps d'établissement des régimes transitoires acoustiques.

Ces deux dernières approximations garantissent que l'énergie est instantanément déposée sur l'échantillon sur toute l'épaisseur de pénétration optique $\xi = \alpha^{-1}$ (approximation de Maris [19]). Le volume correspondant éclairé de l'échantillon est donc :

$$V_0 = \pi \frac{d_{\varnothing}^2}{4} \xi = \pi \frac{d_{\varnothing}^2}{4\alpha} = S\xi \quad (2.1)$$

Lorsqu'une impulsion électromagnétique d'énergie Q arrive sur l'échantillon, seule une partie $(1 - R)$ de l'énergie pénètre dans l'échantillon. De plus le milieu transparent absorbe

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

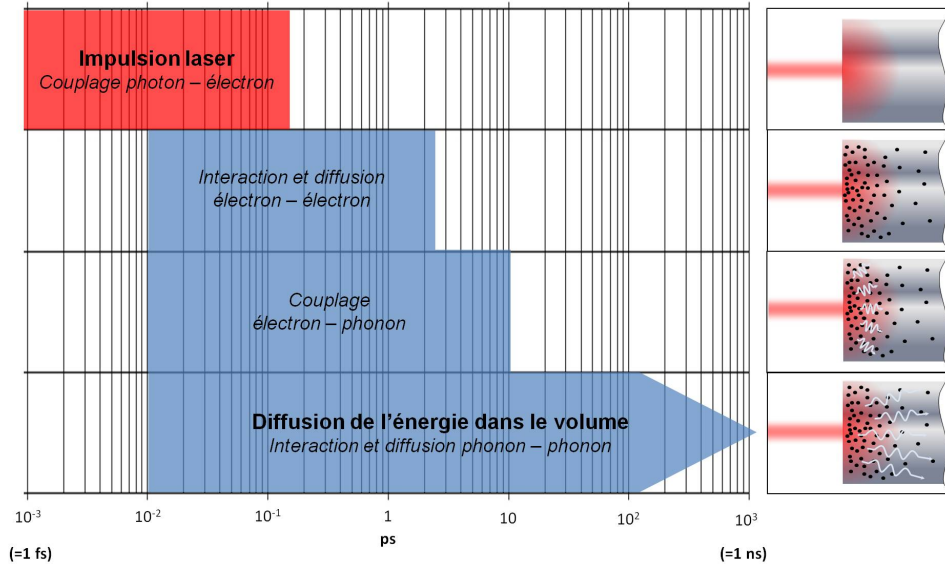


FIGURE 2.2 – Comparaison des ordres de grandeur des temps caractéristiques de dépôt (en rouge) et de diffusion (en bleu) de l'énergie dans un cristal pour différents processus d'interaction.

l'énergie suivant la loi de Beer-Lambert, la densité d'énergie volumique déposée est donc :

$$W(z, t) = \frac{Q(1 - R)e^{-z/\xi}}{V_0} H(t) \quad (2.2)$$

$H(t)$ est la fonction échelon de Heaviside, et représente le fait que l'énergie est déposée de manière instantanée et ne varie pas au cours du temps une fois déposée.

$$H(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } t < 0 \\ 1 & \text{si } t \geq 0 \end{cases} \quad (2.3)$$

R est le coefficient de réflexion en énergie, et est relié à l'indice optique complexe du milieu par :

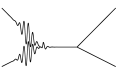
$$R = \frac{(n' - 1)^2 + n''^2}{(n' + 1)^2 + n''^2} \quad (2.4)$$

avec $n = n' + in''$

Cette absorption d'énergie par l'échantillon conduit à une augmentation de la température liée à la chaleur spécifique massique c_v ($J.kg^{-1}$) et la masse volumique ρ ($kg \cdot cm^{-3}$) par :

$$\Delta T(z, t) = \frac{W(z, t)}{\rho c_v} \quad (2.5)$$

L'élévation de température instantanée maximale du réseau peut être donnée en pre-



mière approximation par la relation suivante [58] :

$$\Delta T_{max} = \frac{E_{abs}}{S\xi\rho c_v} \quad (2.6)$$

Dans un semi-conducteur, il faut tenir compte de l'énergie du gap :

$$\Delta T_{max} = \frac{E_{abs} - E_g}{S\xi\rho c_v}, \quad (2.7)$$

avec E_{abs} l'énergie absorbée par l'échantillon. L'énergie par impulsion est de 1 nJ^1 . Le diamètre de la tâche de focalisation est d'environ $50 \mu\text{m}$ (figure 3.2). Sans tenir compte de la diffusion de la chaleur dans l'aluminium, l'élévation de température est donnée dans le tableau 2.1.

Matériau	$\xi = \alpha^{-1} \text{ (nm)}$	$\rho \text{ (kg.m}^{-3}\text{)}$	$c_v \text{ (J.K}^{-1}\text{.m}^{-3}\text{)}$	ΔT
Aluminium	12,2	2 699	4,0	30 K
Arséniure de gallium	650	5 320	5,6	$\sim 0,3 \text{ K}$

TABLE 2.1 – Comparaison des propriétés thermodynamiques d'un métal couramment utilisé pour la transduction opto-acoustique (aluminium) et d'un semi-conducteur.

1.2 Contrainte et équation de propagation d'une déformation générée par effet photo-thermique

La relation fondamentale de la dynamique appliquée aux milieux élastiques donne une relation entre le déplacement $u(\vec{r}, t)$ et la contrainte $\sigma(\vec{r}, t)$. Les grandeurs ne dépendent que de la coordonnée z spatialement.

$$\rho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \nabla \cdot \sigma = \frac{\partial \sigma}{\partial z} \quad (2.8)$$

Nous allons maintenant expliciter l'expression de σ . Dans un solide, une variation de température conduit à une variation de la pression interne via l'expression du coefficient de dilatation thermique :

$$\beta = \frac{1}{3B} \left(\frac{\partial P}{\partial T} \right)_T \quad (2.9)$$

où B est le module de compressibilité (GPa) et β la dilatation thermique linéaire (K^{-1}). A volume constant, l'expression intégrée de l'équation (2.9) s'écrit : $\Delta P = 3B\beta\Delta T$, ce qui équivaut à une contrainte d'origine thermique qui a l'expression :

$$\sigma_{th} = -3B\beta\Delta T \quad (2.10)$$

Cette contrainte peut se retrouver en prenant en compte des considérations microscop-

1. Pour une puissance pompe de 100 mW et un taux de répétition de 80 MHz

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

piques de variation de population de phonons en considérant l'anharmonicité des potentiels inter-atomiques du réseau atomique [59].

La contrainte totale au sein du matériau s'exprime comme la somme de la contrainte liée à la perturbation acoustique et de la contrainte thermique qui agit comme un terme source :

$$\sigma(z, t) = \sigma_{elas}(z, t) + \sigma_{th}(z, t) = \rho v^2 \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} - \rho v^2 \eta_0 e^{-\alpha z} H(t) \quad (2.11)$$

avec $\eta_0 = \frac{3\beta B(1-R)Q}{\rho v^2 c_v V_0}$

u est le déplacement acoustique, η_0 est un paramètre ayant la dimension d'une déformation et donnant l'amplitude de la déformation initiale, v ($nm \cdot ps^{-1}$) est la vitesse des ondes longitudinales du milieu considéré.

En introduisant cette contrainte dans la relation fondamentale de la dynamique (2.8), on obtient :

$$\frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = v^2 \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \sigma_{th}(z, t)}{\partial z} \quad (2.12)$$

Cette équation de propagation se résout aisément en la linéarisant par transformée de Fourier, puis en repassant l'expression de la déformation dans l'espace réel au moyen du théorème des résidus [60]. L'expression finale de $\eta = \frac{\partial u}{\partial z}$ est :

$$\eta(z, t) = \frac{\eta_0}{2} \left[(2 - e^{-\alpha vt}) e^{-\alpha z} - \text{sgn}(z - vt) e^{-\alpha |z - vt|} \right] \quad (2.13)$$

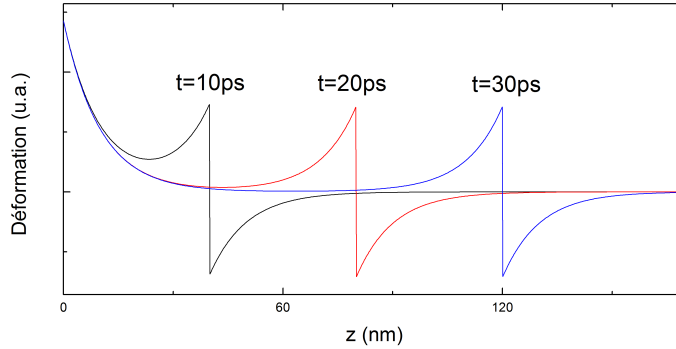
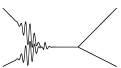


FIGURE 2.3 – profils de déformation à trois instants successifs en fonction de la profondeur dans le matériau ($\alpha = 0,1 / nm$)

Quand $t \rightarrow 0$, le profil de déformation devient nul ; en effet, l'échauffement venant de se produire, la variation de contrainte interne n'a pas encore affecté la déformation du milieu. Lorsque $\alpha vt \gg 1$, seul le premier terme de contrainte statique induit par l'élévation de température subsiste et persiste dans le temps puisque la diffusion thermique est négligée dans ce modèle. Le second terme, dont les arguments en $z - vt$ indiquent un phénomène propagatif, correspond à l'impulsion acoustique qui se propage dans le milieu.



1.3 Déplacement de surface issu d'une déformation générée par effet photo-thermique.

Dans ce paragraphe, nous allons calculer le déplacement de surface induit par la déformation calculée au paragraphe précédent sur la face arrière située à une distance d telle que $\alpha d \gg 1$.

Dans ces conditions, le profil de déformation ne contient plus que le terme de propagation :

$$\eta(z, t) = -\frac{\eta_0}{2} \operatorname{sgn}(z - vt) e^{-\alpha|z-vt|} \quad (2.14)$$

De plus, avec $u(z = \infty, t) = 0$:

$$u(z = d, t) = \int_{\infty}^d \eta(z, t) dz = -\frac{\eta_0}{\alpha} e^{-\alpha|d-vt|} \quad (2.15)$$

Ce qui donne en décalant l'origine des temps de $\frac{d}{v}$ (de façon à faire coïncider l'origine des temps avec le temps de vol de la déformation) :

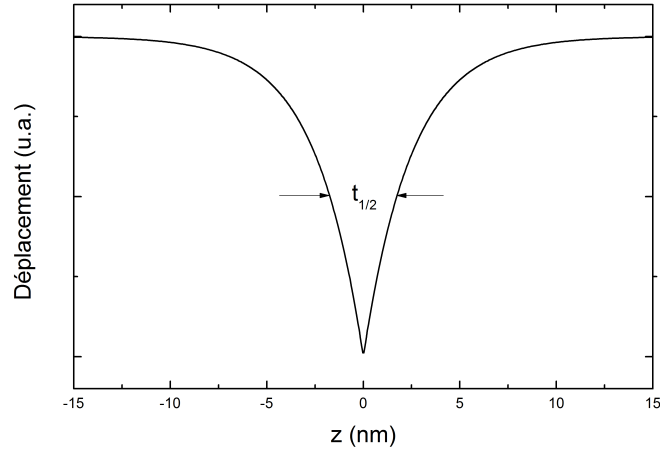


FIGURE 2.4 – Déplacement de la surface de l'échantillon en face arrière sous l'effet d'une excitation photo-thermique de la face avant.

La largeur à mi-hauteur est donnée par $t_{1/2} = \frac{2\ln(2)}{\alpha v}$. Ce qui donne, dans les métaux, quelques picosecondes comme ordre de grandeur de durée des impulsions acoustiques.

2 Le potentiel de déformation

2.1 Origine de la contrainte

Le potentiel de déformation est un mécanisme de génération de contraintes lié aux populations électroniques au sein du matériau. Là où l'effet photothermique nécessite

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

l'échauffement du réseau cationique pour obtenir des populations de phonons hors équilibre responsables d'une augmentation de la pression interne, le potentiel de déformation peut générer une contrainte sans élévation notable de température [61, 62].

La densité et l'énergie électronique d'un cristal sont directement liées à sa structure (type de maille, symétries, distances inter-atomiques, potentiels inter-atomiques etc.). Un changement de structure (substitution d'atome, contraintes extérieurs par exemple) modifiera la structure énergétique des niveaux électroniques. A l'inverse, une modification de cette structure électronique, même hors équilibre, par excitation des électrons par un rayonnement électromagnétique dans des niveaux d'énergie plus élevés va influencer sur la structure du réseau via l'apparition d'une contrainte interne menant à sa dilatation ou sa contraction. La structure électronique est inter-dépendante de la structure du réseau cationique.

Comme analogie, nous pouvons prendre l'exemple d'une molécule de diazote. Dans le cas d'une molécule diatomique, l'occupation d'orbitale liante et anti-liante va conditionner la force et donc la distance des atomes au sein de la molécule. Dans le cas de l'azote un électron peut être excité vers une orbitale de plus haute énergie, s'il s'agit d'une orbitale liante la molécule se contractera ; dans le cas d'une orbitale anti-liante la molécule se dilatera (figure 2.5).

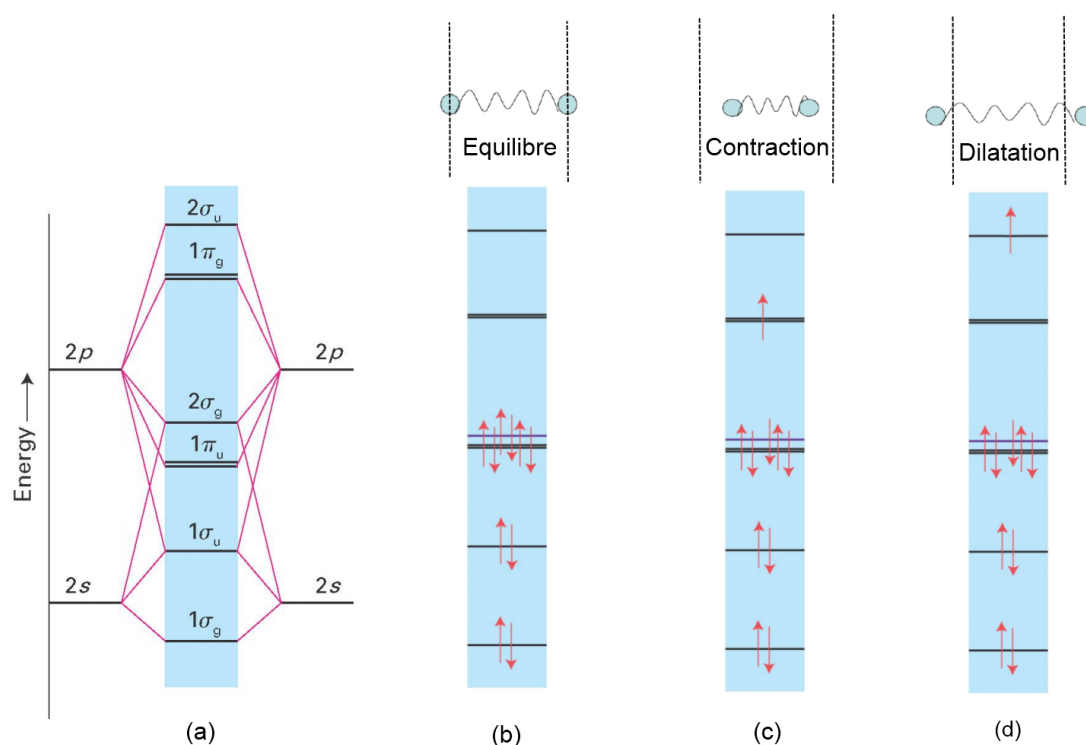
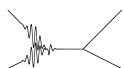


FIGURE 2.5 – Diagramme énergétique de N_2 . (a) est le schéma de couplage des orbitales atomiques $2s$ et $2p$ de l'azote au sein de la molécule. (b) est la structure électronique de plus basse énergie. (c) et (d) correspondent respectivement à la promotion d'un électron dans les orbitales liantes $1\pi_g$ et anti-liante $2\sigma_u$.



Cette analogie explique très qualitativement les processus mis en œuvre au sein de cristaux présentant des bandes d'énergie électroniques pour générer des contraintes structurales via l'excitation dans des niveaux électroniques d'énergie supérieure.

2.2 Expression mathématique de la contrainte

Une population électronique² mise hors équilibre par une impulsion laser sera une autre source de contrainte. D'après Maris [19][63] l'expression de la contrainte s'écrit :

$$\sigma_{ij} = \sum_{\mathbf{k}} \delta n_e(\mathbf{k}) \frac{\partial E_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}} \quad (2.16)$$

avec δn_e la variation électronique par rapport à la distribution à l'équilibre à l'énergie E_k . $\frac{\partial E_{\mathbf{k}}}{\partial \eta_{ij}}$ est le potentiel de déformation traduisant le lien entre population électronique hors équilibre et contrainte.

Dès lors que l'impulsion laser a transmis son énergie aux porteurs, les électrons sont envoyés vers des niveaux d'énergie plus élevés. Dans le cas de semi-conducteur, il s'agit de la bande de conduction, dans laquelle ils vont relaxer jusqu'en bas de la bande et rester dans un état méta-stable.

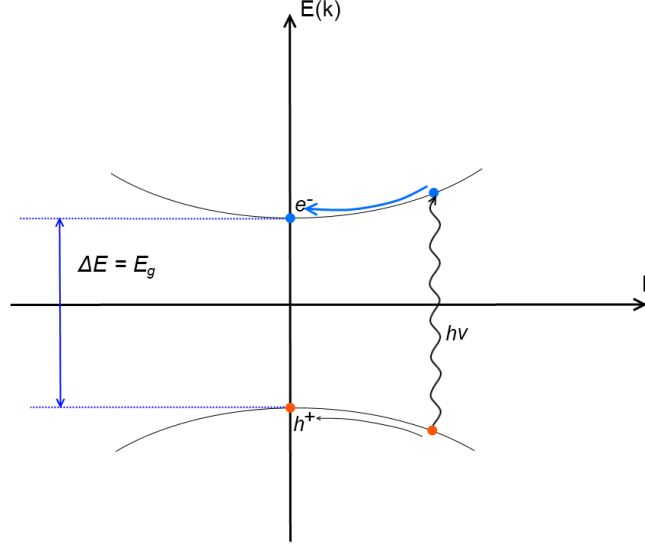


FIGURE 2.6 – Schéma des niveaux d'énergie d'un semi-conducteur gap direct E_g , avec formation d'une paire électron-trou, puis relaxation dans un état méta-stable en bas (ou haut) de la bande de conduction (de valence).

2. Il existe une contrainte provenant de la population de trous hors équilibres qui a exactement la même expression.

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

Dans ces conditions, l'expression de la contrainte devient :

$$\sigma_{ij} = \sum_k \delta n_e(k) \frac{\partial E_g}{\partial \eta_{ij}} \doteq -B \frac{\partial E_g}{\partial P} \delta_{ij} \delta n_e \quad (2.17)$$

Avec P la pression interne, E_g l'énergie du gap. δn_e est équivalente à la densité d'électrons photo-excités N_e ³. Il est possible d'exprimer cette relation avec les coefficients de Grüneisen : $\gamma_k = \frac{1}{E_k} \frac{\partial E_k}{\partial \eta}$; la contrainte devient alors :

$$\sigma_{ij} = \gamma_g E_g N_e \quad (2.18)$$

La particularité de cette contrainte est qu'elle provient d'une population électronique hors équilibre, et donc le profil de déformation -qui suit le profil des porteurs de charge photo-excités diffusant bien plus rapidement que la chaleur [61, 62]- s'étalera sur des distances plus grandes que la contrainte d'origine photo-thermique.

Le point le plus notable est la possibilité pour les coefficients de Grüneisen d'être négatifs. Là où une élévation de température dilate le cristal la plupart du temps⁴, la contrainte issue du potentiel de déformation peut contracter ou dilater le cristal.

En supposant que le profil de la densité d'électrons photo-induits suit toujours une décroissance exponentielle (type loi de Beer-Lambert), les profils de contraintes et de déformations seront sensiblement identiques à ceux calculés dans la partie précédente.

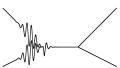
3 Modèle de détection des ondes acoustiques

Le développement principal de cette partie concerne la détection d'un champ acoustique avec une impulsion électromagnétique. Le champ acoustique étudié est une onde acoustique de polarisation longitudinale agissant comme une déformation du milieu dans la direction de propagation (compression, décompression du milieu suivant l'axe z uniquement).

La déformation du milieu causée par la propagation de l'onde acoustique est la cause de deux phénomènes détectables par des méthodes optiques. Cette déformation va provoquer un déplacement de surface occasionnant un déphasage de l'onde électromagnétique par changement de chemin optique. D'autre part, le champ de déformation va modifier les propriétés physiques de l'échantillon, en particulier la permittivité diélectrique induisant un changement d'indice optique sur le passage de l'onde. Ces changements de propriétés optiques d'un milieu sous contrainte mécanique sont appelés effet photo-élastique et permettent donc le couplage d'une onde mécanique avec une onde électromagnétique.

3. $N_e = \frac{W_{impulsion}}{V h \nu}$

4. Certains matériaux possèdent un coefficient de dilatation thermique négatif. L'eau entre 0°C et 4°C présente une anomalie dilatométrique.



3.1 Déplacement de surface

Le lien entre l'amplitude du champ électromagnétique incident E_i et réfléchi E_r est donné par le coefficient de réflectivité r via la relation $E_r = rE_i$. Dans le cas d'une surface non perturbée, r est défini par l'indice complexe n du milieu : $r = \frac{1-n}{1+n}$.

Lors du passage d'une onde acoustique, l'interface air-milieu va se déplacer d'une quantité $u(z=0, t)$ induisant un déphasage ϕ de l'onde électromagnétique par rapport à l'interface non perturbée :

$$\phi = 2k_0 u(0, t) \quad (2.19)$$

avec k_0 le vecteur d'onde électromagnétique dans le vide.

Le coefficient de réflectivité perturbé s'écrit alors $r = r_0 e^{i\phi}$. Les déplacements d'interface (de l'ordre du picomètre) sont très petits devant la longueur d'onde optique (rouge, proche infra-rouge $\lambda \approx 1\mu m$). Il est donc possible de faire un développement limité à l'ordre 1 du coefficient de réflectivité : $r = r_0(1 + i\phi)$.

La contribution du déplacement de surface au changement de réflectivité s'écrit donc :

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{r_0(1 + i\phi) - r_0}{r_0} = i\phi = 2ik_0 u(0, t) \quad (2.20)$$

La variation relative de réflectivité est imaginaire pure dans le cas d'un simple déplacement de surface. Expérimentalement avec la plupart des échantillons, seuls les montages interférométriques permettent d'avoir accès à la partie imaginaire de $\frac{\Delta r}{r}$ ⁵.

3.2 Variation de réflectivité due à l'effet photo-élastique

Contrairement au déplacement de surface, qui est un effet purement mécanique, le passage d'une onde élastique peut modifier la réponse optique du milieu via les coefficients diélectriques. Historiquement, les changements de propriétés diélectriques d'un matériau soumis à un champ de déformation η étaient définis grâce au tenseur élasto-optique de Pockels p_{ijkl} donnant la variation $\delta\kappa$ du tenseur d'impermittivité κ ⁶ :

$$\Delta\kappa_{ij} = p_{ijkl}\eta_{kl} \quad (2.21)$$

En 1970, Nelson et Lax [64] ont montré qu'il était nécessaire de prendre en compte le gradient du déplacement $\frac{\partial u_k}{\partial x_l}$ pour décrire les variations de κ . Il faut alors utiliser le tenseur de Nelson et Lax :

$$\Delta\kappa_{ij} = P_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} \quad (2.22)$$

Le lien entre une perturbation du tenseur d'impermittivité κ et la perturbation du

5. Détaillé au chapitre 3 en page 54

6. Au tenseur ε de permittivité du milieu est associé un tenseur d'impermittivité défini par : $\varepsilon_{ij}\kappa_{jk} = \delta_{ik}$.

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

tenseur de permittivité ε associé se déduit de la relation :

$$I = \delta_{ij} = \varepsilon \kappa = (\varepsilon + \Delta\varepsilon)(\kappa + \Delta\kappa) \simeq \varepsilon \kappa + (\delta\varepsilon)\kappa + \varepsilon(\Delta\kappa) + \dots \quad (2.23)$$

D'où $\Delta\varepsilon = -\varepsilon(\Delta\kappa)\varepsilon$

En substituant dans (2.22), en tout point de l'échantillon :

$$\Delta\varepsilon_{ij}(z, t) = -\varepsilon_{ik} P_{klmn} \varepsilon_{lj} \frac{\partial u_m}{\partial x_n}(z, t) \quad (2.24)$$

La géométrie du problème est unidimensionnelle, seule la composante $\frac{\partial u_3}{\partial x_3} = \eta_{33}$ du tenseur des contraintes suivant z est à prendre en compte. De plus dans le cas d'un échantillon isotrope, ou de symétrie $m3m$ le tenseur diélectrique est diagonal :

$$\Delta\varepsilon(z, t) = -\varepsilon^2 P_{13} \eta(z, t) \quad (2.25)$$

En l'absence d'onde acoustique, l'amplitude du champ réfléchi et transmis ne dépend que de l'indice n du milieu et est donnée par les coefficients de Fresnel. Les champs électromagnétiques de part et d'autre d'une interface sont donnés par les relations suivantes :

$$\begin{aligned} r_{gd} &= \frac{n_g - n_d}{n_g + n_d} \\ t_{gd} &= \frac{2n_g}{n_g + n_d} \end{aligned} \quad (2.26)$$

De part et d'autre de l'interface, les champs électromagnétiques $E_{g,d} = a_{g,d}e^{ikz} + b_{g,d}e^{-ikz}$ sont donnés par la relation matricielle suivante :

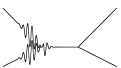
$$\begin{pmatrix} a_g \\ b_g \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{gd}} \begin{pmatrix} 1 & r_{gd} \\ r_{gd} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_d \\ b_d \end{pmatrix} \quad (2.27)$$

De même, une propagation au sein d'une couche d'épaisseur d s'écrit sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} a_g \\ b_g \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{-iknd} & 0 \\ 0 & e^{iknd} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_d \\ b_d \end{pmatrix} \quad (2.28)$$

Une déformation acoustique peut se schématiser sous la forme d'une perturbation d'épaisseur dz situé à une profondeur z dans l'échantillon. Ainsi, le champ électromagnétique va successivement traverser les couches et interfaces suivantes (figure 2.7) : interface air-échantillon, milieu non perturbé sur une épaisseur z , interface milieu non perturbé-milieu perturbé (saut d'indice $n \rightarrow n + \Delta n$), milieu perturbé d'indice $n + \Delta n$, interface milieu perturbé-milieu non perturbé, traversé d'un milieu non perturbé d'indice n .

En reliant avec le formalisme des matrices de transferts le champ électromagnétique à la surface de l'échantillon avec le champ en profondeur pour la configuration décrite à



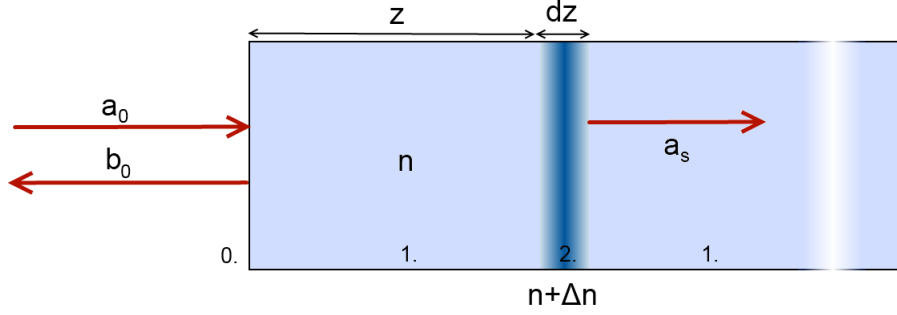


FIGURE 2.7 – Interaction d'un champ électromagnétique avec une perturbation acoustique située en z . L'onde électromagnétique se propage dans des épaisseurs d'indice variable. 0. est le milieu extérieur d'indice $n = 1$, 1. est le milieu d'indice n et 2. est le milieu perturbé d'indice $n + \Delta n$.

la figure 2.7 :

$$\begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{01}t_{12}t_{21}} \begin{pmatrix} 1 & r_{01} \\ r_{01} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-iknz} & 0 \\ 0 & e^{iknz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & r_{12} \\ r_{12} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-ik(n+\Delta n)dz} & 0 \\ 0 & e^{ik(n+\Delta n)dz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & r_{21} \\ r_{21} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

avec $r_{21} = \frac{\Delta n}{2n + \Delta n}$ et $\Delta n = \frac{\Delta \varepsilon}{2n}$. Le terme b_s est nul puisque le milieu est considéré comme semi-infini, aucune onde électromagnétique ne revient de l'arrière de l'échantillon.

La réflectivité totale est définie par la relation $r = \frac{b_0}{a_0}$, en utilisant l'équation (2.29) :

$$r(z) = \frac{(r_{01}e^{-iknz} - r_{21}e^{iknz})e^{-ik(n+\Delta n)dz} + r_{21}(e^{iknz} - r_{01}r_{21}e^{-iknz})e^{ik(n+\Delta n)dz}}{(e^{-iknz} - r_{01}r_{21}e^{iknz})e^{-ik(n+\Delta n)dz} + r_{21}(r_{01}e^{iknz} - r_{21}e^{-iknz})e^{ik(n+\Delta n)dz}} \quad (2.30)$$

Un développement limité de $r(z)$ conduit à

$$r(z, t) = r_{01} + ik(1 - r_{01}^2)e^{2iknz}\Delta n(z, t)dz \quad (2.31)$$

La variation de réflectivité infinitésimale est donc définie par :

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{r(z, t) - r_{01}}{r_{01}} = ik \frac{1 - r_{01}^2}{r_{01}} e^{2iknz} \Delta n(z, t)dz \quad (2.32)$$

La contribution totale de l'effet photo-élastique à la variation relative de réflectivité est obtenue en intégrant la déformation sur toute la longueur du matériau :

$$\left. \frac{\Delta r(z, t)}{r} \right|_{\text{phot.élas.}} = ik \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{2(1 + n^2)}{(1 - n)^2} \int_0^{+\infty} \eta(z, t) e^{2iknz} dz \quad (2.33)$$

CHAPITRE 2. GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'ULTRASONS

L'expression complète de la variation de réflectivité induite par un champ acoustique a donc pour expression :

$$\frac{\Delta r(z, t)}{r} = ik \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{2(1+n^2)}{(1-n)^2} \int_0^{+\infty} \eta(z, t) e^{2iknz} dz + 2iku(0, t) \quad (2.34)$$

3.3 Application au cas d'une déformation causée par un écho acoustique

Une impulsion acoustique générée à la surface de l'échantillon va, après propagation, se réfléchir sur la face arrière de l'échantillon pour revenir à la surface. Un faisceau laser peut donc détecter cette déformation acoustique lorsqu'elle s'approche et s'éloigne de la surface. Les expressions (2.15) et (2.14) donnent le déplacement et la déformation de surface de l'écho, en utilisant l'expression (2.34) :

$$\frac{\Delta r(t)}{r} = -\frac{2ik_0\eta_0}{\alpha} \left[e^{-\alpha v|t|} - \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{\alpha(1+n^2)}{2(1-n)^2} \times \int_0^\infty \left(e^{-\alpha|z-vt|} \text{sgn}(z-vt) + e^{-\alpha|z+vt|} \text{sgn}(z+vt) \right) e^{2iknz} dz \right] \quad (2.35)$$

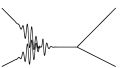
Après intégration :

$$\frac{\Delta r(t)}{r} = -\frac{2\eta_0 k_0 e^{-\alpha v|t|}}{\alpha} \left[i + \gamma e^{i\theta} \left((r+i) e^{ir\alpha v|t|} - i \right) \right] \quad (2.36)$$

avec $r = \frac{n'}{n''}$ et $\gamma e^{i\theta} = \frac{2nn''^2}{n'(1-n^2)(2n-n')} \frac{\partial n}{\partial \eta}$

Pour des valeurs $n = 5,4 + i 3,22$ et $\frac{\partial n}{\partial \eta} = -0,8 + i 0,03$, les parties imaginaires et réelles de $\frac{\Delta r}{r}$ sont données à la figure 2.8.

Dans le cas d'une grande longueur de pénétration optique, des oscillations dont la fréquence est définie par la règle de sélection $q = 2k$ apparaissent en plus grand nombre.



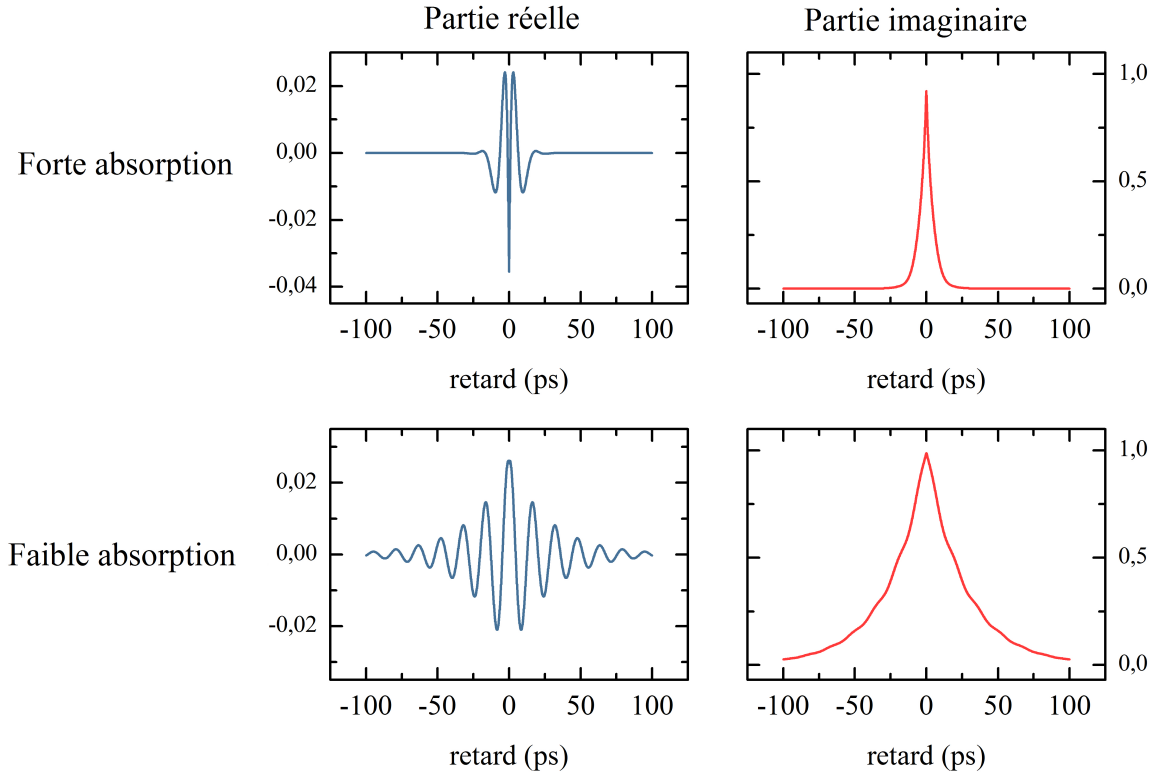
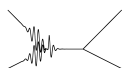


FIGURE 2.8 – Partie réelle et imaginaire de la variation de réflectivité $\frac{\Delta r}{r}$ pour une faible et une forte absorption optique.

4 Conclusion

Ces modèles de génération et détection des ondes acoustiques au moyen de lasers pulsés permettent simplement d'appréhender les mécanismes de base en jeu en acoustique picoseconde. Les contributions de la diffusion thermique ou électronique ne sont pas prises en compte ; cependant ces modèles permettent de rendre compte des phénomènes observés en réflectométrie ou en interférométrie. La génération et la détection au sein de couches minces permet d'atteindre une gamme de fréquences de quelques centaines de gigahertz [65]. Dans la suite de ce manuscrit, nous nous sommes principalement penchés sur la génération et la détection au moyen de multicouches semiconducteurs. Les mécanismes de génération et de détection sont de natures différentes et conduiront dans le cas de multicouches à des règles de sélection spécifiques à ces structures.

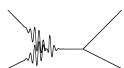


CHAPITRE 3

DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Sommaire

1	Instruments utilisés	47
1.1	Laser femtoseconde	47
1.2	Cube séparateur	47
1.3	Modulation acousto-optique	48
1.4	Détection synchrone	49
1.5	Ligne à retard	50
1.6	Pont de diodes	50
1.7	Spectroscope	51
1.8	Schéma de principe d'une expérience pompe-sonde	51
2	Mesure en réflectométrie	53
3	Mesure en interférométrie	54
4	Asynchrone	56
5	Conclusion	59



F. Herbert

Marteleur : tige munie d'un ressort et destinée à produire un bruit sourd et rythmé dans le sable afin d'attirer le shai-hulud.

Les expériences d'acoustique picoseconde reposent sur la technique des montages pompe-sonde permettant de résoudre en temps des phénomènes physiques ultra-rapides.

La génération et la détection d'ondes acoustiques sont réalisées au moyen de lasers impulsions. Une déformation du matériau est provoquée par l'impulsion pompe de forte puissance absorbée sur un échantillon. Ce phénomène acoustique à l'origine de contraintes mécaniques au sein du matériau va induire une variation locale d'indice optique à l'origine d'une variation de réflectivité mesurable au moyen d'une seconde impulsion laser de faible puissance et appelée "sonde".

Ce couple d'impulsions permet donc de générer et détecter des phénomènes acoustiques au sein de cristaux, de matériaux amorphes, de nanoparticules, etc.

Les impulsions pompe et sonde sont séparées en sortie de laser au moyen d'un cube séparateur polarisant¹; une lame demi-onde permet de répartir l'énergie entre les voies pompe et sonde de façon à obtenir un rapport de puissance important entre le faisceau sonde et pompe. Les impulsions pompe et sonde sont ensuite décalées temporellement au moyen d'une ligne à retard, permettant de contrôler précisément le retard temporel de l'impulsion sonde par rapport à la pompe.

Les variations de réflectivité $\frac{\Delta r}{r}$ observées sont très faibles. Un système de détection synchrone permet d'atteindre des sensibilités allant jusqu'à 10^{-7} .

1. Les deux impulsions sont donc corrélées temporellement.

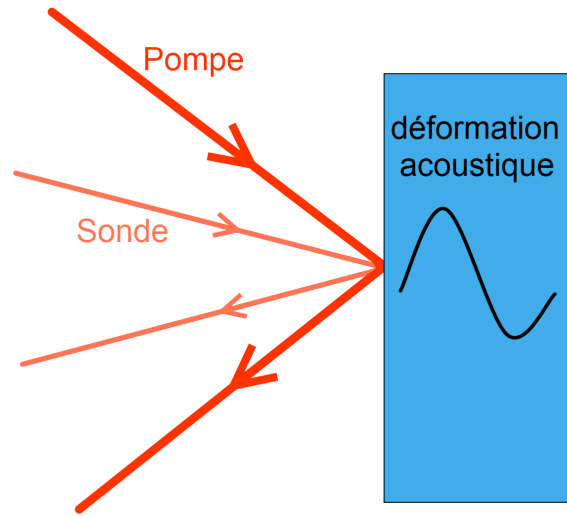
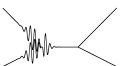


FIGURE 3.1 – Schéma de principe d'une expérience pompe-sonde avec mesure de réflectivité au moyen de laser femtoseconde.

Le fonctionnement des instruments nécessaires pour réaliser une expérience d'acoustique ultra-rapide est décrit dans la suite de ce chapitre. Nous détaillerons les différentes méthodes de mesure utilisées. La méthode pompe-sonde en réflectométrie fut utilisée par H. J. Maris en 1984. Il démontra la possibilité de générer et de détecter des ondes acoustiques avec un laser impulsionnel en mesurant les variations de réflectivité de la sonde [1, 19]. Le principe de mesure en réflectométrie fait que la sonde n'est sensible qu'aux variations d'indice, c'est à dire à la partie réelle de la réflectivité. Les déplacements d'interfaces quant à eux sont en général mesurés avec une méthode interférométrique sensible à la partie imaginaire de la réflectivité mise au point par B. Perrin [22].



1 Instruments utilisés

1.1 Laser femtoseconde

La source laser utilisée est un laser impulsionnel délivrant des impulsions de 120 fs à une fréquence allant de 78 MHz à 82 MHz. l'oscillateur titane-saphir est pompé par un laser à cristal de vanadate émettant à 532 nm d'une puissance de 15 W. En sortie, la puissance nominale du laser est de 3,2 W pour une longueur d'onde de 800 nm. L'énergie moyenne par impulsion est d'environ 40 nJ. Une cale piézoélectrique permet de varier la longueur de la cavité laser de l'oscillateur titane-saphir, et permet donc de changer le taux de répétition de ce dernier. La cavité permet d'accéder en mode bloqué² à un domaine spectral allant de 690 nm (1,80 eV) à 1 064 nm (1,17 eV)³.

Une lentille de focale 50 mm est utilisée pour focaliser le faisceau sur l'échantillon. La tâche focale obtenue a environ 50 μm de diamètre comme le montre la figure 3.2 obtenue avec un analyseur de faisceau.

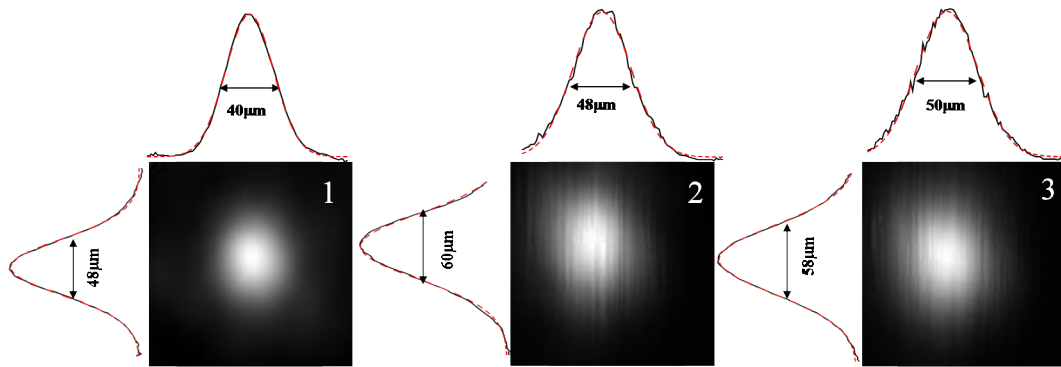


FIGURE 3.2 – Tâche focale d'un faisceau gaussien focalisé au moyen d'une lentille de focale 50 mm. La largeur à mi hauteur du profil gaussien du faisceau est reportée sur les côtés des figures.

1.2 Cube séparateur

En sortie de laser, le faisceau polarisé verticalement est séparé en deux faisceaux de polarisations linéaires croisées au moyen d'un cube séparateur. Une lame demi-onde placée en amont du cube permet de répartir l'énergie entre les deux voies. Les énergies sur les deux voies sont réparties de façon à obtenir le maximum de puissance admissible en entrée de modulateur acousto-optique, c'est à dire 1 W.

2. Lorsque le laser fonctionne en régime pulsé.

3. Les longueurs d'onde au delà de 870 nm nécessitent de purger la cavité à l'azote afin de maintenir le laser en mode bloqué. A ces longueurs d'onde, certaines raies d'absorption de l'eau commencent à perturber la cavité laser.

CHAPITRE 3. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Au niveau de l'échantillon, les puissances obtenues sont de l'ordre de 1 mW à 15 mW pour le faisceau sonde et de 20 mW à 400 mW pour le faisceau pompe ; cette dernière est ajustée au moyen du modulateur acousto-optique.

La puissance du faisceau sonde est ajustée de sorte à rester sous le seuil de saturation du pont de diodes, tandis que la puissance du faisceau pompe est prise en général dans une gamme où la réponse de l'échantillon est dans un régime linéaire vis à vis de la déformation acoustique générée.

1.3 Modulation acousto-optique

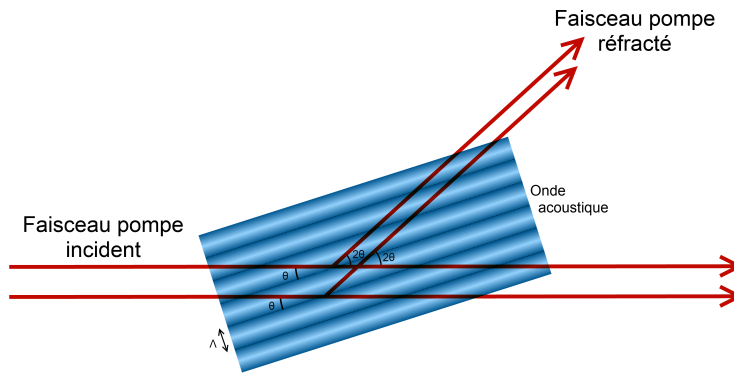


FIGURE 3.3 – Schéma de principe du modulateur acousto-optique. Le faisceau incident est diffracté par une onde acoustique. Un générateur de fonction asservi à la détection synchrone permet de moduler l'ordre 1.

Le bruit propre du laser provoquant des variations d'intensité du faisceau associé aux faibles valeurs de la variation relative de réflectivité issue du passage d'une onde acoustique nécessite l'utilisation d'une détection synchrone. Ce schéma de mesure permet de s'affranchir du bruit basse et haute fréquence.

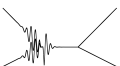
Le faisceau pompe peut-être modulé à 100 % pour un maximum d'efficacité ; la détection synchrone est ensuite verrouillée sur la fréquence de modulation du faisceau pompe.

La modulation est réalisée au moyen d'un modulateur acousto-optique, agissant comme un hacheur optique très haute fréquence. Le modulateur acousto-optique est composé d'un cristal parcouru par une onde acoustique à 200 MHz et de longueur d'onde Λ . Le passage de l'onde acoustique va provoquer des variations périodiques de l'indice optique agissant comme un réseau diffractant tant que l'onde acoustique est présente dans le cristal.

En sortie du modulateur acousto-optique, le faisceau laser est diffracté selon différents ordres n (figure 3.3). Les conditions de diffraction dans un réseau sont données par la relation [66] suivante :

$$\sin \theta = n \frac{\lambda}{2\Lambda} \quad (3.1)$$

L'onde acoustique servant à créer le réseau de diffraction est elle-même modulée par



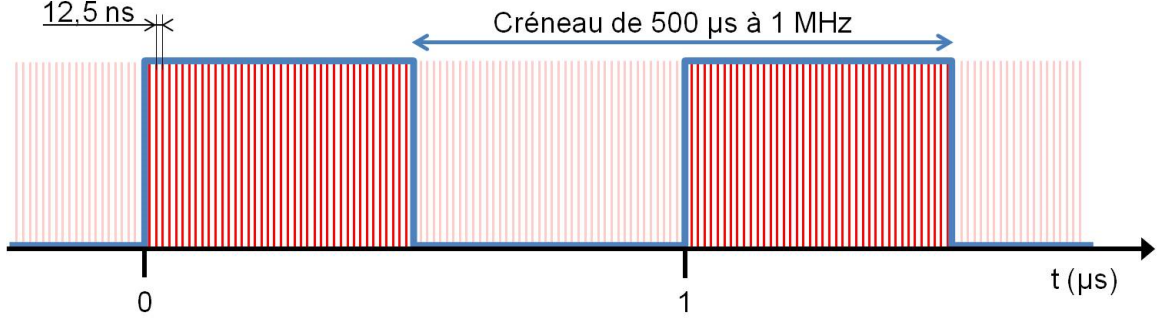


FIGURE 3.4 – Schéma du train d'impulsions en sortie du modulateur acousto-optique.

une enveloppe en créneau à la fréquence de modulation de la détection synchrone (figure 3.4).

1.4 Détection synchrone

La détection synchrone est une technique expérimentale destinée à extraire un signal physique du bruit de mesure. Ce dispositif est nécessaire en acoustique picoseconde où les variations relatives de réflectivité sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-7} ; il permet de minimiser l'influence du bruit en optimisant le rapport signal sur bruit.

La détection synchrone repose sur la modulation du signal source⁴ de sorte à déplacer le signal dans une zone fréquentielle de faible bruit. Le signal mesuré est ensuite filtré à la même fréquence de modulation Ω_{ds} .

Le signal mesuré par la photodiode a pour expression :

$$V = rI_s = (r_0 + \Delta r(\Omega_{ds}t)) I_s$$

La variation de réflectivité Δr est corrélée au signal acoustique créé par l'impulsion pompe qui est modulée à Ω_{ds} .

Le signal est ensuite multiplié par une porteuse de fréquence Ω_{ds} :

$$r \cos(\Omega_{ds}t) = r_0 \cos(\Omega_{ds}t) + \Delta r(2\Omega_{ds}t) + \Delta r(0)$$

Le produit de deux fonctions périodiques de fréquence Ω_{ds} donne une fonction de fréquence double, et une composante continue $\Delta_r(0)$. Par conséquent, le signal moyenné a pour expression :

$$\langle r \cos(\Omega_{ds}t) \rangle = \Delta r(0) \quad (3.2)$$

La détection se fait au moyen d'un pont de diodes permettant d'extraire la différence des deux voies de mesure⁵. La détection synchrone fournit alors deux grandeurs

4. ici le faisceau pompe est modulé par un créneau de période $T = 1$ ms

5. Dans le cas d'une mesure par réflectométrie, une voie mesure le signal, l'autre sert de référence.

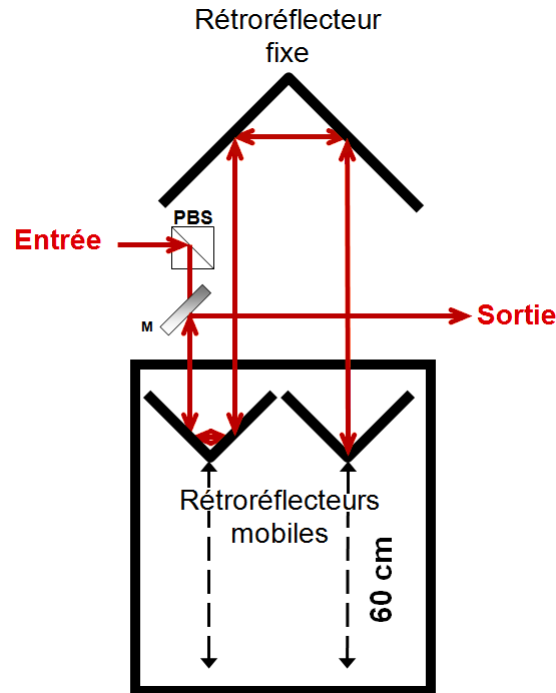


FIGURE 3.5 – Schéma de principe de la ligne à retard. Trois aller-retours sont nécessaires pour couvrir la plage temporelle séparant deux impulsions laser à 80 MHz.

correspondant à la partie réelle et imaginaire du signal.

$$\begin{cases} X = V_a V_b \cos(\phi_a - \phi_b) \\ Y = V_a V_b \sin(\phi_a - \phi_b) \end{cases} \quad (3.3)$$

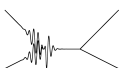
La phase du signal acoustique mesurée dépend de la distance parcourue par l'onde. Concernant l'étude d'échos acoustiques, il est ainsi possible de discriminer entre eux les échos par mesure de leur phase relative.

1.5 Ligne à retard

La ligne à retard est un dispositif mécanique permettant des déplacements d'une précision micro-métrique de réflecteurs type coin-de-cube. Elle permet d'allonger la longueur optique parcourue par un faisceau laser et ainsi de décaler temporellement les impulsions pompe et sonde. La plage temporelle couverte avec ce dispositif est de 11,5 ns.

1.6 Pont de diodes

Le système de détection est composé d'un pont de diodes. Ce dernier offre la possibilité de mesurer le signal dans une configuration différentielle. Le pont de diodes est composé de deux diodes sensibles à l'intensité lumineuse des faisceaux sondes provenant



de l'échantillon.

Dans un montage en réflectométrie, le pont de diodes permet de soustraire le signal provenant de l'échantillon d'un signal de référence envoyé sur la seconde diode. Les fluctuations d'intensité du laser sont ainsi soustraites.

Concernant le montage en interférométrie, la soustraction des deux voies permet l'accès direct à la partie imaginaire du signal (voir partie 3 en page 54).

1.7 Spectroscopie

En mode bloqué les lasers femtosecondes ne sont pas monochromatiques. Leur largeur spectrale varie entre 8 et 12 nm. Les phénomènes de génération et de détection dépendent fortement de la longueur d'onde et nécessitent pour être étudiés des résolutions spectrales de l'ordre du nanomètre.

Le spectroscopie permet de décomposer et sélectionner une composante spectrale. Ce dernier est utilisé comme un simple réseau dispersif, auquel une photodiode à avalanche sensible à des puissances de quelques microwatt est adjointe.

Ce dispositif permet de mesurer le signal sonde résolu spectralement en réflectométrie. Il est possible de résoudre spectralement le faisceau sonde ou pompe.

Spectroscopie sur le faisceau pompe

Dans cette configuration, le spectroscopie est placé avant l'échantillon de sorte que le phénomène acoustique soit engendré par une impulsion dont la largeur spectrale soit faible.

Cependant, la puissance en sortie de spectroscopie est trop faible pour générer efficacement des ondes acoustiques. Par conséquent, cette configuration n'est pas utilisée.

Spectroscopie sur le faisceau sonde

Le spectroscopie utilisé possède trois réseaux dispersifs : 150 traits/mm, 1 200 traits/mm et 1 800 traits/mm. Ils permettent d'atteindre une résolution spectrale d'un nanomètre sans causer d'élargissement temporel notable de l'impulsion sonde. La résolution temporelle, et par conséquent la bande passante de fréquences observables, est conservée.

Dans cette configuration, le spectroscopie peut être placé en aval de l'échantillon.

1.8 Schéma de principe d'une expérience pompe-sonde

Une configuration de montage pompe-sonde consiste en l'utilisation d'un laser impulsif, d'un cube séparateur pour générer les faisceaux pompe et sonde, d'une ligne à retard placée sur un des faisceaux et un système de détection.

A ces éléments clefs du montage synchrone, s'ajoutent :

- le modulateur acousto-optique contrôlé par la détection synchrone sur le trajet pompe

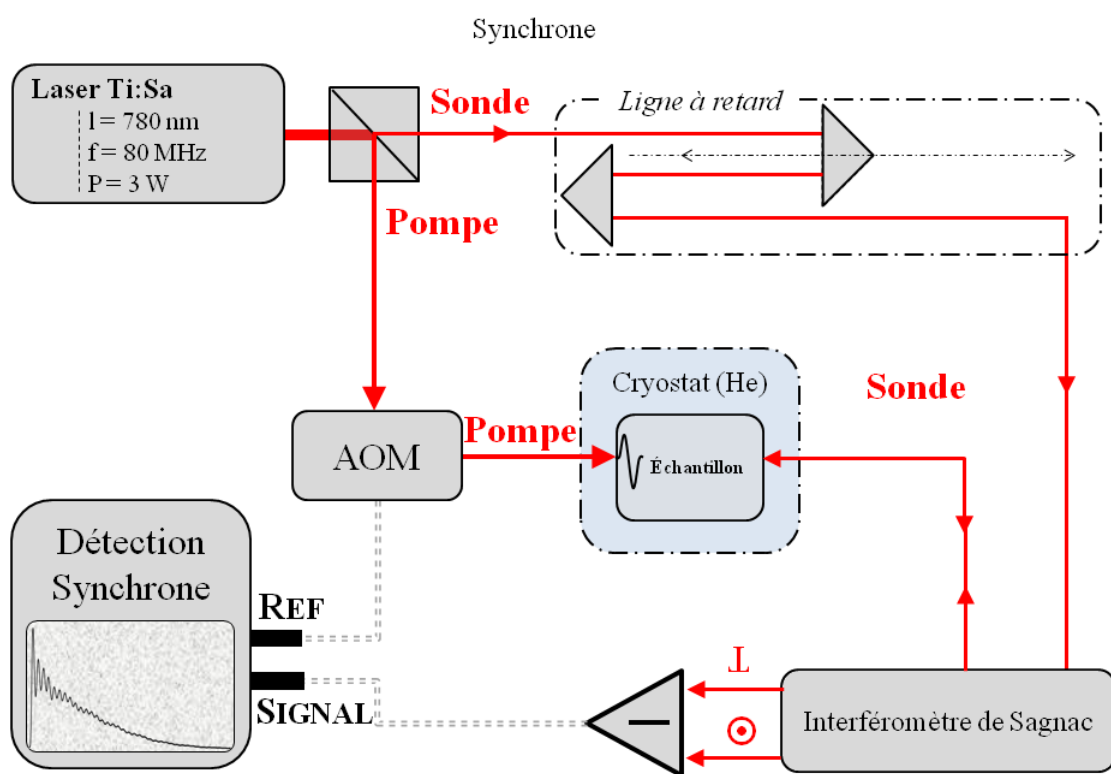
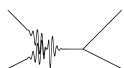


FIGURE 3.6 – Schéma de montage pompe-sonde synchrone.



- un interféromètre de Sagnac dont les trajets des deux faisceaux sont identiques au sens de rotation près⁶
- un cryostat permettant de thermaliser l'échantillon juste au dessus de la température d'ébullition de l'hélium en faisant circuler l'hélium froid gazeux dans la chambre contenant l'échantillon. Ce procédé permet une bien meilleure thermalisation de l'échantillon comparé à un simple contact avec un doigt froid.

2 Mesure en réflectométrie

Une mesure en simple réflectométrie consiste en une mesure de la variation de réflectivité de l'échantillon. Les faisceaux pompe et sonde sont focalisés au même point de l'échantillon. L'impulsion pompe va modifier de manière réversible certaines grandeurs physiques responsables d'une variation de réflectivité telles que l'échauffement de la surface, la modification des populations électroniques et –ce qui nous intéresse le plus en acoustique picoseconde – va engendrer des contraintes mécaniques pouvant se propager au sein du substrat et revenir bien plus tard à la surface de l'échantillon lorsque les phénomènes transitoires liés à l'impulsion pompe se seront relaxés.

La superposition des taches focales des faisceaux pompe et sonde est obtenue au moyen d'une configuration de faisceaux parfaitement parallèles à l'axe optique de la lentille de focalisation et dont les positions à égales distances du centre optique permet une superposition des foyers de chaque faisceau.

Le champ électromagnétique réfléchi par la surface de l'échantillon s'écrit :

$$\begin{aligned} E_r &= r(t)E_i \\ E_r &= r_0(1 + \rho(t) + i\phi(t))E_i \end{aligned} \quad (3.4)$$

ρ et ϕ sont les composantes réelles et imaginaires de $\frac{\Delta r}{r}$. Les diodes sont sensibles à l'intensité du signal lumineux, et donc sensibles à $|E_r|^2$. Par conséquent, au premier ordre en ρ et ϕ :

$$I \propto r_0^2 E_i^2 (1 + 2\rho(t)) \quad (3.5)$$

D'où la variation relative :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \rho(t) \propto \frac{\Delta I}{I} \quad (3.6)$$

Un exemple simple de mesure en réflectivité dans un film de *Mo/Ni* est présenté en figure 3.7.

6. Ce type d'interféromètre permet d'atténuer les vibrations mécaniques des éléments du montage, ces vibrations –basses fréquences– se répercutant sur les deux bras simultanément, les changements de longueur optique des bras s'annulent.

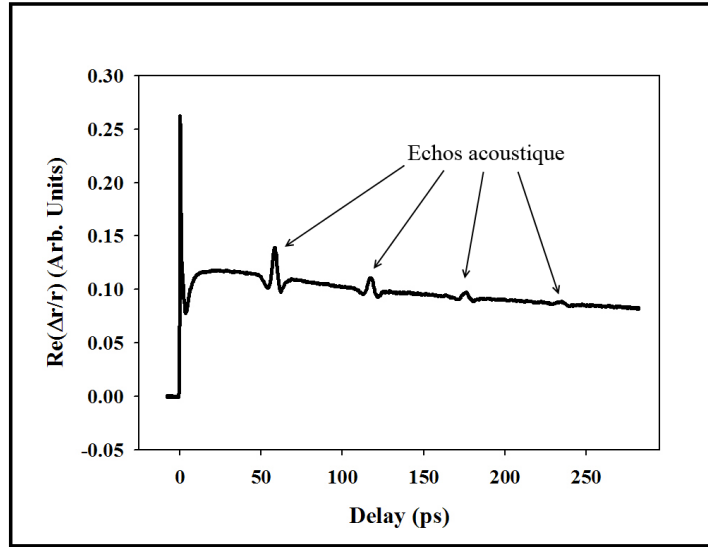


FIGURE 3.7 – Échos acoustique dans un film mince de *Mo/Ni*. B. Perrin

3 Mesure en interférométrie

La réflectivité de l'échantillon soumis à une onde acoustique possède une composante imaginaire issue des déplacements d'interfaces (annexe A en page 204). Une mesure en simple réflectivité ne permet pas d'obtenir cette composante.

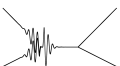
Un montage interférométrique permet –comme l'a montré B. Perrin [24, 67]– d'obtenir les parties réelles et imaginaires de la réflectivité.

Un interféromètre de Sagnac est utilisé. Contrairement aux interféromètres plus communément répandus et nécessitant un asservissement pour compenser les vibrations mécaniques des bras, l'interféromètre de Sagnac est bloqué en phase par construction : les deux faisceaux parcourent le même trajet, mais en sens inverse l'un de l'autre. Par conséquent, les perturbations mécaniques ou autres induisent le même biais simultanément sur les deux bras.

La figure 3.8 donne le schéma de principe de cet interféromètre.

L'échantillon est asymétriquement placé sur la boucle de l'interféromètre (figure 3.8). Un des faisceaux suivra un trajet court pour atteindre l'échantillon, l'autre faisceau un trajet long. La différence de trajet τ_s définit la stabilité mécanique de l'interféromètre ; toutes les vibrations temporellement plus longues que τ_s seront compensées puisqu'elles agiront de la même façon sur les deux faisceaux. Cette technique rend le montage insensible aux perturbations de fréquence inférieure à une centaine de mégahertz.

Les deux faisceaux sondes sont réfléchis par le même point de la surface de l'échantillon et sont ensuite focalisés sur les diodes de détection. Le jeu des lames semi et quart d'ondes ainsi que les réflexions vitreuses au niveau des cubes séparateurs induisent deux trajets distincts vus par les diodes *A* et *B*. Le déphasage entre les deux faisceaux vus par la diode *A* sera de π tandis qu'il sera nul pour les faisceaux vus par la diode *B*.



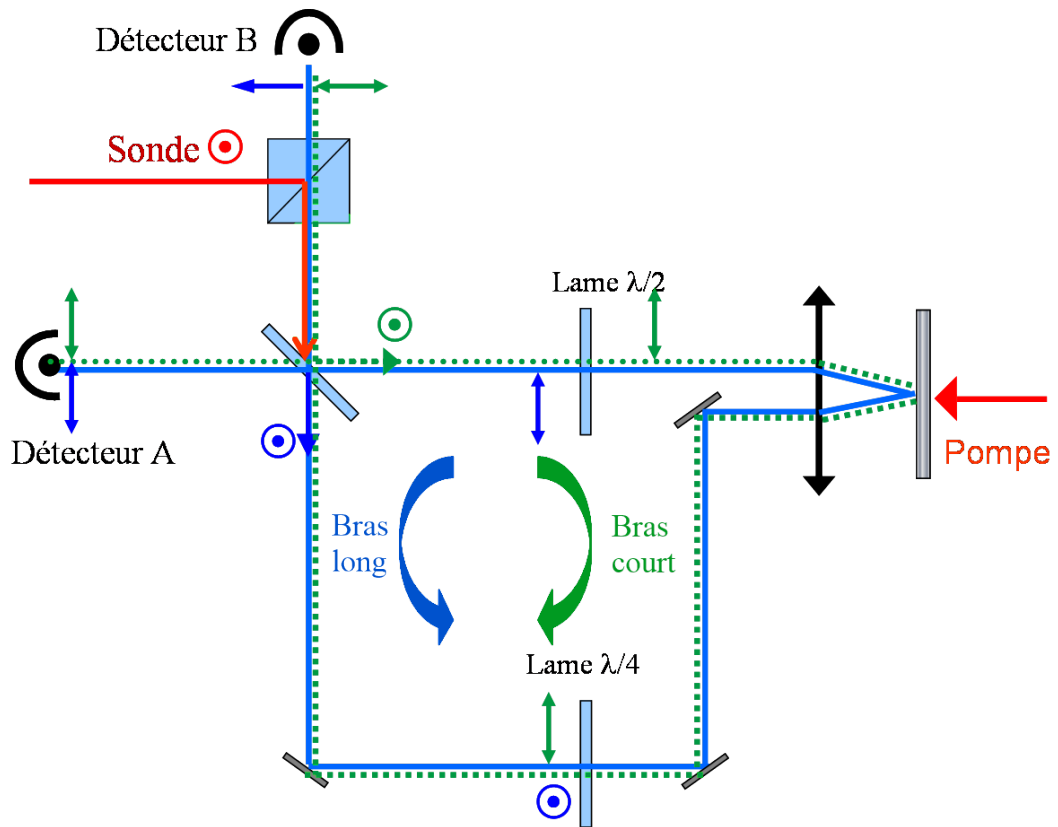


FIGURE 3.8 – Schéma de principe d'un interféromètre de Sagnac.

CHAPITRE 3. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Ainsi, l'intensité reçue par les diodes fournit deux signaux complémentaires :

$$\begin{aligned} I_A &= [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \pm [\phi(t) - \phi(t + \tau)] \\ I_B &= [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \mp [\phi(t) - \phi(t + \tau)] \end{aligned} \quad (3.7)$$

Avec ρ et ϕ les variations d'amplitude et de phase induites par l'échantillon. Une seule mesure permet d'obtenir les parties réelle $\rho(t) + \rho(t + \tau)$ et imaginaire $\phi(t) - \phi(t + \tau)$ en ajoutant ou soustrayant les signaux mesurés par les diodes.

4 Asynchrone

La technique de mesure en asynchrone diffère peu, au niveau du principe de mesure, de la technique pompe-sonde classique. Il s'agit d'envoyer un faisceau pompe de forte énergie pour générer le phénomène acoustique, puis de mesurer les variations d'intensité du faisceau sonde avec un montage soit en réflectométrie, soit en interférométrie.

La principale différence réside dans l'utilisation de deux lasers, l'un servant de pompe, l'autre de sonde en lieu et place d'un seul dont le faisceau est séparé grâce à un cube séparateur.

Le taux de répétition des deux lasers n'est pas identique [68, 69]. Ainsi, au lieu d'utiliser une ligne à retard pour décaler les impulsions, il suffit de laisser les impulsions dériver l'une par rapport à l'autre naturellement comme le montre le schéma de principe 3.9.

Le signal est acquis en un temps t_{ac} de quelques millisecondes :

$$t_{ac} = \frac{T_p}{\Delta T} = \frac{f_p}{f_s \Delta f} \quad (3.8)$$

avec T_p , T_s , f_p et f_s les temps et fréquences de répétition des lasers sonde et pompe. $\Delta T = T_s - T_p$ et $\Delta f = f_p - f_s$.

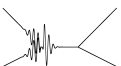
Pour une différence de fréquence de 5 kHz et $f_p = 80$ MHz, $t_{ac} = 0,2$ ms.

Un montage asynchrone permet donc d'obtenir rapidement un bon rapport signal sur bruit, une seconde d'acquisition en asynchrone correspondant au temps de 2500 allers et retours de ligne à retard. Cependant une limitation importante interdit l'utilisation de cette technique pour des délais longs et des fréquences élevées : les variations instantanées de fréquence des lasers induisant des fluctuations aléatoires dans le signal. Ce phénomène appelé *gigue* ou *jitter*⁷ est lié à la perte de synchronisation des deux lasers.

Un signal de synchronisation est envoyé à la carte d'acquisition. Ce signal de synchronisation est détecté au moyen d'une photodiode située à l'arrière d'un cristal doubleur sur lequel sont focalisés les deux lasers. Lorsque les impulsions de ces derniers sont synchronisées, une impulsion de fréquence optique double est détectée par la photodiode.

Dans un cas idéal, les fréquences des deux lasers étant connues, il est possible de connaître pour chaque couple d'impulsions le retard de l'une par rapport à l'autre. Cependant, les variations instantanées de fréquence des lasers sont responsables d'une erreur sur le temps d'arrivée de la sonde par rapport à la pompe. Au bout d'un certain nombre

7. terme anglophone



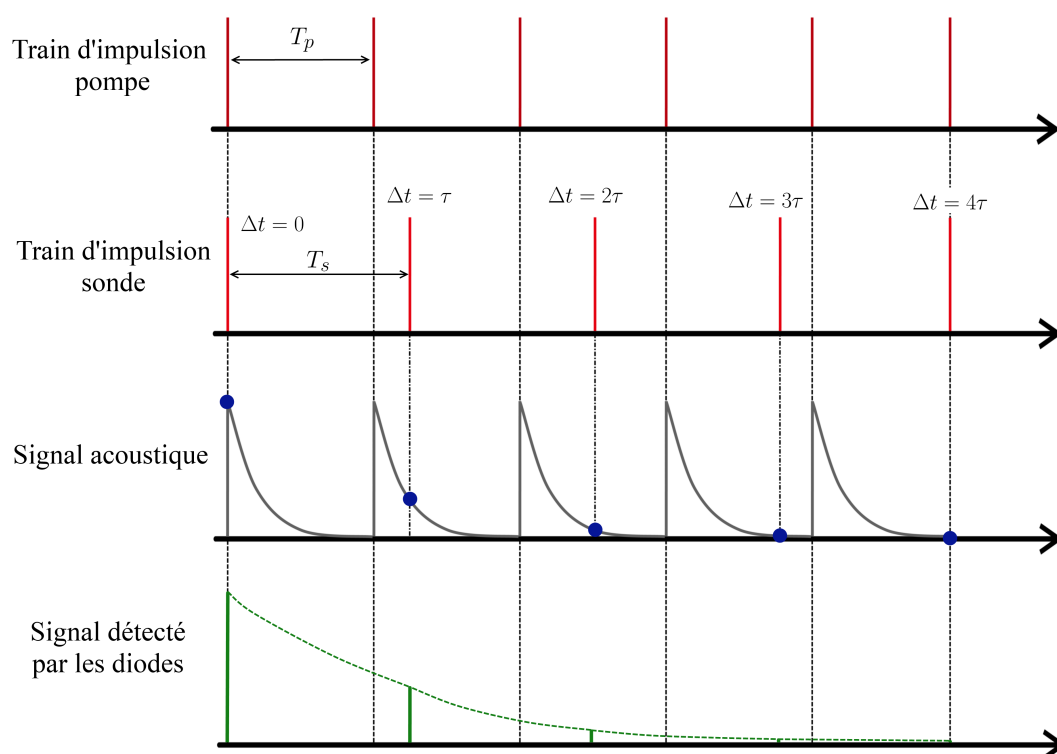


FIGURE 3.9 – Diagramme temporel représentant les impulsions pompe et sonde se décalant dans le temps. Le signal reçu par le détecteur au cours du temps est lié au retard entre la pompe et la sonde ; la dérive temporelle de la pompe par rapport à la sonde fait office de ligne à retard ultra-rapide.

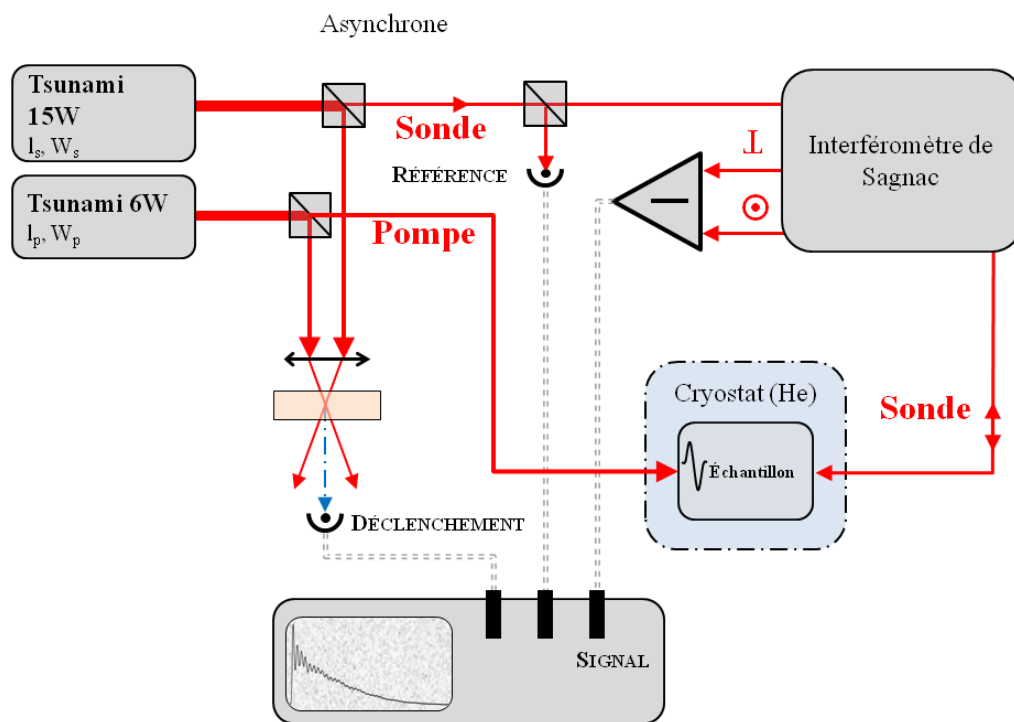
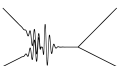


FIGURE 3.10 – Schéma de principe d'un montage asynchrone utilisant deux lasers impulsionnels. Le signal est acquis directement par une carte d'acquisition sans passer par une détection synchrone.



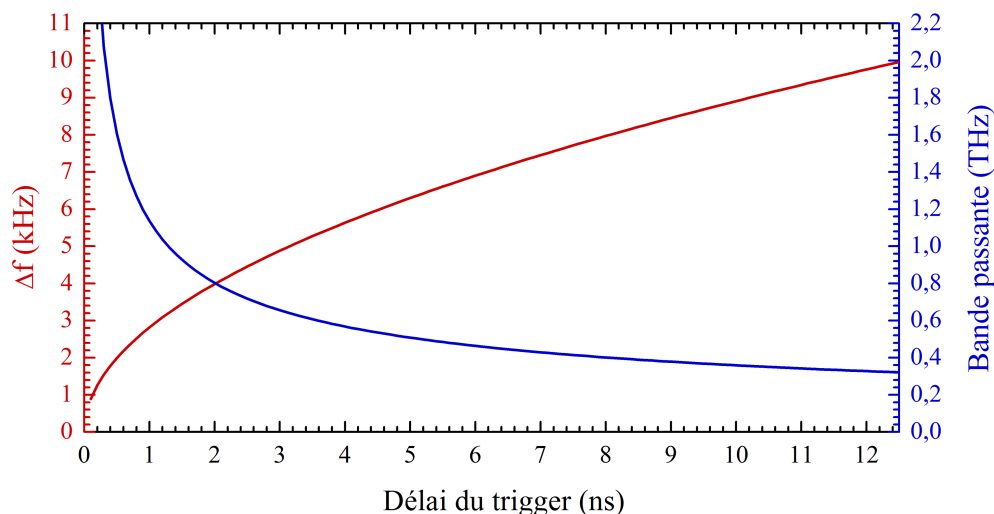


FIGURE 3.11 – Abaque donnant la relation entre les écarts de fréquence des lasers pompe et sonde et la bande passante accessible (*E. Péronne*).

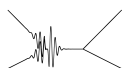
d'impulsions, il est impossible de connaître la position temporelle d'un laser par rapport à l'autre sans avoir recours à un nouveau signal de synchronisation.

Ainsi, pour une fréquence acoustique mesurée, seuls les N premiers points du signal offrent une mesure avec peu d'erreurs. Ce système offre donc une mesure fiable aux temps courts (les N premiers points de mesure) et/ou aux basses fréquences. Les mesures intrinsèques du jitter permettent de tracer un abaque indiquant la durée sur laquelle il est possible de mesurer une fréquence donnée (figure 3.11).

Concernant les signaux et fréquences acoustiques mis en jeu avec nos échantillons, ces contraintes ne limitent pas trop les mesures jusqu'à 500 GHz sur des durées de 1 à 2 ns, au delà le signal acoustique est trop long pour la durée qu'il est possible de mesurer en asynchrone.

5 Conclusion

Le montage expérimental décrit précédemment sert de base à la génération et à la détection des ondes acoustiques au sein de structures. Les résolutions temporelles et les sensibilités accessibles ouvrent la voie à des mesures très haute fréquence (jusqu'au terahertz) de signaux acoustiques se propageant sur des distances de l'ordre du millimètre. La complémentarité des schémas de mesure en synchrone et asynchrone sont un point important de l'étude de la réponse acoustique des structures étudiées en fonction de la longueur d'onde. Comme nous allons le voir au chapitre 4, la longueur d'onde de génération et de détection joue un rôle majeur dans l'efficacité de transduction opto-acoustique. Les différents éléments présents sur ce montage pompe-sonde (dispositif asynchrone et spectroscopie) permettent une étude spectroscopique des structures multi-couches.



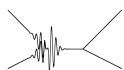
CHAPITRE 4

GÉNÉRATION ET DÉTECTION AU SEIN DE STRUCTURES MULTICOUCHES PÉRIODIQUES

Sommaire

1	Généralité sur les super-réseaux	66
1.1	Structure	66
1.2	Super-réseaux et puits quantiques	67
1.2.1	Photoluminescence et photoluminescence en excitation	68
2	Relation de dispersion acoustique dans un super-réseau	69
2.1	Matrice de transfert acoustique d'une bicouche	69
2.2	Relation de dispersion	69
3	Génération au sein d'un multicouche	70
3.1	Rôle de la longueur d'onde pompe pour la génération dans un super-réseau d'arséniure de gallium	71
4	Détection au sein d'un multicouche	74
4.1	Réflexivité r_0 d'un empilement multicouches	74
4.2	Variation relative de réflexivité : $\frac{\Delta r}{r_0}$	75
4.3	Mode de détection au sein d'un super-réseau	75
4.4	Rôle de la longueur d'onde sonde dans la détection des super-réseaux d'arséniure de gallium	77
5	Génération et détection avec des super-réseaux	78
5.1	Les doubles super-réseaux	78
5.2	Vers les super-réseaux à cavité optique	78
6	Conclusion	82

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX



D. Adams

There is a theory which states that if ever anybody discovers exactly what the Universe is for and why it is here, it will instantly disappear and be replaced by something even more bizarre and inexplicable.

There is another theory which states that this has already happened.

Ce chapitre est consacré aux mécanismes de génération et de détection des ondes acoustiques dans des structures composites. Les hétérostructures étudiées sont des empilements périodiques de couches de semi-conducteurs¹ appelées super-réseaux et fabriqués au moyen de techniques d'épitaxie par jet moléculaire.

Les mécanismes de base utilisés en acoustique pico-seconde ont été décrits dans le chapitre précédent. La réponse acoustique de structures similaires métalliques a déjà été étudiée [70, 71] ; de telles structures offrent la possibilité de générer des modes acoustiques très hautes fréquences en comparaison avec la spectroscopie acoustique utilisant des transducteurs piézoélectriques [72, 44, 43]. Les mêmes propriétés sont mises en évidence dans les super-réseaux à base de semi-conducteurs [73, 74, 75].

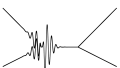
Les propriétés mécaniques des super-réseaux peuvent être analysées grâce au formalisme des matrices de transfert [72] ; les champs de contraintes et déformations sont obtenus successivement dans toutes les couches au moyen de relation de passage entre les couches grâce aux matrices de transfert au travers des couches. Une généralisation de ce formalisme permet de décrire les champs électromagnétiques et acoustiques [44, 43] ainsi que les mécanismes de génération et de détection dans les super-réseaux. Ces travaux ont

1. *AlAs*, *GaAs*, mais aussi tous les alliages de composition $Al_xGa_{1-x}As$.

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

largement été repris par Clément Rossignol et Stéphane Laborde dans leur travaux de thèse.

Dans ce chapitre, les principaux résultats du formalisme de matrice de transfert appliquée aux super-réseaux seront utilisés pour traiter le problème de super-réseaux placés dans une cavité optique. Nous verrons comment un mode de cavité optique permet de lever les contraintes intrinsèques aux super-réseaux en terme de transduction opto-acoustique.



Notations

- u_i : déplacement de la surface de la couche i
- σ_i : contrainte mécanique à la surface de la couche i
- τ : matrice de transfert acoustique
- q : vecteur d'onde acoustique
- $Z = \rho v$: impédance acoustique
- $\vec{E}, \vec{E}_i$: champ électromagnétique (dans la couche i)
- a_i, b_i : amplitude du champ électromagnétique à l'entrée de la couche i
- k : vecteur d'onde électromagnétique
- B : module élastique
- ρ : masse volumique
- c_v : capacité thermique massique

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

1 Généralité sur les super-réseaux

1.1 Structure

Les super-réseaux fabriqués avec les alliages de *GaAs* et *AlAs* sont obtenues par épitaxie moléculaire ; cette technique permet de déposer couche atomique par couche atomique sur un substrat d'arséniure de gallium des couches de *GaAs* ou d'*AlAs* d'épaisseur variable. Les cristaux de *GaAs* et *AlAs* sont de même structure cristalline et leur accord de maille est quasi-parfait. Ces matériaux permettent donc de fabriquer aisément des hétérostructures de grande dimension présentant des contraintes internes faibles, et par conséquent présentent un faible risque de dislocation.

Les super-réseaux acoustiques simples étudiés lors de ces travaux de thèse sont des empilements périodiques de bicouches d'*AlAs*/*GaAs*. Bien que similaire d'un point de vu cristallographique, l'arséniure d'aluminium et l'arséniure de gallium ont des propriétés acoustiques et optiques légèrement différentes.

	C_v (J/g/K)	ρ (kg/m ³)	$B \times 10^{10}$ N/m ²	v_l nm/ps	n'	n''	$\beta \cdot 10^{-6}$	Z
<i>GaAs</i>	0,31	5 320	7,55	4,73	3,7	0,063	5,9	25,2
<i>AlAs</i>	0,43	3 760	7,81	5,65	3,0	$1 \cdot 10^{-6}$	5	21,2

FIGURE 4.1 – Propriétés physiques des cristaux de *GaAs* et d'*AlAs*.

Le super-réseau sera assimilé à la structure décrite à la figure 4.2. Les grandeurs électromagnétiques et acoustiques sont définies à l'entrée de chaque couche.

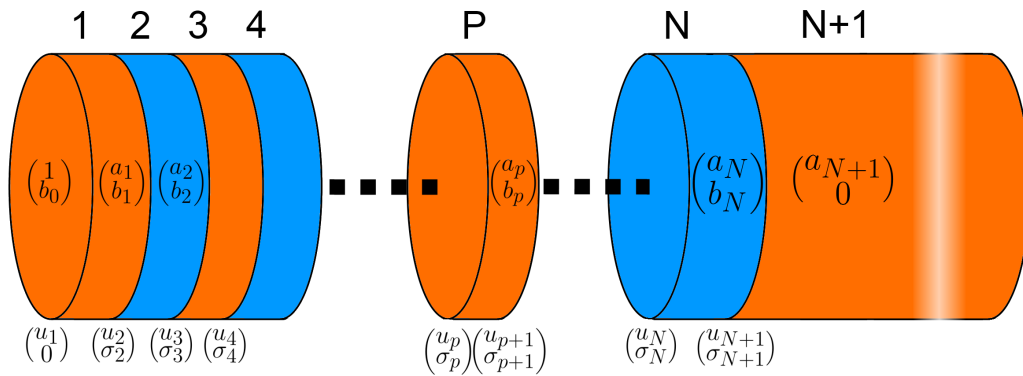
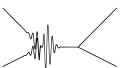


FIGURE 4.2 – Représentation schématique d'un super-réseau. Les coefficients (a_m, b_m) sont les coefficients électromagnétiques à l'entrée de chaque couche (sauf la couche 0 qui est le milieu extérieur). Les coefficients (u_m, σ_m) sont les déplacements et contraintes à la surface de chaque interface. La couche $N + 1$ est par convention le substrat.



1.2 Super-réseaux et puits quantiques

Une couche de *GaAs* placée entre deux couches de *AlAs* constitue un puits de potentiel pour les électrons et les trous²[77]. Un schéma de la structure en énergie est donné en figure 4.3.

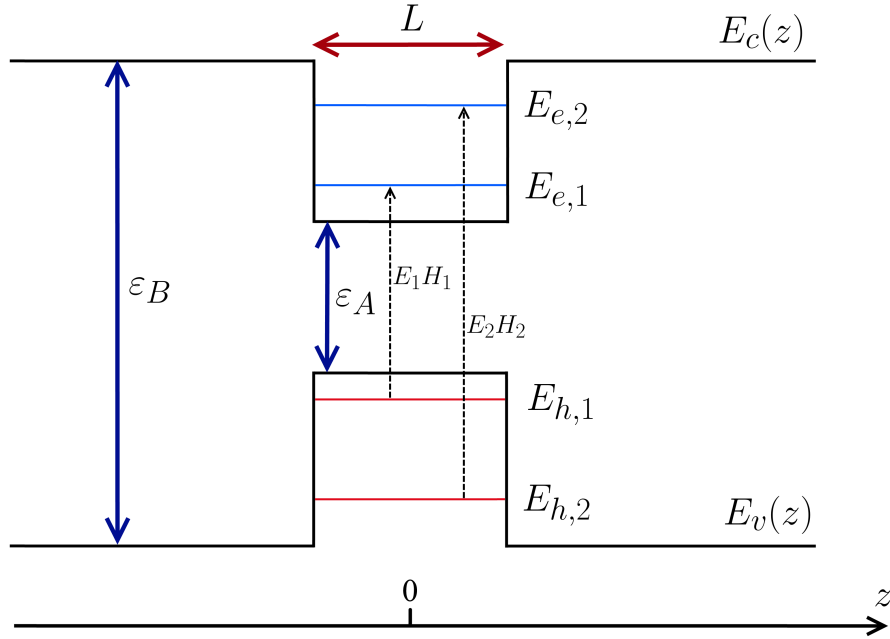


FIGURE 4.3 – Schéma de la structure de bande d'un puits quantique de type I de largeur L . En pointillé sont représentées les transitions électroniques.

Énergie de transition dans un super-réseau

Pour un super-réseau de type *GaAs/AlAs* dont les épaisseurs sont respectivement $d_{GaAs} = 7,5 \text{ nm}$ et $d_{AlAs} = 17,1 \text{ nm}$, les puits quantiques sont suffisamment éloignés les uns des autres pour être découplés. Le tableau 4.1 indique les énergies de transitions électroniques d'une telle structure.

Transition	$E1HH1$	$E1HH2$	$E1LH1$	$E1HH3$
Énergie (nm)	808,4	806,9	802,8	802,2
Transition	$E2HH1$	$E2HH2$	$E2LH1$	$E2HH3$
Énergie (nm)	786,4	785	781,2	780,6

TABLE 4.1 – Énergie de transition pour un super-réseau *GaAs*(7,5 nm)/*AlAs*(17,1 nm)

2. les gaps pour le *GaAs* et *AlAs* sont respectivement à 1,42 eV et 2,17 eV [76] à 300 K

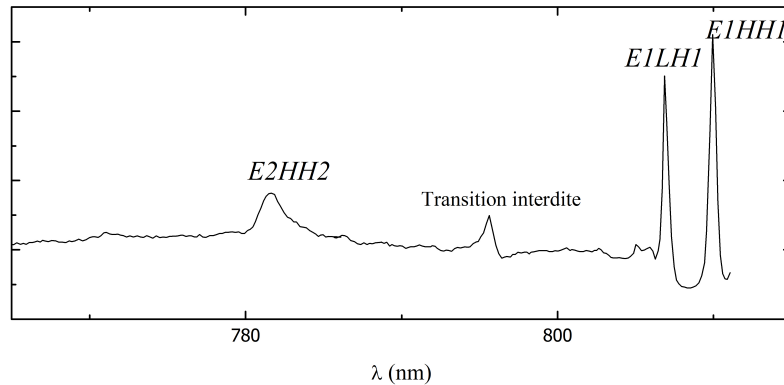


FIGURE 4.4 – Photoluminescence en excitation d'un super-réseau $GaAs(7,5\text{ nm})/AlAs(17,1\text{ nm})$.

1.2.1 Photoluminescence et photoluminescence en excitation

La photoluminescence (**PL**) est une méthode expérimentale permettant de déterminer les niveaux d'énergie électroniques des super-réseaux. Le phénomène de photoluminescence est un processus par lequel une substance absorbe des photons pour ensuite en ré-émettre à une longueur d'onde différente.

Dans le cas d'un semi-conducteur, le principe est de mettre les électrons de la bande de valence dans un état excité avec un faisceau laser d'énergie supérieure au gap. En revenant dans leur état fondamental, les électrons vont explorer les niveaux d'énergie intermédiaires en émettant des photons d'énergie correspondant aux différences d'énergie de ces niveaux.

Le spectre obtenu en émission est donc une cartographie des niveaux d'énergie radiatif de la structure.

La photoluminescence en excitation (**PLE**) est une méthode spécifique de photoluminescence consistant à exciter les électrons de la structure avec une source de lumière de longueur variable et d'étudier la variation d'émission à une longueur d'onde correspondant à un niveau d'énergie radiatif.

La réponse du système est donc fortement liée à sa capacité à absorber la lumière, il s'agit d'une spectroscopie en absorption. Dans le cas d'un super-réseau, elle permet de connaître les niveaux d'énergie électronique au sein des puits quantiques, et par conséquent les longueurs d'onde où le couplage photons/électrons dans le super-réseau sera le plus important (figure 4.4).



2 Relation de dispersion acoustique dans un super-réseau

2.1 Matrice de transfert acoustique d'une bicouche

Les champs acoustiques sont déterminés à partir du vecteur acoustique $\begin{pmatrix} u \\ \sigma \end{pmatrix}$ composé du déplacement u et de la contrainte σ . Le vecteur acoustique est une quantité continue aux interfaces parfaites des couches du super-réseau.

Sans les termes de génération acoustique dus à la présence d'une onde électromagnétique au sein de la structure, il est possible de relier les champs acoustiques de part et d'autre d'une couche par une matrice de transfert :

$$\begin{pmatrix} u_d \\ \sigma_d \end{pmatrix} = \tau \begin{pmatrix} u_g \\ \sigma_g \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

avec

$$\tau = \begin{pmatrix} \cos(qd) & \frac{\sin(qd)}{\omega Z} \\ -\omega Z \sin(qd) & \cos(qd) \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

où $q = \frac{\omega}{v}$ est le vecteur d'onde, $Z = \rho v$ est l'impédance acoustique de la couche.

2.2 Relation de dispersion

Pour un ensemble de bicouches (schéma 4.2), la relation de passage entre la première et dernière couche a pour expression :

$$\begin{pmatrix} u_{N+1} \\ \sigma_{N+1} \end{pmatrix} = \tau_N \tau_{N-1} \cdots \tau_2 \tau_1 \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} = (\tau_2 \tau_1)^{N/2} \begin{pmatrix} u_1 \\ \sigma_1 \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

En raison de la périodicité de la structure, les propriétés acoustiques sont déterminées par la matrice de transfert de la bicouche :

$$\tau_a = \tau_2 \tau_1 = \begin{pmatrix} \cos(\frac{\omega d_1}{v_1}) \cos(\frac{\omega d_2}{v_2}) - \frac{Z_1}{Z_2} \sin(\frac{\omega d_1}{v_1}) \sin(\frac{\omega d_2}{v_2}) & \frac{\sin(\frac{\omega d_1}{v_1}) \cos(\frac{\omega d_2}{v_2})}{\omega Z_1} + \frac{\cos(\frac{\omega d_1}{v_1}) \sin(\frac{\omega d_2}{v_2})}{\omega Z_2} \\ -\omega Z_1 \sin(\frac{\omega d_1}{v_1}) \cos(\frac{\omega d_2}{v_2}) - \omega Z_2 \sin(\frac{\omega d_2}{v_2}) \cos(\frac{\omega d_1}{v_1}) & \cos(\frac{\omega d_1}{v_1}) \cos(\frac{\omega d_2}{v_2}) - \frac{Z_2}{Z_1} \sin(\frac{\omega d_1}{v_1}) \sin(\frac{\omega d_2}{v_2}) \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

La matrice de transfert a pour valeur propre :

$$\lambda_{1,2} = t_a \pm \sqrt{t_a^2 - 1} \quad (4.5)$$

où t_a est la demi-trace de la matrice τ_a . Si $t_a^2 < 1$, les valeurs propres sont complexes conjuguées, et nous sommes dans le cas d'une onde propagative³. La relation de dispersion

3. Par opposition aux modes localisés

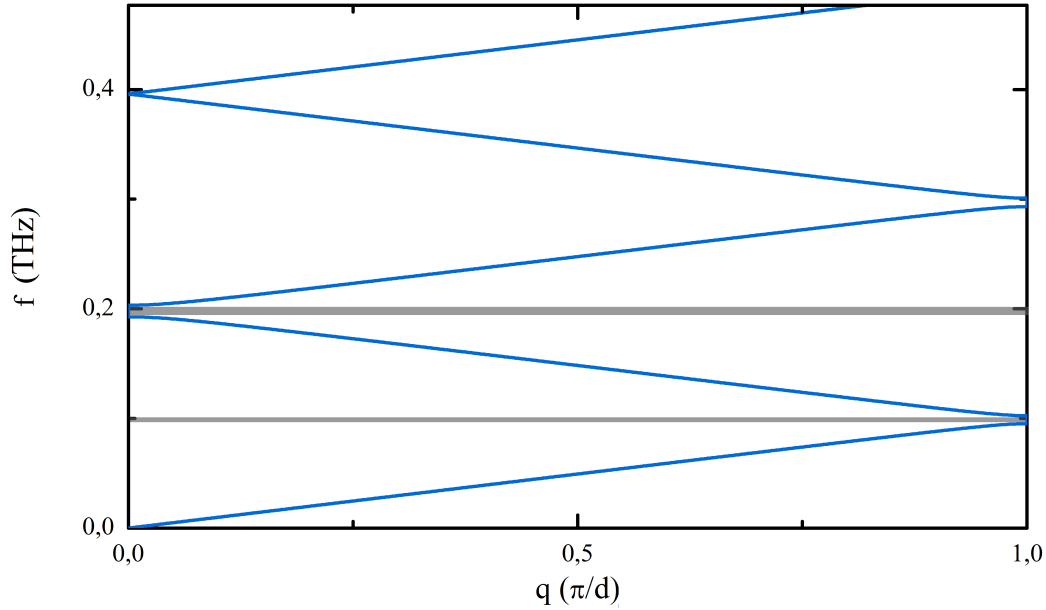


FIGURE 4.5 – Courbe de dispersion pour un empilement périodique d’arséniure de gallium (GaAs) et d’arséniure d’aluminium (AlAs). Les épaisseurs respectives des couches sont 18 nm pour GaAs et 7 nm pour AlAs. Le système possède des bandes interdites de fréquences aux alentours de 100 GHz et 200 GHz.

reliant la pulsation ω de l’onde au vecteur d’onde q est : $\cos(qd) = \frac{1}{2}(\lambda + \bar{\lambda})$

$$\cos(qd) = \cos\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \cos\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right) - \frac{1}{2} \left(\frac{Z_1}{Z_2} + \frac{Z_2}{Z_1} \right) \sin\left(\frac{\omega d_1}{v_1}\right) \sin\left(\frac{\omega d_2}{v_2}\right) \quad (4.6)$$

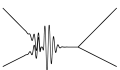
La figure 4.5 représente un exemple de relation de dispersion calculée pour un super-réseau alternant des couches d’arséniure de gallium de 18 nm et d’arséniure d’aluminium de 7 nm.

Pour certaines valeurs de ω , la relation de dispersion ne présente pas de solution. Il s’agit de cas où les valeurs propres de la matrice de transfert sont réelles, conduisant à des modes de vibrations non propagatifs. Ces fréquences définissent des bandes interdites à la propagation, ou –en gardant la terminologie propre aux semi-conducteurs– des gaps en énergie.

La périodicité de la structure conduit à un repliement de la relation de dispersion au sein d’une zone de Brillouin réduite.

3 Génération au sein d’un multicouche

La génération d’onde mécanique au moyen d’une impulsion laser est fortement liée à la forme de la contrainte initiale générée par l’onde électromagnétique. Dans le cas d’une couche mince métallique, l’énergie est absorbée suivant une loi de Beer-Lambert, conduisant à un profil spectral lié à la longueur de pénétration optique du laser dans



le milieu. Plus l'énergie est absorbée sur une faible distance, plus la contrainte aura un gradient spatial élevé, et le spectre acoustique sera riche en haute fréquence.

Dans le cas d'un super-réseau, le profil électromagnétique est moins évident à déterminer. Cependant, l'absorption de l'énergie est modulée spatialement par le super-réseau. La contrainte initiale aura donc la même modulation spatiale que le super-réseau. En reprenant la contrainte d'origine photo-thermique détaillée lors du chapitre 2⁴, l'élévation de température $\Delta T = \frac{W(z,t)}{\rho c_v}$ induit une contrainte $\sigma_{th} = -3B\beta\Delta T$ où

$W(z,t) = \frac{\alpha Q}{S} |\vec{E}(z)|^2 H(t)$. $H(t)$ est la fonction de Heaviside.

L'équation de propagation avec un terme source a pour expression :

$$\frac{\partial^2 u(z,t)}{\partial t^2} - v^2 \frac{\partial^2 u(z,t)}{\partial z^2} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \sigma_{th}(z,t)}{\partial z} \quad (4.7)$$

ou encore avec l'opérateur d'alembertien :

$$\square u(z,t) = F_s(z)H(t) \quad (4.8)$$

Le terme source F_s de l'équation d'onde est relié au champ électromagnétique dans la structure par l'équation (4.9) suivante :

$$F_s(z) \propto \frac{\partial |\vec{E}(z)|^2}{\partial z} \quad (4.9)$$

Dans le cas limite de couches bien définies au sein du super-réseau, l'indice optique présente un saut à l'interface de chacune des couches. Le contenu fréquentiel généré par le super-réseau est donc corrélé au terme source (4.9), et donc à la structuration spatiale du super-réseau permettant une génération pour des modes de centre de zone $q = 0$ (figure 4.6).

Il est possible d'observer la fonction de génération d'un super-réseau en sondant sur une couche métallique dont la réponse en fréquence s'apparente à un filtre coupe haut. La figure 4.6 donne le spectre dans une telle configuration, le signal acoustique est observé après une traversée du substrat sur une couche d'aluminium. Le spectre présente une forte réponse à $q = 0$, correspondant à une fréquence de 200 GHz. Les autres modes $q = 0$ à 400 GHz et 600 GHz ne sont pas observables sur un film d'aluminium, ce dernier coupant les plus hautes fréquences.

3.1 Rôle de la longueur d'onde pompe pour la génération dans un super-réseau d'arséniure de gallium

La dépendance en longueur d'onde des mécanismes de génération est fortement liée aux niveaux d'énergie électroniques [78, 79] dans les super-réseaux et l'arséniure de gallium.

La figure 4.7 est obtenu avec un super-réseau GaAs/AlAs déposé sur un substrat d'arséniure de gallium à température ambiante et avec un montage asynchrone permettant

4. La contrainte issue du potentiel de déformation possède la même dépendance vis à vis du champs électromagnétique.

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

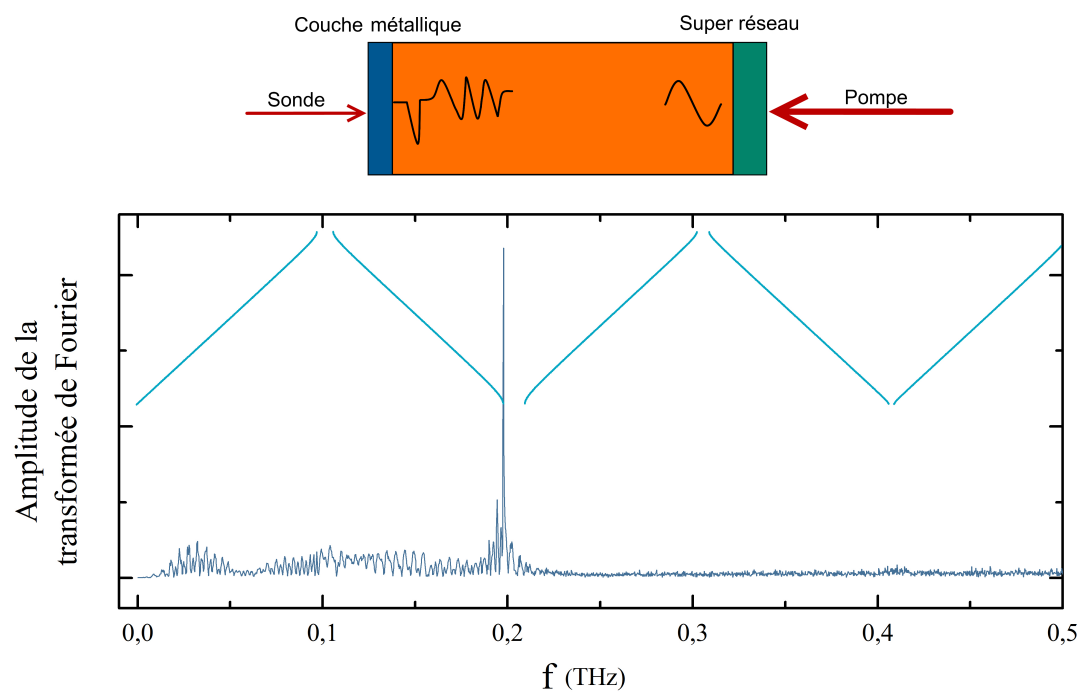
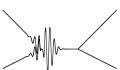


FIGURE 4.6 – Spectre obtenu en générant sur un super-réseau GaAs/AlAs, et en sondant sur une couche d'aluminium.



Spectre d'absorption à température ambiante d'un super-réseau GaAs (10,2 nm)/AlAs (20,7 nm) (D.S. Chemla in *J. Lumin.* 1985)

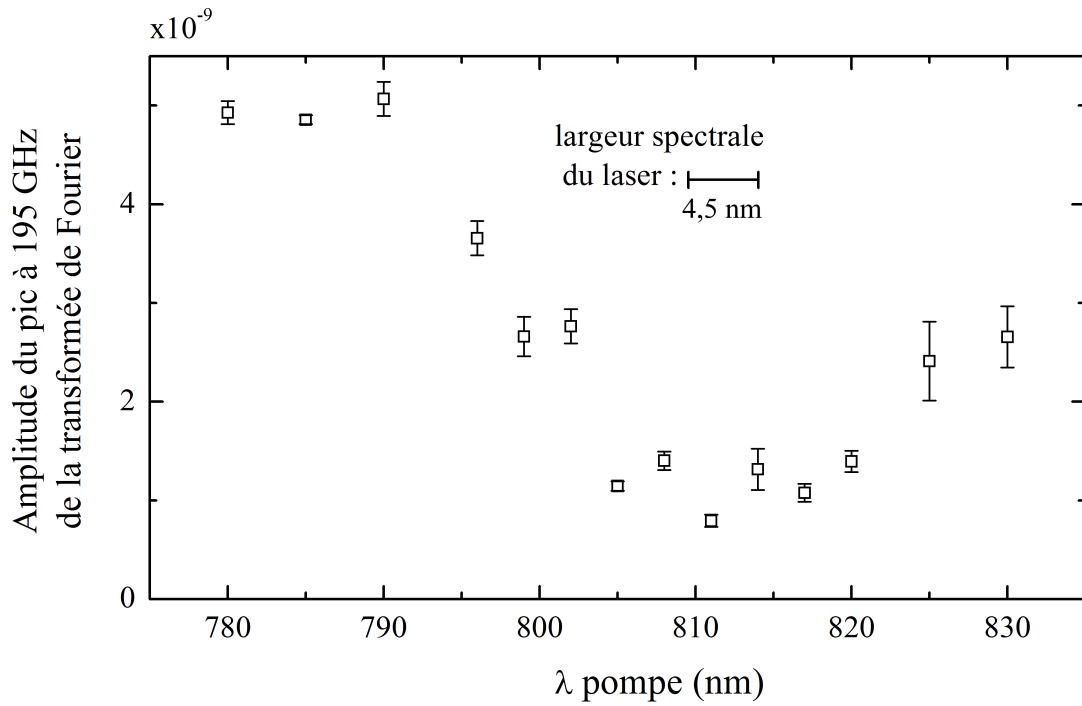
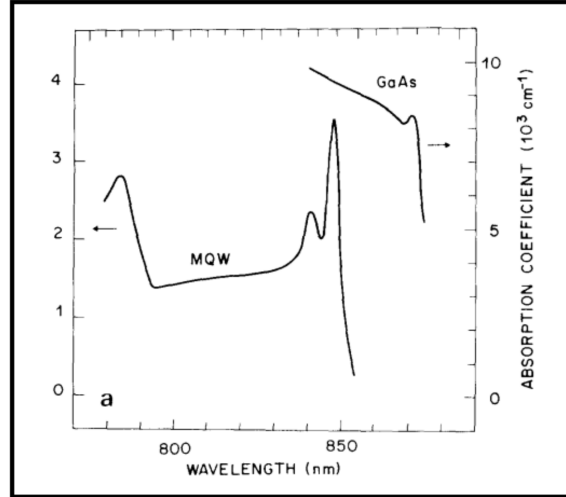


FIGURE 4.7 – En bas : Amplitude de la composante spectrale à 195 GHz d'un signal acoustique généré par un super-réseau *GaAs*(7,5 nm)/*AlAs*(17,1 nm) à température ambiante et au moment de la coïncidence pompe-sonde en fonction de la longueur d'onde du faisceau pompe. En haut : spectre d'absorption à l'ambiante d'un super-réseau de période similaire [80].

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

de découpler les longueurs d'onde des faisceaux pompe et sonde.

La réponse acoustique du super-réseau est corrélée aux niveaux d'énergie de la structure. Kent [81] montra une augmentation significative de l'amplitude du signal acoustique généré lorsque la longueur d'onde pompe dépasse l'énergie de la transition $E1HH1$. Le même comportement est observé sur la figure 4.7 pour la transition $E2HH2$, l'amplitude du signal acoustique augmente fortement lorsque la longueur d'onde du faisceau pompe passe la transition électronique vers 800 nm avant de saturer à plus haute énergie.

A plus haute longueur d'onde, l'amplitude du signal acoustique augmente en s'approchant du gap intrinsèque de l'arséniure de gallium à 872 nm avant de chuter lorsque l'énergie devient plus petite que le gap. A cette longueur d'onde, l'échantillon devient transparent. Dans l'arséniure de gallium, l'énergie du gap est donnée par la loi semi-empirique suivante [82] :

$$E_g(T)(eV) = 1,519 - \frac{T^2}{T + 204} 5,405 \cdot 10^{-4} \quad (4.10)$$

$$E_g(T)(nm) = 1241 \frac{204 + T}{310 + 1,519T - 5,405 \cdot 10^{-4}T^2}$$

4 Détection au sein d'un multicouche

Les mesures expérimentales permettent d'accéder au changement relatif de réflectivité $\frac{\Delta r}{r_0}$. De même que dans le cas d'un film mince traité au chapitre 2, la réflectivité au sein d'une structure multicouche est perturbée par le passage d'une onde acoustique. Cette variation de réflectivité est soumise à deux effets :

- le déplacement de chaque interface⁵
- la variation des indices optiques du milieu soumis à une contrainte mécanique : effet photo-élastique.

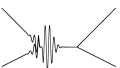
4.1 Réflectivité r_0 d'un empilement multicouches

L'expression du champ électromagnétique dans chaque couche du super-réseau a pour expression en prenant les notations introduites au schéma 4.2 :

$$\vec{E}_m(z) = a_m e^{ik_m \cos \theta z} \vec{e}_{\perp, \parallel} + b_m e^{-ik_m \cos \theta z} \vec{e}_{\perp, \parallel} \quad (4.11)$$

avec a_m et b_m l'amplitude du champ électromagnétique à l'entrée de la couche m . $z = \tilde{z} - \tilde{z}_m$ est une coordonnée locale relative à chaque couche, elle est définie à partir de $\tilde{z}$ la coordonnée spatiale globale du système multicouche dont l'origine est à la surface du super-réseau, et $\tilde{z}_m$ la distance de la couche m à la surface. $k_m = \sqrt{\varepsilon_m} k_0$ est le vecteur d'onde dans la couche m , ε_m la constante diélectrique et $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ le vecteur d'onde dans le vide.

5. qui est l'équivalent du déplacement de surface pour le film mince



Les amplitudes du champ électromagnétique a_m et b_m sont reliées entre elles par des matrices de transfert et de passage aux interfaces.

4.2 Variation relative de réflectivité : $\frac{\Delta r}{r_0}$

La variation totale de réflectivité au sein du système multicouche est la somme des contributions de l'effet photo-élastique et des déplacements d'interface dont le calcul est détaillé en annexe A. En utilisant les notations introduites dans le schéma 4.2, la variation de réflectivité à pour expression :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left[\frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) \left[a_m^2 e^{2ik_m \cos \theta_m z} + b_m^2 e^{-2ik_m \cos \theta_m z} \right] dz \right. \\ \left. + (2\varepsilon_m + \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta}) \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m \right] \quad (4.12)$$

Avec pour convention $u_{-1} = 0$, $\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial \eta} = 0$ et $d_{N+1} \rightarrow \infty$.

L'expression de la variation de réflectivité peut se séparer en deux termes issus du déplacement des interfaces $U_m(\omega)$ d'une part et de l'intégrale photo-élastique $I_m(\omega)$ d'autre part.

$$I_m(\omega) = \int_0^{d_m} dz \eta_m(z, \omega) \left[a_m^2 e^{2ik_m \cos \theta_m z} + b_m^2 e^{-2ik_m \cos \theta_m z} + 2a_m b_m \right] \quad (4.13)$$

et

$$U_m = u_m(\omega) - u_{m-1}(\omega) \quad (4.14)$$

4.3 Mode de détection au sein d'un super-réseau

L'intégrale photo-élastique I_m contribue à la variation de réflectivité pour des valeurs de vecteur d'onde acoustique q particulières.

La déformation $\eta(z, \omega)$ peut se décomposer spatialement en série de Fourier :

$$\eta_m(z, \omega) = \sum_n c_{n,m} e^{inqz} \quad (4.15)$$

I_m se réécrit donc :

$$I_m(\omega) = \sum_n \int_0^{d_m} c_{n,m} \left[a_m e^{i(2k_m + nq)z} + b_m e^{i(-2k_m + nq)z} + 2a_m b_m e^{inqz} \right] dz \quad (4.16)$$

Après intégration, les exponentielles complexes contribueront si leurs arguments sont nuls ou quasi-nul. Par conséquent, le super-réseau pourra détecter les modes acoustiques tels que $q = 2k$ et $q = 0$ si les coefficients a_m et b_m sont non négligeables.

b_m correspond à l'amplitude des ondes électromagnétiques réfléchies sur les interfaces du super-réseau. Sauf exception, ce terme est beaucoup plus petit que l'onde directe a_m .

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

Le mode $q = 0$ est de ce fait difficilement visible avec un super-réseau (figure 4.8).

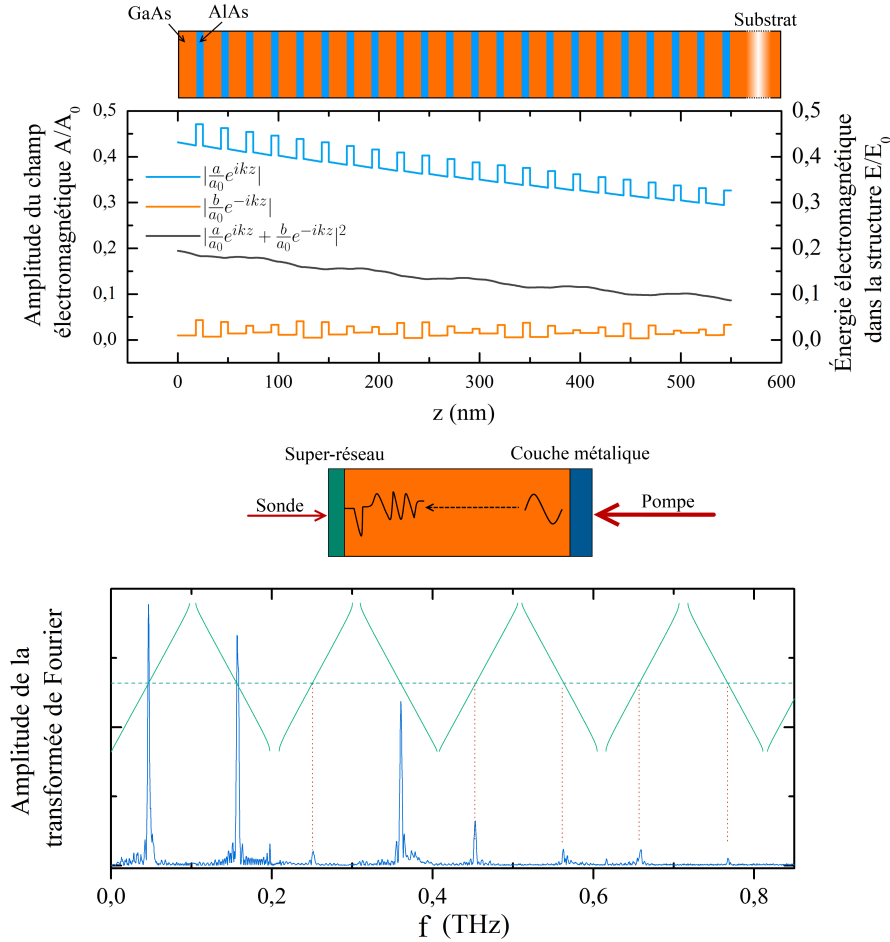


FIGURE 4.8 – En haut : Champ et énergie électromagnétique au sein d’un système multicouche AlAs(7 nm)/GaAs(18 nm).

En bas : Spectre d’un signal acoustique obtenu en générant avec une surface métallique, et en sondant sur un super-réseau. Dans cette configuration, seule la fonction de détection du super-réseau entre en jeu, le spectre généré par la couche métallique est large bande. Seuls les modes $q = 2k$ sont détectés par le super-réseau.

Il est possible de passer outre les phénomènes de génération dans un super-réseau en utilisant une couche métallique et les effets non-linéaires au sein du substrat pour générer un spectre de fréquence atteignant le terahertz (figure 4.8). Dans ces conditions, la fonction de détection du super-réseau apparaît clairement sur le spectre observé.

Dans ce cas de figure, le champ électromagnétique réfléchi est faible comparé au champ incident. Chaque fois que la courbe de dispersion passe par $q = 2k$, un pic à la fréquence correspondante est observé.



4.4 Rôle de la longueur d'onde sonde dans la détection des super-réseaux d'arséniure de gallium

L'influence de la longueur d'onde sonde sur la sensibilité du super-réseau présente des maximums de sensibilité corrélés aux transitions énergétiques entre les niveaux électroniques dans le super-réseau.

La dynamique en longueur d'onde de la fonction de détection est largement dominée par les coefficients de couplage photo-élastique P_{ij} . La dépendance en longueur d'onde de ces derniers est mal connue, cependant la réponse du super-réseau passe par un maximum en s'approchant des transitions. En effet, le passage d'une onde acoustique dans le super-réseau va légèrement modifier le niveau en énergie des transitions électroniques ; en plaçant la longueur d'onde sonde au même niveau énergétique qu'une transition électronique, le passage d'une onde acoustique va basculer l'énergie de la transition électronique de part et d'autre du niveau d'énergie du faisceau sonde, provoquant de ce fait une grande variation relative de la réflectivité du super-réseau.

Cette dynamique est représentée en figure 4.9, montrant l'amplitude du signal acoustique détecté par un super-réseau dont le premier gap est situé à une fréquence de 200 GHz en fonction de la longueur d'onde sonde.

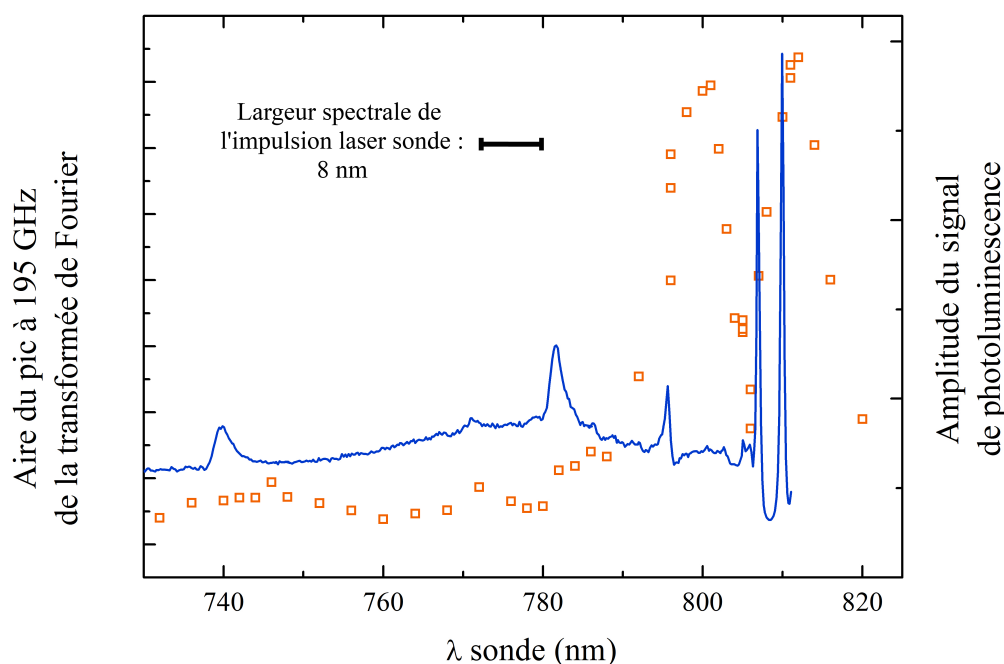


FIGURE 4.9 – Carré orange : aire du pic à 195 GHz à basse température ($T = 15$ K) en fonction de la longueur d'onde du faisceau sonde. Courbe bleue : Signal de photoluminescence en excitation du super-réseau.

Les pics de photoluminescence en excitation sont proches des pics de fortes réponses acoustiques du système en détection sans pour autant les suivre avec précision. Les effets

CHAPITRE 4. TRANSDUCTION OPTO-ACOUSTIQUE DANS LES SUPER-RÉSEAUX

de convolution avec la largeur spectrale du laser femtoseconde rendent difficile l'interprétation de ces données en terme de transition électronique. Cependant, le maximum de détection du super-réseau est clairement lié à la présence des transitions les plus fortement visibles en **PLE**, bien que la largeur spectrale du faisceau sonde ne permette par d'atteindre la résolution nécessaire pour distinguer les transitions $E1HH1$ et $E1LH1$.

5 Génération et détection avec des super-réseaux

Cette section est consacrée à la description des structures à base de super-réseaux permettant la transduction opto-acoustique de phonons subterahertz et terahertz.

5.1 Les doubles super-réseaux

Le maximum de sensibilité (pour le mode $q = 2k$) en détection d'un super-réseau ne correspond pas aux maximum de génération (mode $q = 0$). Une solution proposée à l'INSP consiste en l'utilisation de deux super-réseaux de pas légèrement différents; le pas du second super-réseau est ajusté de façon à ce que la fréquence du mode $q = 2k$ corresponde à la fréquence du mode $q = 0$ du premier super-réseau. Cette méthode permet un bien meilleur recouvrement des fonctions de génération et de détection.

Le figure 4.10 montre le gain de sensibilité qu'apporte l'utilisation de deux super-réseaux. Les conditions expérimentales sont similaires :

- $P_p = 70$ mW
- $T = 12$ K

La différence d'épaisseur parcourue n'explique pas le gain de sensibilité avec l'échantillon à double super-réseau.

L'utilisation d'un super-réseau à gradient d'épaisseur⁶ permet d'accorder aisément les épaisseurs des super-réseaux et facilite l'accord des fréquences de génération et de détection.

L'efficacité de transduction des super-réseaux est grandement améliorée dans cette configuration.

5.2 Vers les super-réseaux à cavité optique

Une autre méthode permettant de détecter ce que génère le super-réseau consiste – comme le montre la fonction de détection (équation 4.16) – à augmenter la réflectivité de l'onde électromagnétique⁷ à l'interface entre le super-réseau et le substrat, a et b les amplitudes du champ électromagnétique sont tous deux non nuls. Ainsi, dans cette configuration, le terme $2a_mb_me^{iqz}$ de l'intégrale photo-élastique donne une contribution non nulle pour le mode $q = 0$.

Les figures 4.11 montre une simulation de la réponse du super-réseau en prenant un milieu effectif à la place du super-réseau. Dans le cas où l'indice effectif du super-réseau

6. Ce gradient d'épaisseur de quelques pour-cents appelé wedge est réalisé en arrêtant la rotation de l'échantillon lors de l'épitaxie. Un gradient d'épaisseur se forme alors naturellement dans une direction.

7. La partie contra-propagative de l'onde.



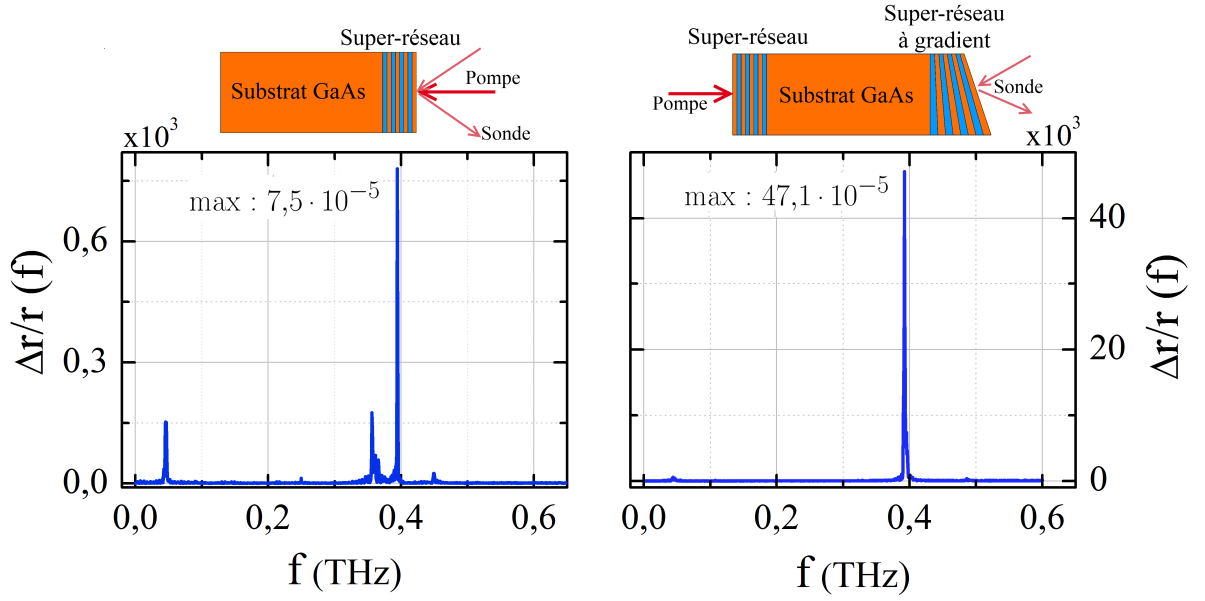


FIGURE 4.10 – Comparaison de l'efficacité de transduction d'un super-réseau simple et d'un double super-réseau.

est identique à l'indice du substrat, il n'y a pas de réflexion en face arrière du super-réseau, et le mode à $q = 0$ est absent du spectre. Dans le cas d'un indice effectif différent de l'indice du substrat, le saut d'indice provoque une réflexion à l'arrière du super-réseau et autorise la détection du mode $q = 0$.

Expérimentalement, un échantillon à simple super-réseau présente cette caractéristique (figure 4.12) et permet l'observation du mode $q = 0$.

Dans le cas d'une génération large bande par un transducteur métallique (figure 4.12), l'ensemble des modes $q = 0$ et $q = 2k$ sont visibles avec une grande sensibilité.

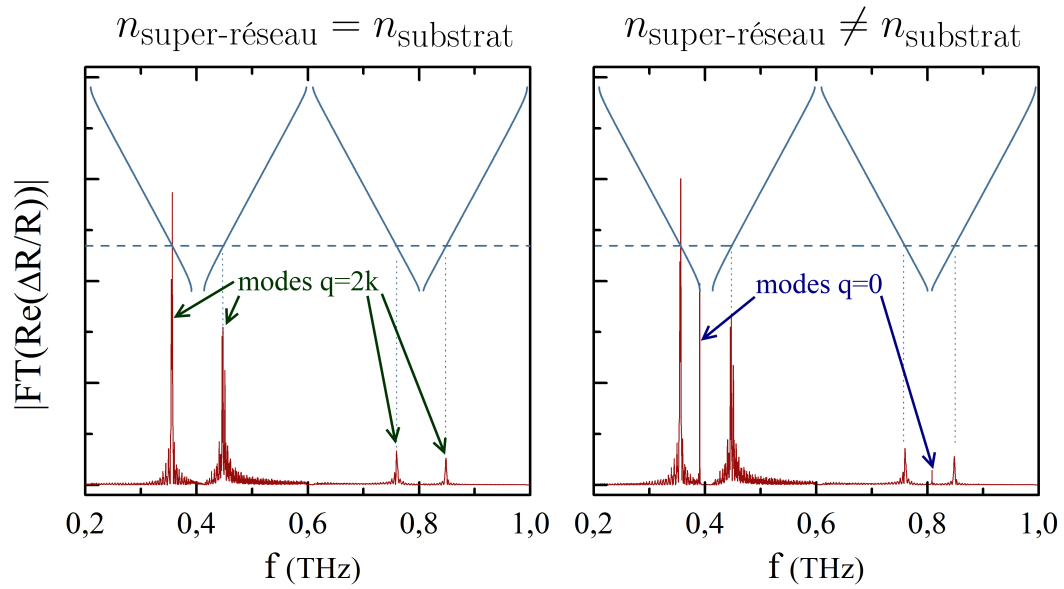
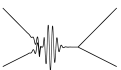


FIGURE 4.11 – Simulation du spectre acoustique détecté sur un super-réseau avec (figure b.) et sans (figure a.) réflexion sur la face arrière du super-réseau. Avec réflexion, le mode $q = 0$ est aussi détecté par le super-réseau.



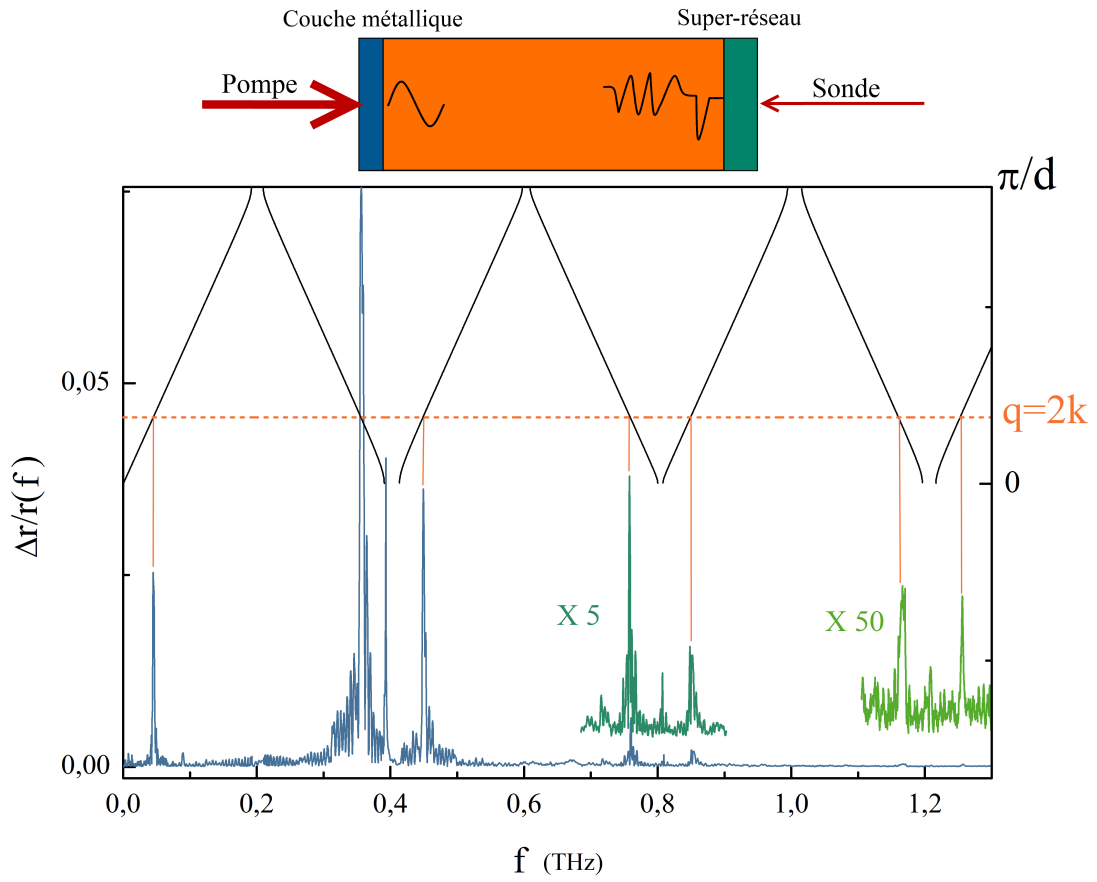


FIGURE 4.12 – Spectre d'un signal acoustique large bande généré sur un film d'aluminium et détecté sur un super-réseau à 400 GHz possédant une forte réflectivité électromagnétique à l'interface super-réseau/substrat. Les modes $q = 2k$ mais aussi les modes $q = 0$ sont visibles.

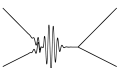
6 Conclusion

La configuration en double super-réseau, bien que très performante, présente des difficultés techniques de fabrication. L'épithaxie par jet moléculaire de structures *GaAs/AlAs* est une technique bien maîtrisée permettant de réaliser des échantillons de grande qualité, cependant elle présente des limites quand il s'agit de faire croître des structures sur chacune des faces d'un substrat. De plus, en gardant à l'idée d'utiliser les super-réseaux comme outils pour la spectroscopie acoustique terahertz, il est plus commode d'imaginer une configuration où il faudrait déposer une seule et unique structure sur un échantillon.

Les échantillons présentant une réflectivité importante à l'interface super-réseau/substrat sont une solution alternative à l'utilisation des super-réseaux en transduction acoustique dans le régime terahertz et sub-terahertz. Une seule structure permet de générer et détecter les ondes acoustiques. L'idée consistant à jouer sur la réflectivité à l'arrière du super-réseau mène naturellement à imaginer des structures mettant en jeu des micro-cavités optiques au sein desquelles un super-réseau joue le rôle de transducteur opto-acoustique.

Le concept de super-réseau inclus dans une cavité optique sera développé dans le chapitre suivant (chapitre 5).

L'étude de la dépendance en longueur d'onde de la réponse acoustique des super-réseaux présente des défis techniques. Les variations rapides des coefficients photo-élastiques à l'approche des transitions électroniques et le peu de connaissance de ces derniers rend difficile l'interprétation des spectres obtenus avec les laser impulsions femtosecondes dont la largeur spectrale peut atteindre 10 nm. Il est cependant clair que la réponse optimale en longueur d'onde d'un super-réseau en génération et détection est très différente et nécessite l'utilisation d'un schéma de montage asynchrone pour obtenir une efficacité de transduction maximale.

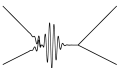


CHAPITRE 5

SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

Sommaire

1	Présentation de l'échantillon	87
1.1	Miroir de Bragg	88
1.2	Mode de résonance de la cavité Fabry-Pérot	90
1.3	Champ électromagnétique au sein de la cavité	91
2	Caractérisation de l'échantillon	92
2.1	Mode de cavité	92
2.2	Photoluminescence du super-réseau	93
3	Résultats	95
3.1	Modes acoustiques au sein de la micro-cavité optique	95
3.2	Échos acoustiques	95
3.3	La technique pompe-sonde asynchrone	99
3.4	Dépendance en longueur d'onde pompe	100
3.5	Dépendance en longueur d'onde sonde	100
3.6	Sensibilité de la cavité au sens de propagation de l'onde acoustique .	103
4	Conclusion	106



Antoine de Saint-Exupéry
*Ce qui embellit le désert, dit le petit prince, c'est qu'il cache un puits
quelque part...*

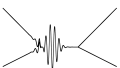
*L*es super-réseaux s'avèrent d'excellents transducteurs opto-acoustiques tant pour la génération que pour la détection d'ondes acoustiques de très hautes fréquences. Les super-réseaux simples présentent un inconvénient en terme de transduction : ces structures émettent et détectent efficacement à des fréquences différentes. Toutefois, la réflexion optique à l'interface super-réseau/substrat permet de lever partiellement cet obstacle et de détecter les modes acoustiques émis par le super-réseau à $q = 0$.

Afin de renforcer cette réflexion optique il est possible d'intercaler un miroir de Bragg optique entre le super-réseau et le substrat réalisant ainsi une semi-cavité optique. Les possibilités d'un tel dispositif peuvent être exaltées par l'ajout d'un autre miroir de Bragg optique à la surface. Le fait d'insérer le super-réseau au sein d'une micro-cavité optique permet d'augmenter l'intensité du champ électromagnétique dans le super-réseau. La cavité optique est favorable à la génération acoustique et permet d'augmenter sensiblement la détection des modes émis. Le dispositif ainsi réalisé constitue donc un émetteur-récepteur d'ondes acoustiques subterahertz et permet l'étude des ondes acoustiques effectuant des allers retours au sein du substrat.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

Notations

- q : vecteur d'onde acoustique
- $Z = \rho v$: impédance acoustique
- $\vec{E}, \vec{E}_i$: champ électromagnétique (dans la couche i)
- a_i, b_i : amplitude du champ électromagnétique à l'entrée de la couche i
- k : vecteur d'onde électromagnétique
- B : module élastique
- ρ : masse volumique
- c_v : capacité thermique massique
- n : indice optique



1 Présentation de l'échantillon

Comme l'ensemble des échantillons présentés dans cette thèse, le super-réseau à cavité optique a été réalisé par A. Lemaître au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures. L'échantillon (B1R112) a été obtenu par épitaxie par jet moléculaire à partir d'un substrat d'arséniure de gallium. Sa structure est présentée sur la figure 5.1.

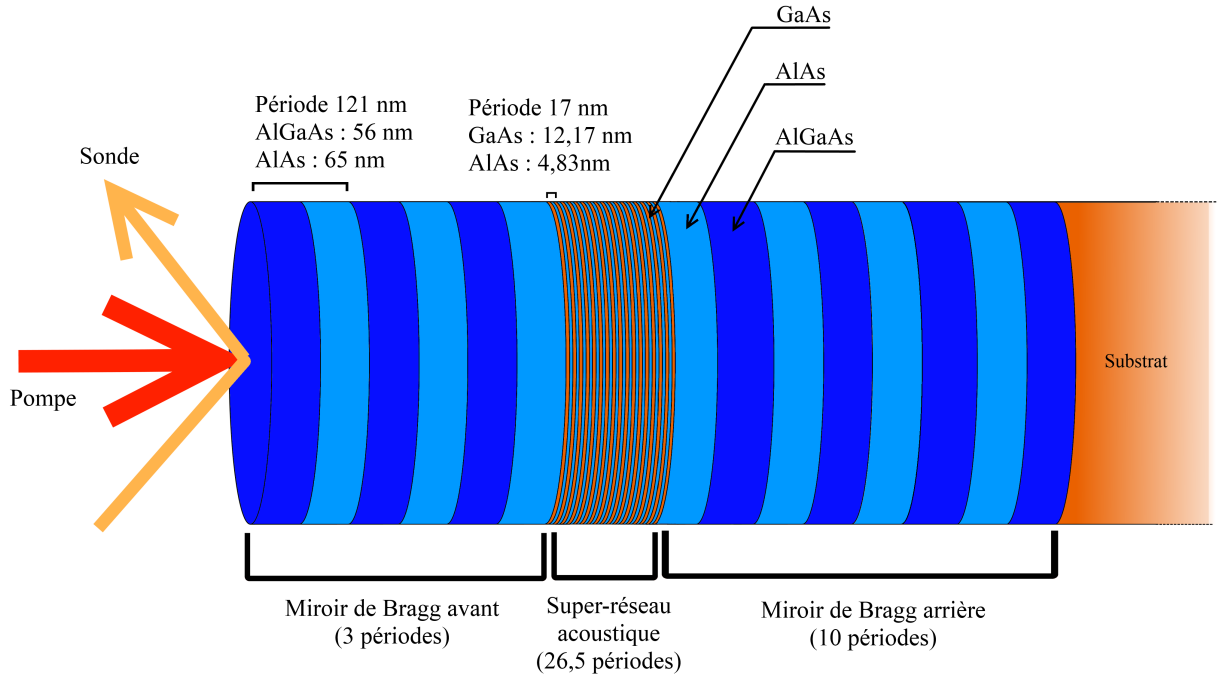


FIGURE 5.1 – Schéma de la structure de l'échantillon B1R112. Un super-réseau acoustique *AlAs/GaAs* à 300 GHz est placé au sein d'une micro-cavité optique.

Cette structure est constituée de deux miroirs de Bragg formant la cavité optique et d'un super-réseau acoustique placé dans l'espace interstitiel entre les miroirs de Bragg.

Le miroir avant est constitué de 3 bicouches de *AlGaAs* et de *AlAs* dont la période est de 121 nm. Le miroir arrière est quant à lui constitué de 10 bicouches. Le nombre de couches fixe la réflectivité des miroirs et aussi la largeur du mode de cavité. Concernant notre échantillon, il est souhaitable d'avoir un mode de cavité relativement large, d'une dizaine de nanomètres, afin de ne pas filtrer spectralement les faisceaux pompe et sonde ¹. Quelques précisions concernant les miroirs de Bragg sont données dans la section suivante (section 1.1 p.88).

Le super-réseau acoustique est conçu pour vibrer à 290 GHz (La relation de dispersion du super-réseau est calculée en figure 5.2). Les épaisseurs des couches sont agencées dans

1. La largeur spectrale d'émission des lasers femto-secondes est d'une dizaine de nanomètres. Filtrer une composante spectrale reviendrait à élargir temporellement l'impulsion et détruirait la résolution temporelle.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

un rapport $\frac{3\lambda}{4} = 12,17 \text{ nm}$ pour le *GaAs* et $\frac{\lambda}{4} = 4,83 \text{ nm}$ pour l'*AlAs*. L'épaisseur totale de la bicouche fait 17 nm .

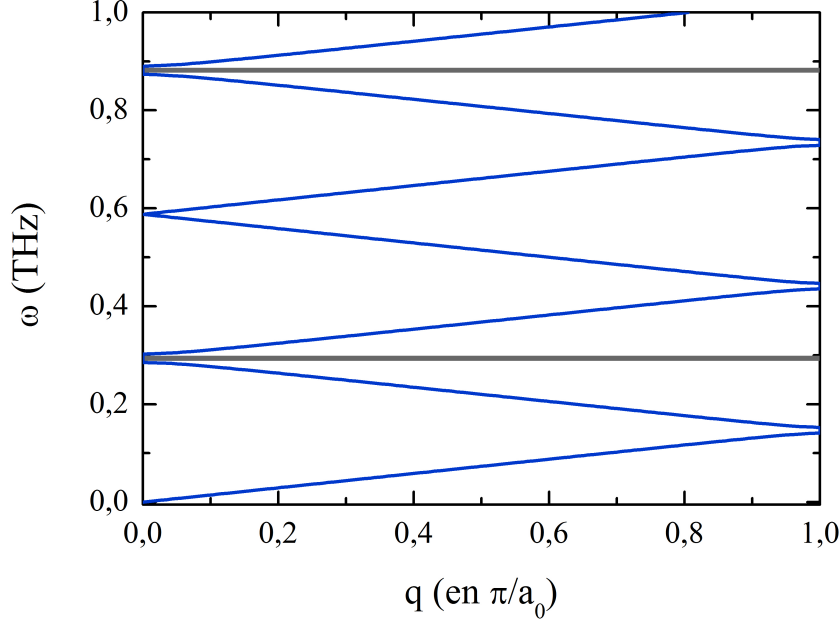


FIGURE 5.2 – Relation de dispersion du super-réseau acoustique inclus dans la micro-cavité optique. Le premier gap est situé à 285 GHz .

Le premier gap est situé à 290 GHz , ce super-réseau peut donc générer des ondes acoustiques du mode $q = 0$ à 290 GHz , mais aussi des gaps suivants à 600 GHz et 910 GHz .

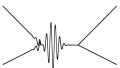
1.1 Miroir de Bragg

Les miroirs utilisés dans la fabrication de la cavité optique sont constitués d'un empilement de couches d'indice optique différent. Les couches d'*AlGaAs* et d'*AlAs*² constituant le miroir ont la même épaisseur optique $\frac{\lambda_0}{4}$ avec $\lambda_0 = 786 \text{ nm}$. Les ondes réfléchies aux interfaces de cette structure interfèrent constructivement ; ainsi au bout de quelques périodes de l'empilement, une grande partie du champ électromagnétique est réfléchi en dehors de la structure. Il n'y a pas d'expression simple de la réflectivité en fonction de la longueur d'onde, mais au voisinage de λ_0 [66] :

$$R = |r|^2 = \left(\frac{1 - \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_1}{n_2} \right)^{2N}}{1 + \frac{n_s}{n_0} \left(\frac{n_1}{n_2} \right)^{2N}} \right)^2 \quad (5.1)$$

avec n_0 et n_s les indices des milieux extérieurs et du substrat ; ici le milieu extérieur est l'hélium gazeux du cryostat $n_0 = 1$, et $n_s = 3.69 + 0.11i$ l'indice de l'arséniure de

2. $n_{AlGaAs} = 3,51$ et $n_{AlAs} = 3,02$



gallium pour une longueur d'onde de 755 nm et à 30 K. n_1 , $n - 2$ sont respectivement les indices optiques d'*AlAs* et *GaAs*

Un miroir de Bragg est d'autant plus réfléchissant que le contraste d'indice optique entre ses constituants est grand et que le nombre de couches est important. La figure 5.3 représente le module et la phase de la réflectivité r du miroir de Bragg situé à l'arrière de la cavité. Ce dernier compte 10 paires de couches et a une réflectivité maximum au voisinage de λ_0 d'environ 97,4 %. Le miroir avant quant à lui compte 3 paires de couches et possède une réflectivité de 80 %.

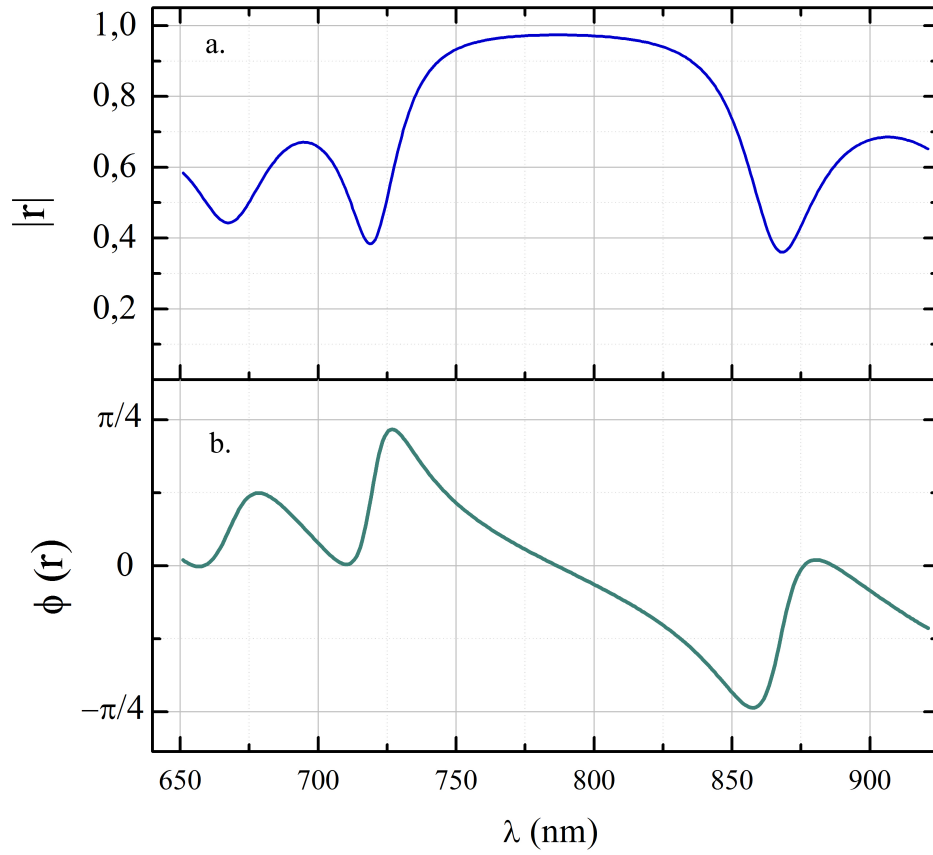


FIGURE 5.3 – Module et phase de la réflectivité du miroir de Bragg situé à l'arrière du super-réseau pour $N = 10$ paires de couches et une longueur d'onde centrale de 786 nm.

Contrairement aux surfaces métalliques, le champ électromagnétique pénètre fortement à l'intérieur du miroir de Bragg. Cette longueur de pénétration L_{DBR} ne dépend pas du nombre de couches du miroir [83] :

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_s (n_1 - n_2)} \quad (5.2)$$

Ici, $L_{DBR} = 2\,304$ nm.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

Une autre différence avec les miroirs métalliques provient du fait que la réflectivité possède une forte dépendance en longueur d'onde. En dehors d'un large plateau de réflectivité³ centré autour de λ_0 où la réflectivité r est quasi-constante, r oscille et diminue rapidement avec la longueur d'onde. La largeur du plateau ne dépend pas du nombre de couches :

$$\Delta\lambda_0 = \frac{4\lambda_0}{\pi} \arcsin\left(\frac{n_2 - n_1}{n_2 + n_1}\right) \quad (5.3)$$

1.2 Mode de résonance de la cavité Fabry-Pérot

La micro-cavité est constituée de l'assemblage de deux miroirs de Bragg⁴ séparés par une distance L_c correspondant à une épaisseur optique de $2\lambda_0$.

Le champ électromagnétique dans la cavité présente des résonances définies par la condition suivante :

$$k_z L_c + 2\pi n_{eff} L_{DBR} \left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0}\right) = p\pi \quad (5.4)$$

où k_z est le vecteur d'onde électromagnétique suivant la composante normale aux plans des miroirs. n_{eff} est l'indice du milieu effectif que constitue le super-réseau. p est un entier. Par conséquent, pour les modes de résonance, le vecteur d'onde k_z est quantifié :

$$k_z = \frac{\pi}{L_c + L_{DBR}} \left(p + \frac{2L_{DBR}}{\lambda_0}\right) \quad (5.5)$$

Cette expression diffère de l'expression des modes de résonance pour une cavité Fabry-Pérot avec miroir métallique $k_z = p\pi/L_c$. La pénétration du champ électromagnétique dans les miroirs de Bragg influence profondément les modes de résonance de la cavité.

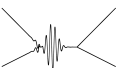
La figure 5.4 représente la réflectivité de la structure contenant le super-réseau. Une seule résonance est observée à 792 nm au milieu de la zone de rejet des miroirs de Bragg, et correspond au mode $p = 4$ de la cavité. Les autres modes de cavité ne sont pas visibles. Pour une micro-cavité, la longueur L_c est trop petite pour permettre aux autres modes d'être suffisamment proches pour être visibles⁵ dans le plateau de réflectivité des miroirs de Bragg. La largeur à mi-hauteur du mode de cavité est $\Delta\lambda = 20$ nm, ce qui est relativement large pour une telle micro-cavité. Il est assez facile avec des miroirs de Bragg *GaAs/AlAs* de fabriquer des micro-cavités donc la largeur à mi-hauteur vaut quelques dixièmes de nanomètres.

La largeur du mode de cavité doit être convoluée à la largeur spectrale d'un laser impulsif. L'utilisation de laser pulsé femto-seconde dont la largeur spectrale caractéristique est d'environ 10 nm nécessite une cavité au moins aussi large afin que toute l'énergie de l'impulsion soit utilisée dans la transduction opto-acoustique et non réfléchi en dehors de la cavité.

3. En tout point similaire à une bande interdite, et appelé stop band.

4. Miroir avant avec 3 périodes, miroir arrière avec 10 périodes.

5. Les modes 3 et 5 sont respectivement à 867 nm et 707 nm en dehors de la stop-band.



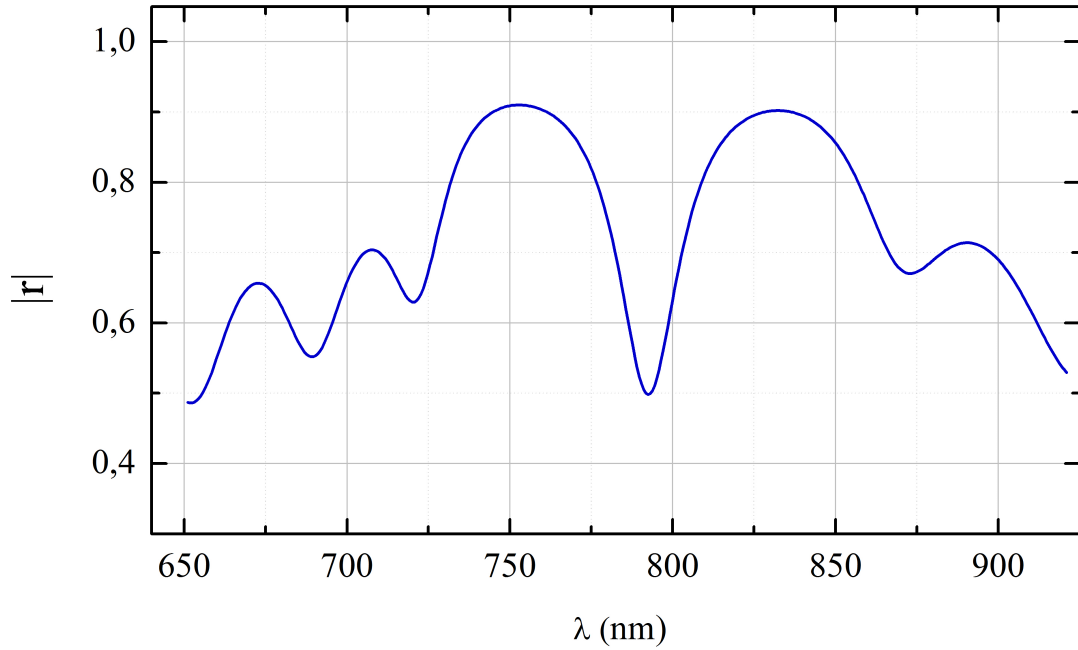


FIGURE 5.4 – Réflectivité de la cavité Fabry-Pérot contenant un super-réseau acoustique.

1.3 Champ électromagnétique au sein de la cavité

Le champ électromagnétique est profondément modifié par la micro-cavité optique (figure 5.5). Auparavant le champ suivait une dynamique exponentielle décroissante⁶ modulée par le contraste d'indice entre les couches du super-réseau. Ici, l'énergie électromagnétique suit principalement la modulation du mode stationnaire au sein de la cavité.

Contrairement au super-réseau simple, la composante contre-propagative du champ électromagnétique est du même ordre de grandeur que la composante du champ se propageant directement. Cette structure permet donc de visualiser les modes acoustiques $q = 0$, difficilement observables avec une configuration classique de simple super-réseau.

6. Absorption dans l'arséniure de gallium

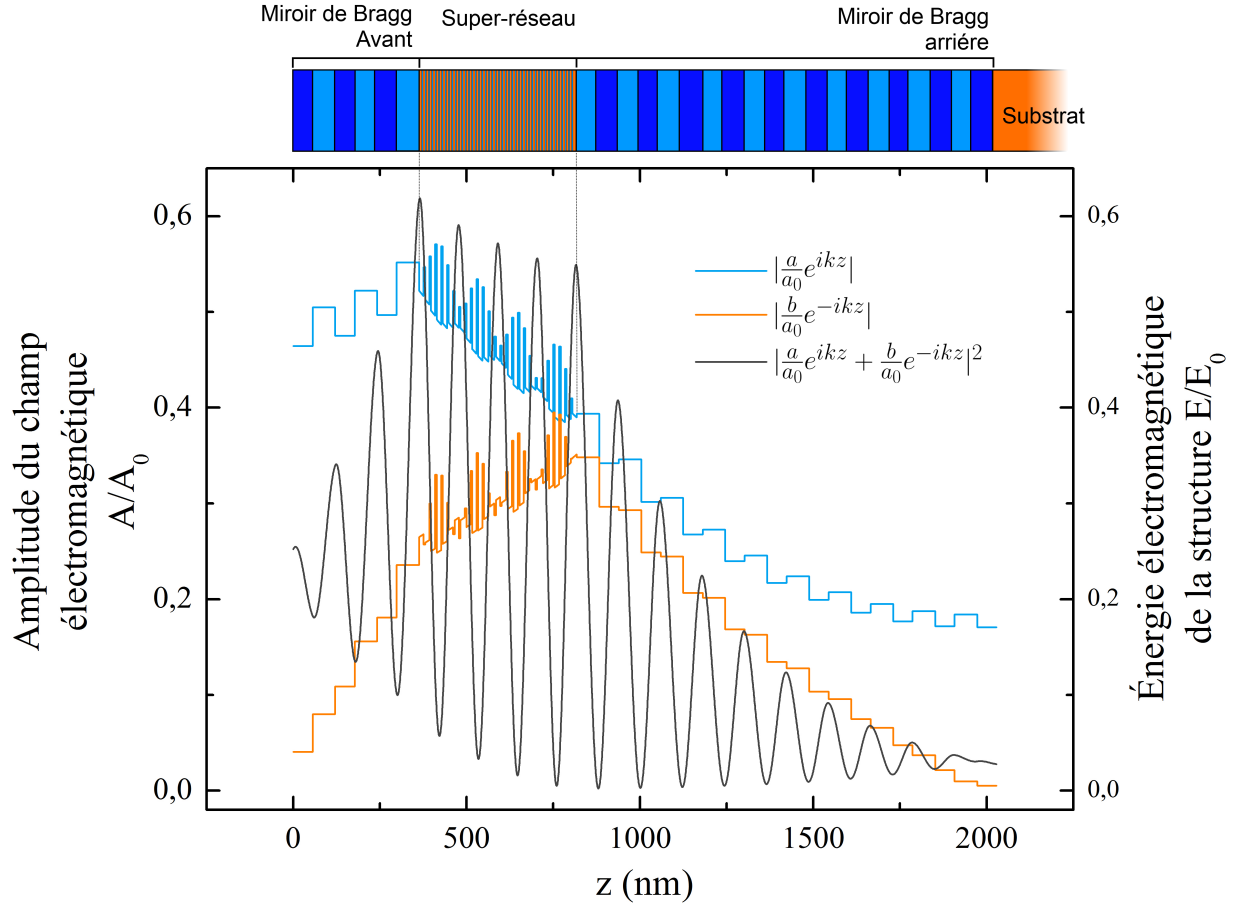


FIGURE 5.5 – Champ et énergie électromagnétique dans les miroirs de Bragg constituant la cavité optique et le super-réseau pour $\lambda_0 = 792$ nm.

2 Caractérisation de l'échantillon

Cette section est consacrée à la caractérisation des propriétés optiques du super-réseau (photoluminescence) et de la micro-cavité (mesure de réflectivité).

2.1 Mode de cavité

Le mode de cavité mesuré est fortement décalé par comparaison aux calculs (figure 5.6). Alors que les calculs donnent un mode de cavité centré sur $\lambda = 792$ nm, les modes de cavité mesurés à température ambiante et à basse température (12 K) sont respectivement centrés sur $\lambda = 770$ nm et $\lambda = 756$ nm. Une telle différence peut-être attribuée à une légère variation de quelques pour cents de l'épaisseur des couches constituant le super-réseau. La réponse acoustique n'est pas sensible à cette légère variation, l'épaisseur totale du super-réseau est quant à elle suffisamment impactée pour déplacer le mode de cavité d'une



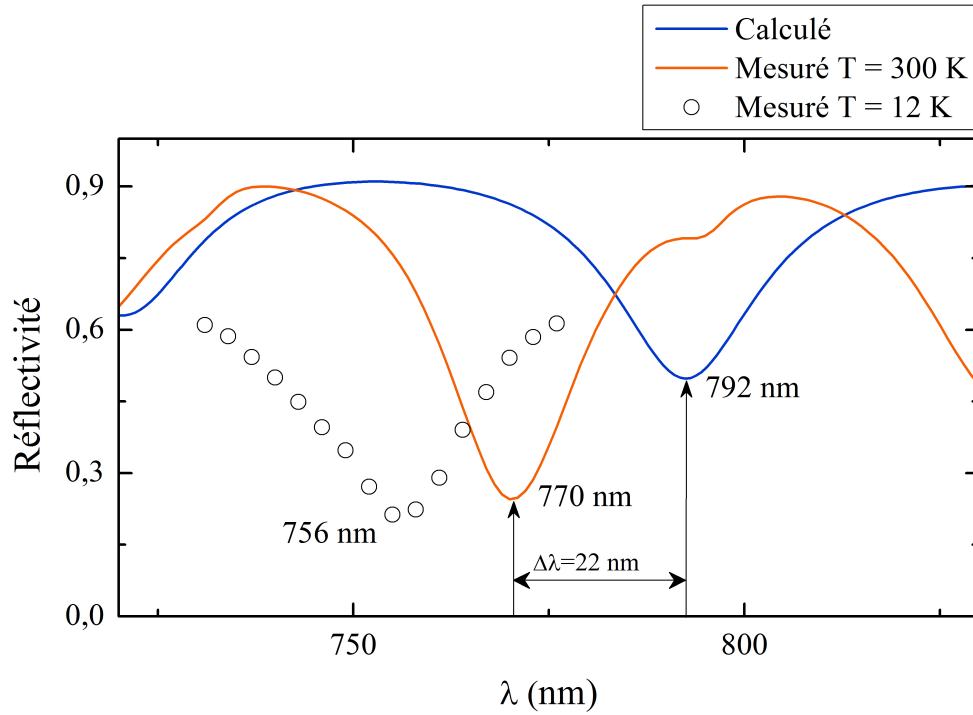


FIGURE 5.6 – Mode de cavité calculé et mesuré à l'ambiante et à basse température.

vingtaine de nanomètres.

2.2 Photoluminescence du super-réseau

Une fois les couches constituant le miroir de Bragg supérieur découpées au moyen d'une attaque acide sélective, les niveaux d'énergie du super-réseau mis à nu peuvent être caractérisés par des méthodes de photoluminescence et de photoluminescence en excitation.

Pour rappel, la photoluminescence est une technique permettant d'étudier les niveaux d'énergie radiatifs de la structure. Un laser de haute énergie excite les électrons qui vont alors peupler des niveaux d'énergie élevés ; en se désexcitant ces derniers vont émettre des photons dont l'énergie est liée aux niveaux mis en jeu.

Les transitions $E1HH1$ et $E1LH1$ sont situées respectivement à 800 nm et 793 nm pour ce super-réseau (figure 5.7).

Les énergies des niveaux électroniques du super-réseau laissent supposer une importante réponse acoustique autour de 800 nm. L'échantillon B1R112, dont les caractéristiques ont été données précédemment, présente un défaut de fabrication : le mode de cavité est à 770 nm à la température ambiante et à 756 nm. Par conséquent, le mode de cavité est centré autour d'une longueur d'onde bien trop éloignée de la transition pour avoir un impact suffisant à 800 nm.

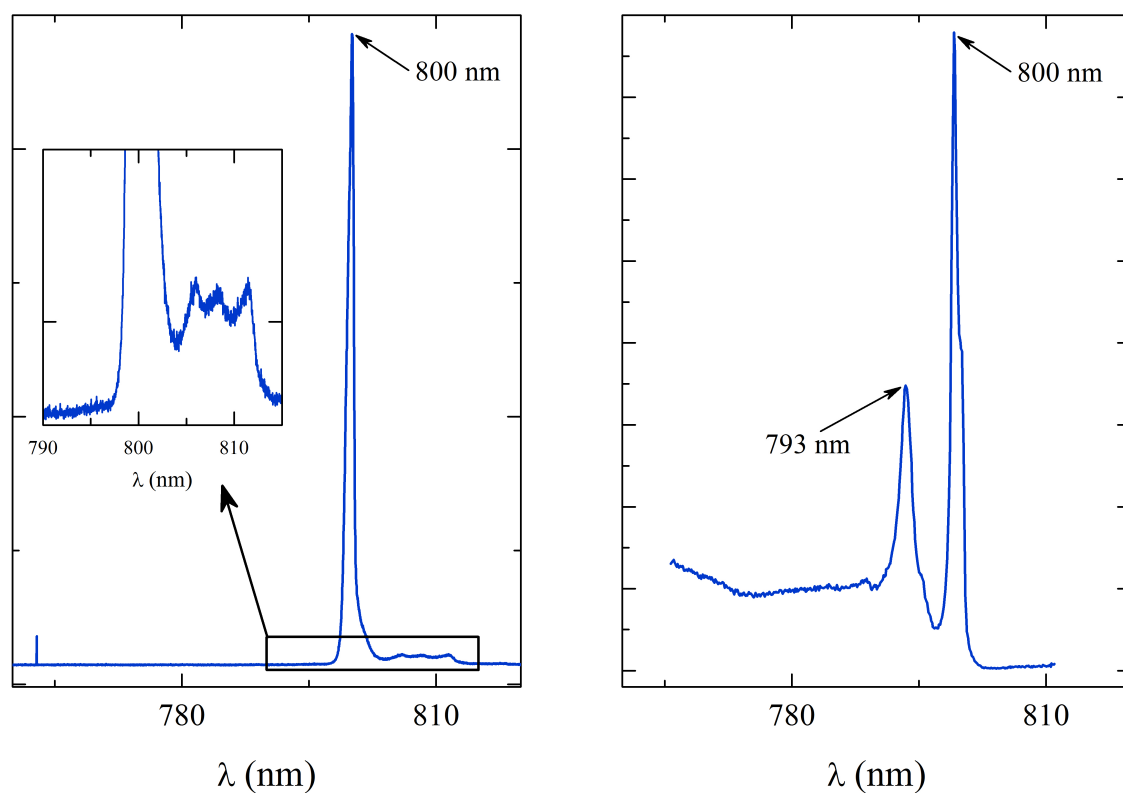
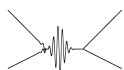


FIGURE 5.7 – Photoluminescence et photoluminescence en excitation du super-réseau acoustique de l'échantillon à micro-cavité optique. Mesures réalisées à une température de 10 K.



Cependant, loin des niveaux énergétiques du super-réseau, la réponse acoustique de ce dernier -bien que plus faible- est relativement plate. Cette erreur de conception offre donc la possibilité d'étudier la réponse acoustique du super-réseau inclus dans une cavité optique en fonction de la longueur d'onde sans être perturbé par les variations intrinsèques au super-réseau.

La suite de ce chapitre sera largement consacrée à l'étude de l'influence des longueurs d'onde pompe et sonde sur la réponse acoustique de la structure.

3 Résultats

3.1 Modes acoustiques au sein de la micro-cavité optique

Fonction de détection

La fonction de détection acoustique du super-réseau inséré dans la micro-cavité est expérimentalement obtenue par une mesure en transmission d'une onde acoustique générée à l'arrière du substrat par une couche d'aluminium ou directement sur le substrat d'arséniure de gallium. Dans cette configuration, l'utilisation d'une puissance pompe élevée permet de créer une impulsion acoustique de grande amplitude dont le spectre fréquentiel va s'enrichir grâce à des effets non linéaires intervenant au cours de la propagation au travers du substrat.

Ainsi, au moment de la détection au sein du super-réseau, seule la fonction de détection agira sur les fréquences détectées (figure 5.8).

Dans cette configuration, les modes $q = 0$ et $q = 2k$ sont détectés jusqu'au térahertz montrant la grande sensibilité de la structure.

Génération par la structure

Le mécanisme de génération n'est pas modifié par la présence de la cavité optique en dehors du fait qu'elle permet un meilleur couplage avec l'onde électromagnétique. La figure 5.9 représente le spectre en fréquence d'un écho dans une configuration où les faisceaux sonde et pompe sont focalisés sur le super-réseau.

L'amplitude du mode $q = 0$ est remarquable et est largement visible jusqu'à 910 GHz.

3.2 Échos acoustiques

Les ondes acoustiques générées par le super-réseau vont ensuite se propager au sein du substrat, se réfléchir sur la face arrière et retraverser le super-réseau. L'épaisseur du substrat est d'environ $350 \mu\text{m}$, les ondes acoustiques se propagent à une vitesse d'environ $4,72 \mu\text{m/ns}$ ⁷, donnant un temps d'aller-retour d'environ $t_{\text{substrat}} = \frac{2e}{v} = 148 \text{ ns}$. Avec v la vitesse de l'onde acoustique et e l'épaisseur du substrat.

7. Vitesse des ondes longitudinales basses fréquences dans l'arséniure de gallium. Cette vitesse dépend de la fréquence et de la température.

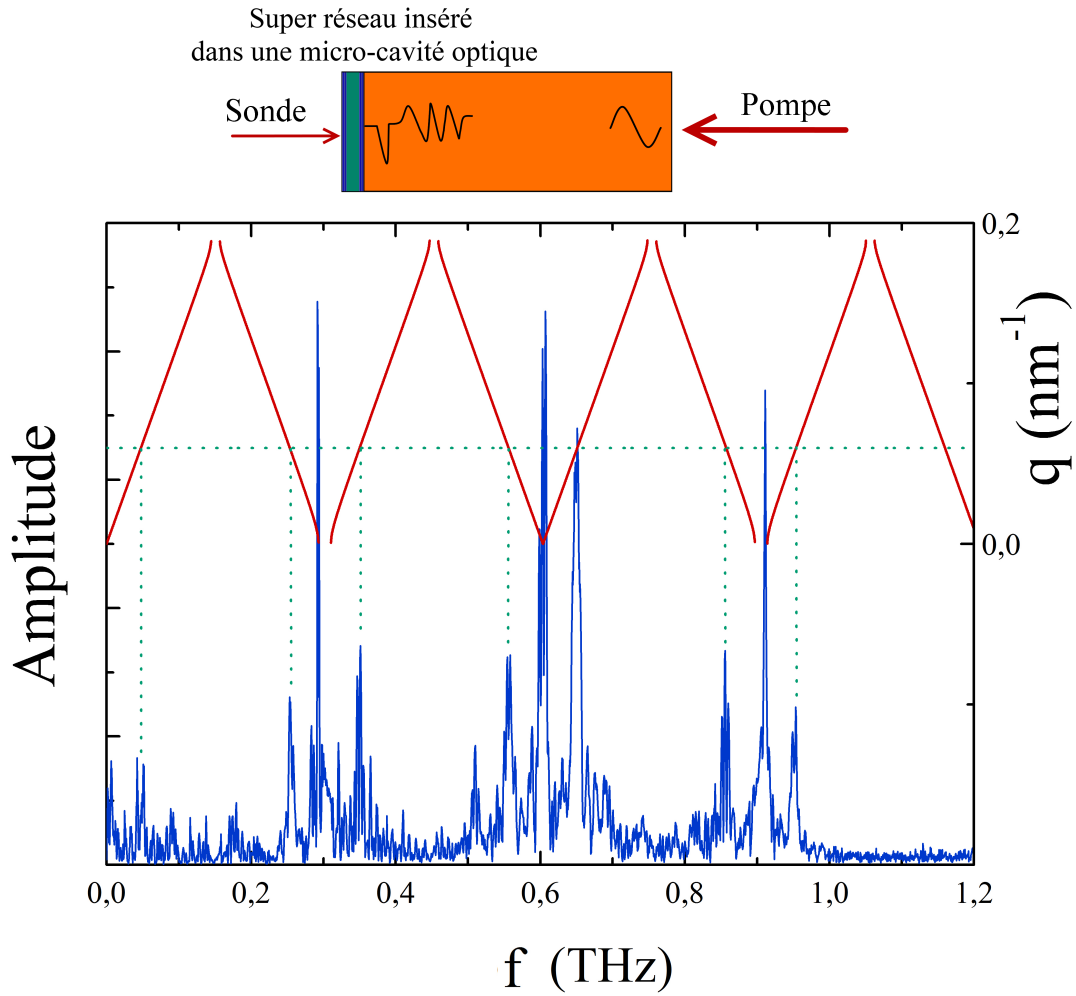


FIGURE 5.8 – Spectre d'un signal acoustique large bande généré par effet non linéaire au dos d'un substrat d'arséniure de gallium et détecté par le super-réseau inséré dans la cavité optique. L'ensemble des modes $q = 0$ et $q = 2k$ jusqu'à 1 THz sont détectés.



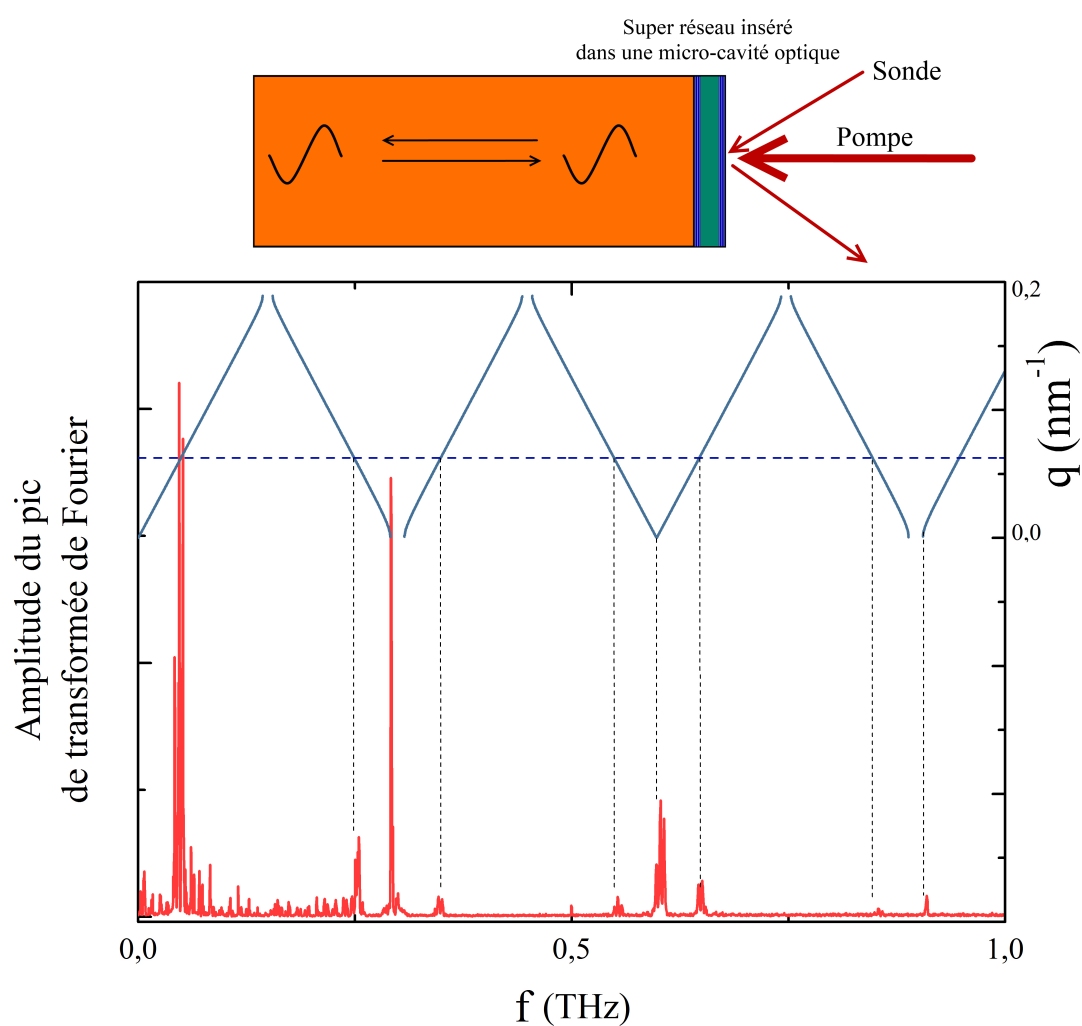


FIGURE 5.9 – Spectre de l'écho acoustique généré et détecté par le super-réseau. Les longueurs d'onde pompe et sonde sont identiques $\lambda = 748 \text{ nm}$. Les modes $q = 2k$ et $q = 0$ sont visibles jusqu'à 1 THz dans cette configuration sans effet non-linéaire de génération de hautes fréquences dans la substrat.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

La figure 5.10 est un filtre à 300 GHz d'une trace temporelle. Cette trace possède un fort contenu fréquentiel à 300 GHz présentant des variations temporelles caractéristiques d'une génération à la coïncidence et d'un écho acoustique.

Sur la figure 5.10, l'impulsion pompe arrive sur l'échantillon à $t = 0$ ps, générant fortement des ondes acoustiques à 300 GHz. Ce contenu acoustique généré à la coïncidence pompe-sonde part ensuite dans le substrat et disparaît vers 1 500 ps.

Vers 2 500 ps, la signal acoustique possède à nouveau un contenu à 300 GHz correspondant à un écho acoustique. Étant donnés les temps de traversée de l'échantillon $t_{\text{substrat}} = 148$ ns et un temps de répétition de $12,125$ ns⁸, cet écho n'est pas issu du signal généré à la coïncidence visible à peine quelques nanosecondes plus tôt :

$$t_{\text{écho}} \equiv 2ve[\tau] = t_{\text{substrat}} - n\tau = 2,5 \text{ ns} \quad (5.6)$$

Cet écho a été généré $n = 12$ impulsions de pompe plus tôt, et son temps de vol fait qu'il apparait dans la même trace temporelle qu'un signal de coïncidence généré 12 pulses plus tard.

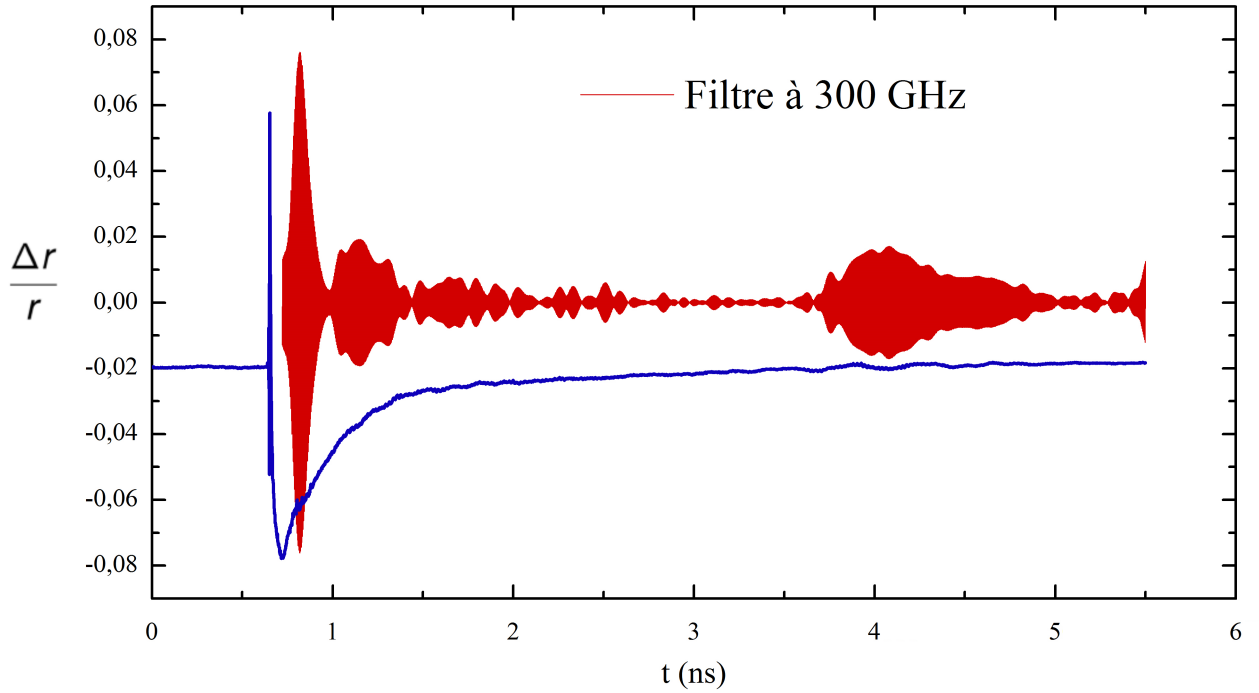


FIGURE 5.10 – Filtre fréquentiel (en rouge) d'une trace temporelle (en noir) contenant un signal de coïncidence et un écho acoustique possédant tous deux un fort contenu fréquentiel à 300 GHz.

L'utilisation d'un laser cadencé à 80 MHz implique que l'ensemble des phénomènes acoustiques observables seront repliés dans une fenêtre temporelle de 12 ns⁹ (figure 5.11).

8. Soit une fréquence de répétition de 82 MHz.

9. Sur la figure 5.10, l'arrivée de l'écho quelques instants après la coïncidence est purement fortuit.



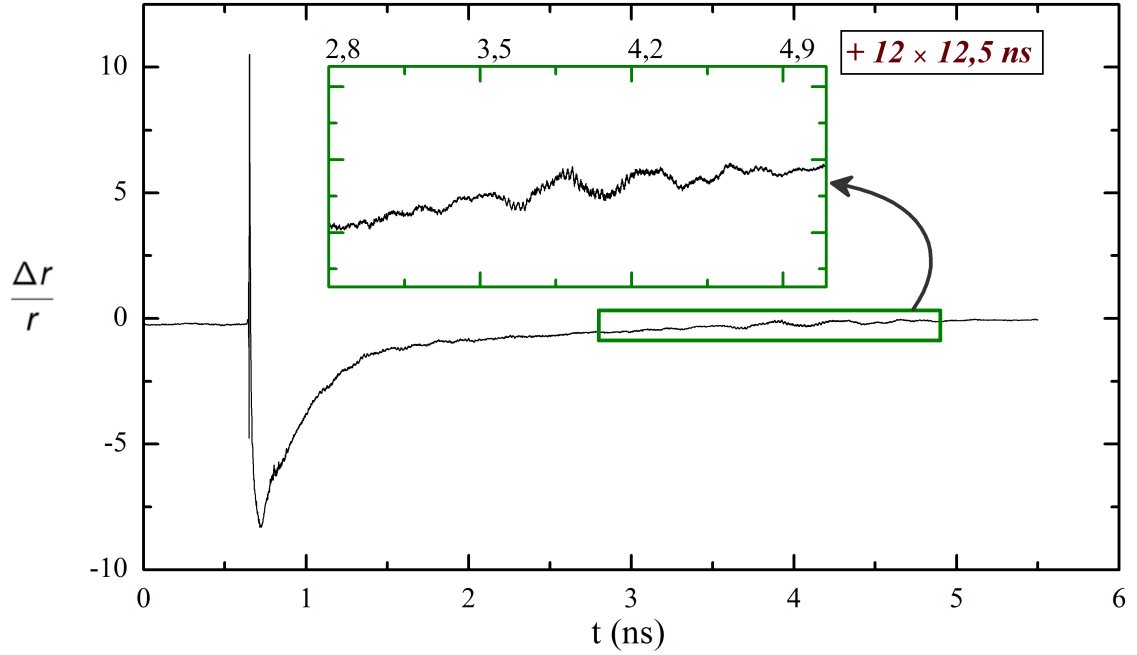


FIGURE 5.11 – Écho acoustique traversant le super-réseau 140 ns après sa génération par le même super-réseau. Cet événement est replié dans une plage temporelle de 12,125 ns, délais séparant deux impulsions du laser.

L'ensemble des mesures présentées dans la suite de ce chapitre concerne l'écho acoustique afin de se placer dans une situation réelle d'utilisation de la structure comme transducteur opto-acoustique destiné à l'étude des propriétés des matériaux via les phonons subterahertz et terahertz.

3.3 La technique pompe-sonde asynchrone

L'utilisation d'un schéma pompe-sonde classique ne permet pas d'étude aisée du rôle de la longueur d'onde sonde ou pompe sur les capacités de génération ou détection des super-réseaux. Le super-réseau à cavité optique possède une dépendance en longueur d'onde bien plus marquée que les simples super-réseaux. D. Lanzillotti a réalisé une étude de ces structures en variant non pas la longueur d'onde directement, mais en changeant l'angle d'incidence du faisceau sonde avec la normale à la surface de l'échantillon [84, 85]. Ainsi, la variation du vecteur d'onde vu par la micro-cavité $k_{eff} = nk_0 \cos \theta$ permet de reproduire la variation de longueur d'onde.

D. Lanzillotti montra avec cette méthode que le maximum de génération et de détection n'a pas lieu pour une même longueur d'onde pompe et sonde, mais avec une longueur d'onde pompe située sur le mode de cavité et une longueur d'onde sonde sur les flans du mode de cavité à haute et basse énergie (correspondant aux deux points situés à mis

Moyennant une épaisseur de substrat légèrement variable d'un échantillon à l'autre et un taux de répétition du laser variant de 78 MHz à 82 MHz, l'écho peut arriver n'importe quand dans la fenêtre de 12 ns.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

hauteur du mode de cavité).

Dans les parties suivantes un montage pompe-sonde asynchrone¹⁰, découplant les longueurs d'onde des faisceaux sonde et pompe, nous a permis d'étudier l'influence de la longueur d'onde sonde ou pompe sur la réponse acoustique de la structure.

3.4 Dépendance en longueur d'onde pompe

Le comportement de la structure vis à vis de la longueur d'onde pompe présente un comportement tout à fait classique [84, 85]. L'efficacité de génération du super-réseau dépend en régime linéaire de la quantité d'énergie électromagnétique que reçoit le super-réseau. Une micro-cavité optique permet d'améliorer le couplage entre le super-réseau et le champ électromagnétique [84, 85].

L'utilisation d'un schéma d'expérience pompe-sonde en asynchrone (voir chapitre 3) est nécessaire pour découpler l'influence de la longueur d'onde sonde de la longueur d'onde pompe. Ici, la sonde est maintenue à 754 nm, la pompe balayant tout le mode de cavité (figure 5.12).

La figure 5.12 représente l'amplitude d'un pic de transformée de Fourier du signal acoustique (mode $q = 0$ ou $q = 2k$) en fonction de la longueur d'onde pompe. Comme prévu, le maximum de génération a lieu au centre du mode de cavité. L'énergie reçue par la cavité et donc le super-réseau est maximum à 756 nm. L'amplitude de la courbe est fortement corrélée à la courbe de réflectivité ; plus la réflectivité est faible, plus l'énergie rentrant dans la cavité optique est forte, et plus le signal acoustique est intense.

3.5 Dépendance en longueur d'onde sonde

L'amplitude acoustique des modes $q = 0$ et $q = 2k$ en fonction de la longueur d'onde sonde est bien plus complexe à analyser. Cette dernière fait intervenir l'intégrale photo-élastique (annexe A) dont les termes possèdent une forte dépendance en longueur d'onde du fait de l'utilisation de la cavité optique. Les travaux de D. Lanzillotti [84, 85] réalisés avec des structures proches montrent l'existence de plusieurs maxima de détection au sein du mode de cavité optique. Les positions de ces maxima dépendent fortement de la phase du coefficient photo-élastique.

La figure 5.13 représente la variation d'intensité acoustique pour les modes $q = 0$ et $q = 2k$ en fonction de la longueur d'onde sonde. Trois maxima situés respectivement à 745 nm, 754 nm et 763 nm sont observés au sein du mode de cavité.

L'amplitude de détection en fonction de la longueur d'onde sonde et de la phase du coefficient photo-élastique est représentée en figure 5.14. Cette figure est obtenue avec un modèle simple de cavité optique définie par des conditions limites correspondant à celles de miroirs métalliques ; bien qu'éloignée de la structure réelle, la dépendance en longueur d'onde fait apparaître deux ou trois maxima se décalant de la longueur d'onde centrale du mode de cavité suivant la phase du coefficient photo-élastique.

Le coefficient photo-élastique est mal connu et sa phase peut varier très largement aux abords d'une transition électronique. Le super-réseau acoustique placé dans une ca-

10. Décrit plus en détails au chapitre 3.



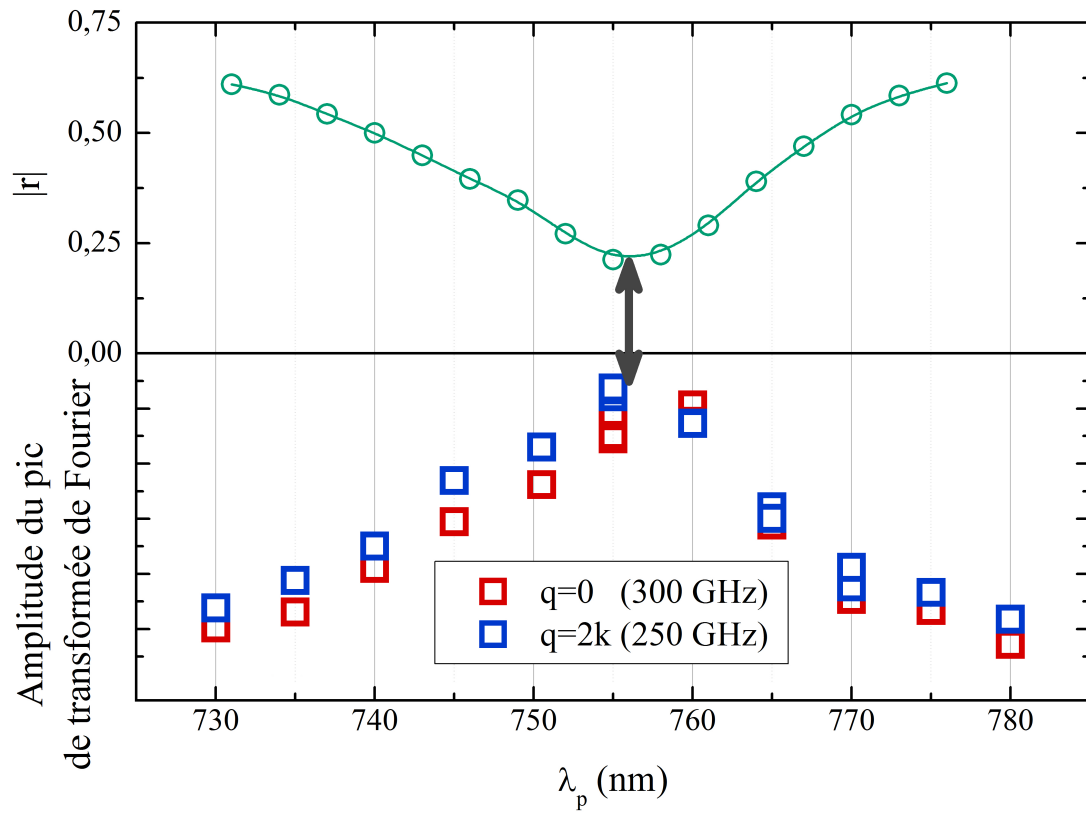


FIGURE 5.12 – Amplitude des pics de transformée de Fourier du signal acoustique correspondant aux modes $q = 0$ et $q = 2k$ en fonction de la longueur d'onde **pompe**. Acquisition faite à basse température ($T = 12$ K). L'amplitude est une image de l'énergie rentrant dans la micro-cavité optique, avec un maximal correspondant au mode de cavité à 756 nm.

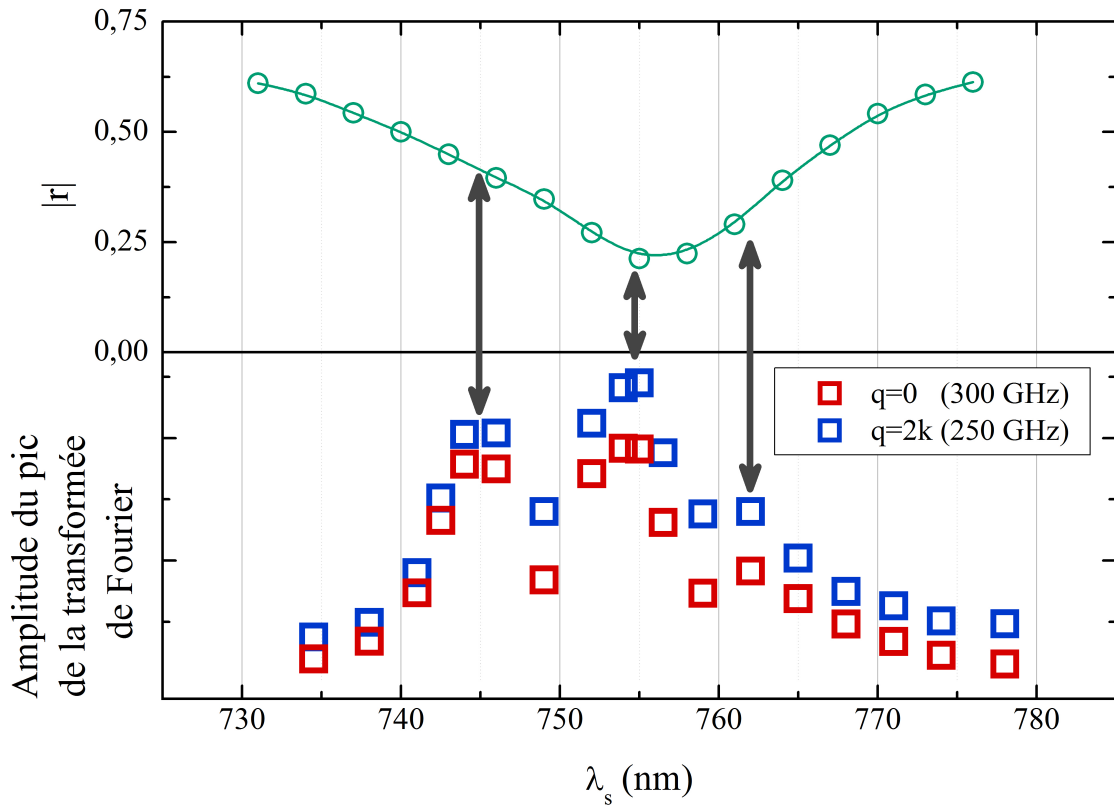


FIGURE 5.13 – Amplitude des pics de transformée de Fourier du signal acoustique correspondant aux modes $q = 0$ et $q = 2k$ en fonction de la longueur d'onde **sonde**. Acquisition faite à basse température ($T=12K$).



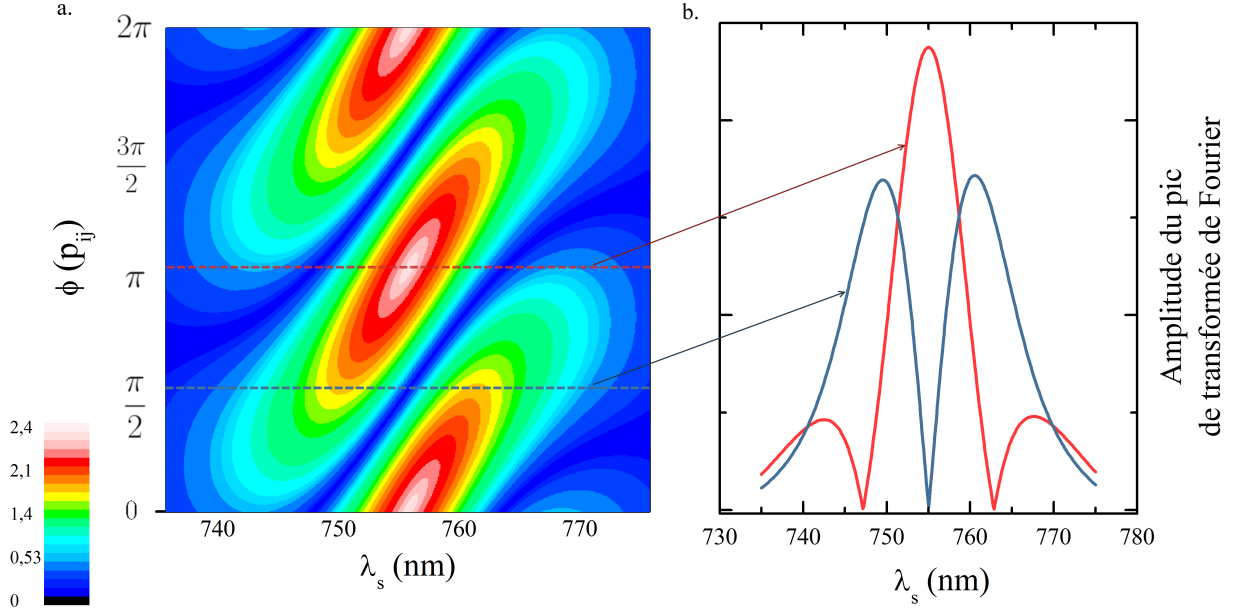


FIGURE 5.14 – Figure a. Partie imaginaire de la fonction de détection pour le mode $q = 0$ en fonction de la phase du coefficient photo-élastique et de la longueur d'onde sonde. Figure b. coupe de la fonction de détection pour deux phases 0 et $\frac{\pi}{2}$ suivant les lignes indiquées sur la figure a.

tivité optique de l'échantillon B1R112 présente ainsi une transition électronique autour de 760 nm, rendant particulièrement difficile l'interprétation de la figure 5.13. En prenant un coefficient photo-élastique P_{ij} dont la phase varie comme indiqué sur la figure 5.15 a., il est possible de reproduire en partie les variations observées expérimentalement. La partie b. de la figure 5.15 représente l'amplitude acoustique pour le mode $q = 0$ calculée sous les hypothèses précédentes ainsi que les valeurs obtenues expérimentalement ; les positions des pics sont bien reproduites, les amplitudes calculées sont relativement éloignées des mesures.

3.6 Sensibilité de la cavité au sens de propagation de l'onde acoustique

Les simulations présentées jusque là montrent –pour un même mode acoustique– une dépendance de la sensibilité de détection en fonction de la longueur d'onde optique et de la phase du coefficient photoélastique (figure 5.14). Cela signifie que le maximum de sensibilité pour une phase nulle sera de 753 nm tandis qu'une phase valant $\frac{\pi}{2}$ donnera un maximum de sensibilité à 747 nm (figure 5.14).

La phase du coefficient photo-élastique est une grandeur intrinsèque à la structure et aux matériaux utilisés. Cependant, c'est la phase totale de l'intégrale photo-élastique qu'il faut prendre en compte pour les calculs. Cette phase dépend aussi de l'onde acoustique traversant la structure.

La figure 5.16 représente l'amplitude du pic à $q = 0$ et $q = 2k$ de la transformée de Fourier glissante de l'écho acoustique. Le signal est obtenu dans une configuration pompe-

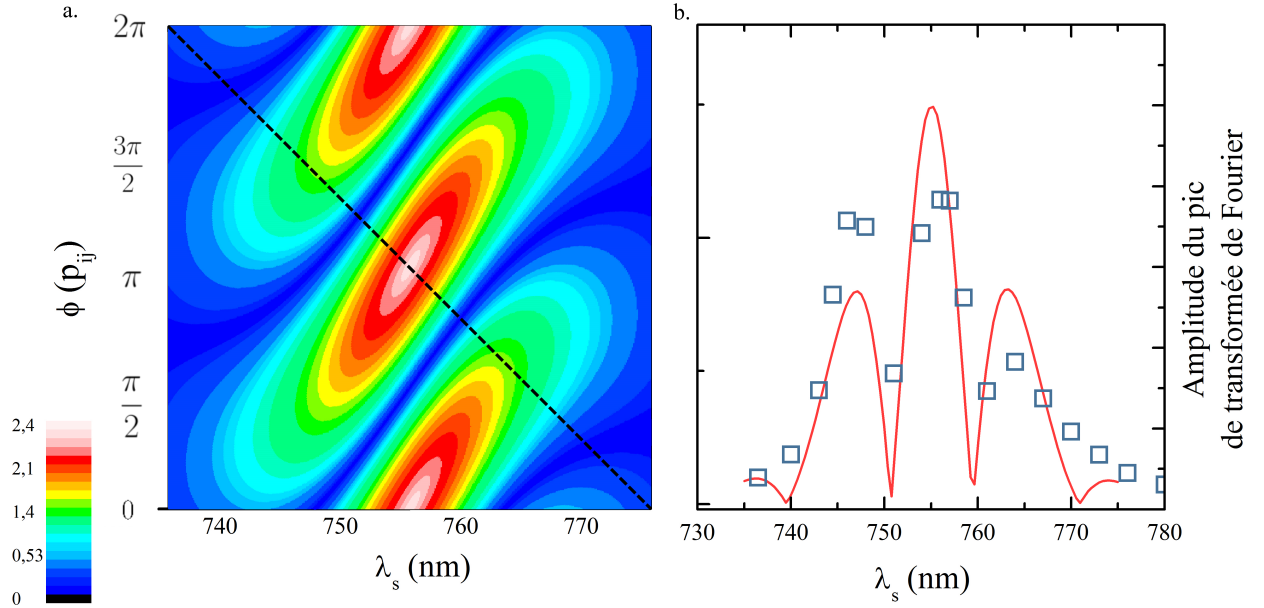


FIGURE 5.15 – Figure a. Partie imaginaire de la fonction de détection pour le mode $q = 0$ en fonction de la phase du coefficient photo-élastique et de la longueur d'onde sonde. Figure b. coupe de la fonction de détection suivant la ligne indiquée sur la figure a. ; les carrés représentent les valeurs expérimentales de l'amplitude acoustique pour le mode $q = 0$.

sonde asynchrone, permettant de maintenir l'efficacité de génération et la longueur d'onde pompe fixe tout en faisant varier la longueur d'onde sonde.

La figure 5.16 indique donc le contenu fréquentiel à 300 GHz (fig a.) et 250 GHz (fig b.) de l'écho en fonction du temps et de la longueur d'onde sonde.

Mode $q = 0$: figure 5.16 a.

Le mode acoustique $q = 0$ possède une phase constante au cours du temps, ce dernier faisant vibrer la structure sans se propager dans le super-réseau¹¹. La figure 5.16.a indique un contenu fréquentiel à $q = 0$ allant de 250 ps à 1250 ps correspondant à la durée du signal. La dépendance en longueur d'onde suit un comportement similaire à celui décrit par la figure 5.13 et constant sur toute la durée de l'écho : 3 maxima en longueur d'onde à 743 nm, 755 nm et un dernier plus faible à 766 nm.

Mode $q = 2k$: figure 5.16 b.

Le mode acoustique $q = 2k$ se propage au sein de la cavité et du super-réseau. Une fois à la surface de l'échantillon, l'onde acoustique se réfléchit et se déphase. Ce déphasage intervient dans la fonction de détection, changeant la sensibilité en longueur d'onde de l'onde acoustique retour par rapport à l'onde acoustique aller.

11. C'est le couplage entre le substrat et le super-réseau qui transmet la vibration dans le substrat.



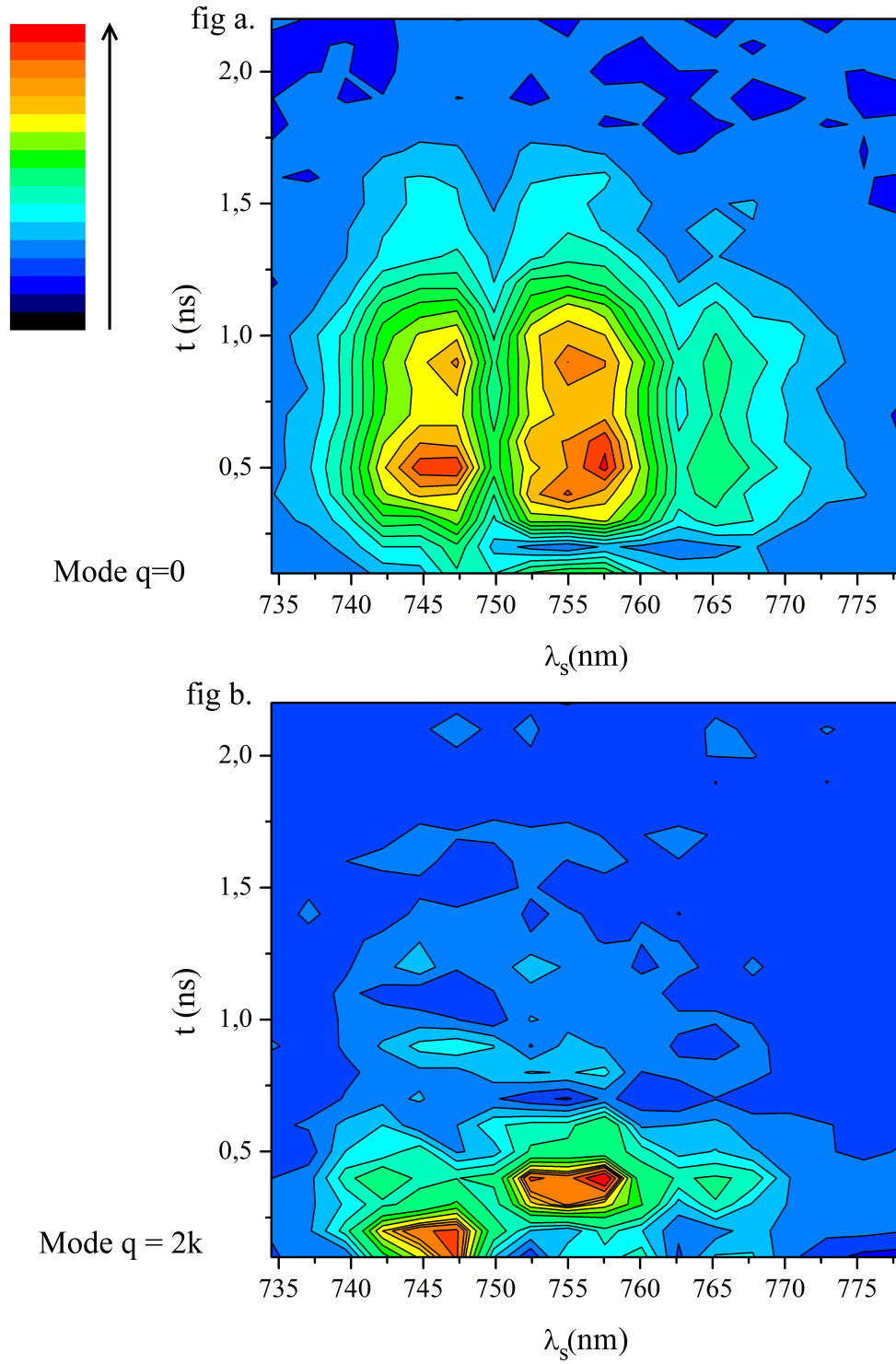


FIGURE 5.16 – Transformée de Fourier glissante du premier écho généré et détecté par le super-réseau placé dans une cavité optique pour différentes longueurs d'onde du faisceau sonde. En haut, figure donnant l'amplitude du pic de transformée de Fourier pour le mode $q = 0$, en bas pour le mode $q = 2k$.

CHAPITRE 5. SUPER-RÉSEAU INCLUS DANS UNE CAVITÉ OPTIQUE

La figure 5.16 b. montre l'amplitude du mode $q = 2k$ en fonction de la longueur d'onde et du temps grâce à une transformée de Fourier glissante. Les deux maxima de sensibilité observés sont décalés dans le temps, l'un correspond à l'onde acoustique aller, l'autre à l'onde acoustique retour ayant subi une réflexion à la surface de l'échantillon. Le temps séparant les deux maxima est de 230 ps, correspondant précisément au temps de traversée du super-réseau et du miroir de Bragg avant d'une onde acoustique longitudinale se propageant à la vitesse $v = 4,72 \text{ nm/ps}$.

4 Conclusion

L'insertion du super-réseau dans une cavité optique modifie profondément ses capacités de transduction opto-acoustique :

- La micro-cavité optique augmente les capacités de génération grâce à un meilleur couplage entre l'onde électromagnétique et le super-réseau.
- Le champ électromagnétique au sein de la cavité optique change les règles de sélection pour la détection et autorise la détection par le super-réseau de l'onde acoustique générée par ce même super-réseau (le mode $q = 0$).
- La détection est exaltée par le mode de cavité. La position des pics de détection au sein du mode de cavité est plus difficile à prévoir puisqu'elle dépend fortement des coefficients de couplage photo-élastique.

Ces trois éléments font des super-réseaux en cavité optique de bons candidats pour la transduction opto-acoustique dans la gamme terahertz et sub-terahertz. Une seule et unique structure permet de générer et détecter des trains d'ondes acoustiques longitudinales se propageant en aller et retour au sein d'un substrat épais. De telles structures ouvrent largement la voie à l'étude en spectroscopie acoustique de nano-structures –telles que des boîtes quantiques– enfouies en profondeur ou déposées sur la face arrière du substrat.

Concernant l'échantillon étudié au cours de ces travaux de thèse, l'étude des simples super-réseaux a montré l'importance des transitions électroniques sur l'efficacité de génération et de détection. Le défaut de fabrication a fortement décalé le mode de cavité. Ce dernier s'est ainsi éloigné des longueurs d'onde correspondant aux transitions E_1HH_1 et E_1LH_1 situées à 800 nm et 793 nm. L'efficacité de transduction de la structure pourrait être grandement améliorée en faisant coïncider le mode de cavité avec les transitions électroniques.

Dans le cadre de ces travaux, cette structure nous a permis d'étudier la variation de l'atténuation des phonons en fonction de la température. Le super-réseau à cavité optique est utilisé ici comme un simple transducteur permettant de suivre l'amplitude de l'onde acoustique ayant parcouru un aller-retour dans un substrat d'arséniure de gallium. Les variations d'amplitude sont ensuite reliées aux variations de l'atténuation au sein de l'arséniure de gallium (chapitre 7).



L'atténuation ultra-sonore dans l'arséniure de gallium



CHAPITRE 6

L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE DANS LES CRISTAUX : THÉORIE

Sommaire

1	Introduction	112
2	Cadre mathématique	114
2.1	Situation expérimentale	114
2.2	Théorie de Landau-Rumer	115
2.3	Les régimes d'approximation dans la théorie de Landau-Rumer	120
2.4	L'approximation des grandes longueurs d'onde	121
3	Généralité sur les processus à trois phonons	125
3.1	Dépendance en température des processus à trois phonons	126
3.2	Les processus de collision : $p_0 + p_1 \longrightarrow p_2$	127
3.2.1	Relation de dispersion linéaire et isotrope	127
3.2.2	Influence de l'anisotropie seule sur les processus de collision à trois phonons	129
3.2.3	Influence de l'anisotropie et de la dispersion sur les processus de collision à trois phonons	133
3.3	Les processus de fission : $p_0 \longrightarrow p_1 + p_2$	135
3.3.1	Existence des processus	135
4	Densité d'état à deux phonons : cas linéaire et isotrope	137
5	Conclusion	138

Molière

- *N'avez vous point quelques principes, quelques commencements des Sciences ?*
 - *Oh ! Oui, je sais lire et écrire.*
-

C
 e chapitre est consacré au développement de la théorie de Landau-Rumer concernant l'interaction entre trois phonons. Les coefficients de couplage seront traités dans le cadre de l'approximation des grandes longueurs d'onde. L'apport de l'anisotropie et le rôle de la dispersion sur l'efficacité des processus à trois phonons seront discutés.

Les notions d'atténuation, de temps de vie de phonons, de libre parcours moyen et de taux d'interaction seront utilisées dans le même contexte. Expérimentalement, il est plus facile d'avoir accès à $\alpha = \frac{1}{l}$ (en μm^{-1} , l'inverse du libre parcours moyen l) relié à l'atténuation ultra-sonore par la relation ci-contre :

$$A(z) = A_0 e^{-\alpha z} \quad (6.1)$$

Où $A(z)$ est l'amplitude du champ acoustique à une distance z , et A_0 le champ acoustique à l'origine.

Le taux d'interaction et le temps de vie sont reliés entre eux par les relations suivantes à l'atténuation :

$$\Gamma = 2\alpha v = \frac{1}{\tau} \quad (6.2)$$

Avec τ le temps de vie (en ns), Γ le taux d'interaction (en ns^{-1}) et v la vitesse du phonon (en $\mu\text{m}/\text{ns}$).



Notations

- ϕ_i désigne le phonon $i = 0..2$ du processus à trois phonons. ϕ_0 est le phonon acoustique, $\phi_{1,2}$ un phonon du bain thermique
- p : polarisation longitudinale (La), transverse lente (Ts), transverse rapide (Tf)
- $\mathbf{q}$: vecteur d'onde acoustique (en nm^{-1})
- q : norme du vecteur d'onde acoustique (en nm^{-1})
- qp : mode de phonon de vecteur d'onde $\mathbf{q}$ et de polarisation p
- v_i : vitesse de l'onde acoustique associée au mode acoustique du phonon i dans le mode qp_i au centre de zone
- N_i : population du phonon i
- n_i : population du phonon à l'équilibre
- H : hamiltonien
- Φ : énergie potentielle totale du cristal
- $\hat{\Phi}$: énergie potentielle entre deux atomes du cristal
- $\tilde{\Phi}$: énergie potentielle par unité de volume
- $\Phi_{\alpha\beta\dots n}$: dérivée $n^{\text{ième}}$ de l'énergie potentielle par rapport au déplacement atomique u
- λ : indice de maille au sein du cristal
- κ : indice de l'atome au sein d'une maille du cristal
- $\mathbf{r} \left(\begin{smallmatrix} \lambda \\ \kappa \end{smallmatrix} \right) = \mathbf{r} \left(\tilde{\lambda} \right) + \mathbf{r} \left(\tilde{\kappa} \right)$: position de l'atome κ au sein de la maille λ
- $\mathbf{u} \left(\begin{smallmatrix} \lambda \\ \kappa \end{smallmatrix} \right)$: Déplacement atomique de l'atome κ au sein de la maille λ
- $\mathbf{e} \left(\begin{smallmatrix} \lambda \\ \kappa \end{smallmatrix} \right)$: vecteur polarisation
- $\mathfrak{N}$: Nombre de mailles du cristal
- V : Volume total du cristal
- $M(\kappa)$: Masse de l'atome κ dans une maille du cristal
- $\doteq$: Égalité formelle

1 Introduction

L'atténuation des ondes mécaniques dans le domaine fréquentiel allant du gigahertz au terahertz possède un grand nombre de causes qui peuvent être séparées en deux groupes [86, 52, 87] : les causes intrinsèques d'une part et extrinsèques d'autre part.

Origines extrinsèques de l'atténuation

Un processus est dit extrinsèque s'il a pour origine un défaut du cristal. Ainsi, la diffusion de phonons sur les défauts au sein des cristaux (défauts ponctuels – substitution d'un atome ou lacune atomique –, dislocations ou encore joints de grain), ainsi que la rugosité des interfaces participent à l'atténuation des phonons. Une autre origine de ces processus extrinsèques est la variation de masse entre les isotopes d'un même atome du réseau cristallin [88, 89] ; cette atténuation due aux isotopes est bien plus rédhibitoire comparativement aux défauts structuraux dans la mesure où elle est bien plus difficile à éliminer.

Origines intrinsèques de l'atténuation

Les processus intrinsèques responsables des temps de vie finis des phonons sont déterminés par les processus anharmoniques par lesquels un phonon acoustique peut interagir avec les phonons du bain thermique pour se transformer en un ou plusieurs phonons (par collision ou fission spontanée)[90]. Dans un cristal parfait, sans défaut structural et isotopiquement pur, il s'agit de la seule cause d'atténuation ultra-sonore [63]. Ce type d'interaction lié à l'anharmonicité conduit à la "viscosité de réseau" [91].

Ces processus ont une forte dépendance en température via les facteurs de population de phonons, rendant ainsi les mesures d'atténuation en température très sensibles à cette classe de processus comme nous le montrerons plus loin (partie 3.1 p.126).

L'anharmonicité des potentiels inter-atomiques est une condition nécessaire au retour à l'équilibre thermique du bain de phonons. Dans le cadre harmonique, l'énergie déposée dans un mode ne peut quitter ce mode. La première approche numérique du couplage de modes dans le cas d'une chaîne linéaire d'atomes liés par des forces de potentiels non harmoniques fut menée par Enrico Fermi en 1955 sur l'ordinateur MANIAC 1¹ situé au centre de recherche de Los Alamos (figure 6.1 p.113, E. Fermi, J. Pasta et S. Ulam [92]).

Théories de l'atténuation

Deux approches distinctes de l'atténuation des ondes acoustiques par interaction avec le bain thermique de phonons sont largement utilisées aujourd'hui : l'approche de Landau-Rumer [93] d'une part et d'Akhiezer [94] d'autre part.

L'approche de Landau et Rumer datant de 1937 [93] consiste à déterminer le taux d'interaction d'une onde acoustique avec les phonons thermiques. L'onde acoustique est

1. MANIAC pour Mathematical Analyzer, Numerical Integrator, and Computer est l'un des premiers ordinateurs basé sur une architecture de Von Neumann et développé par von Neumann lui-même.



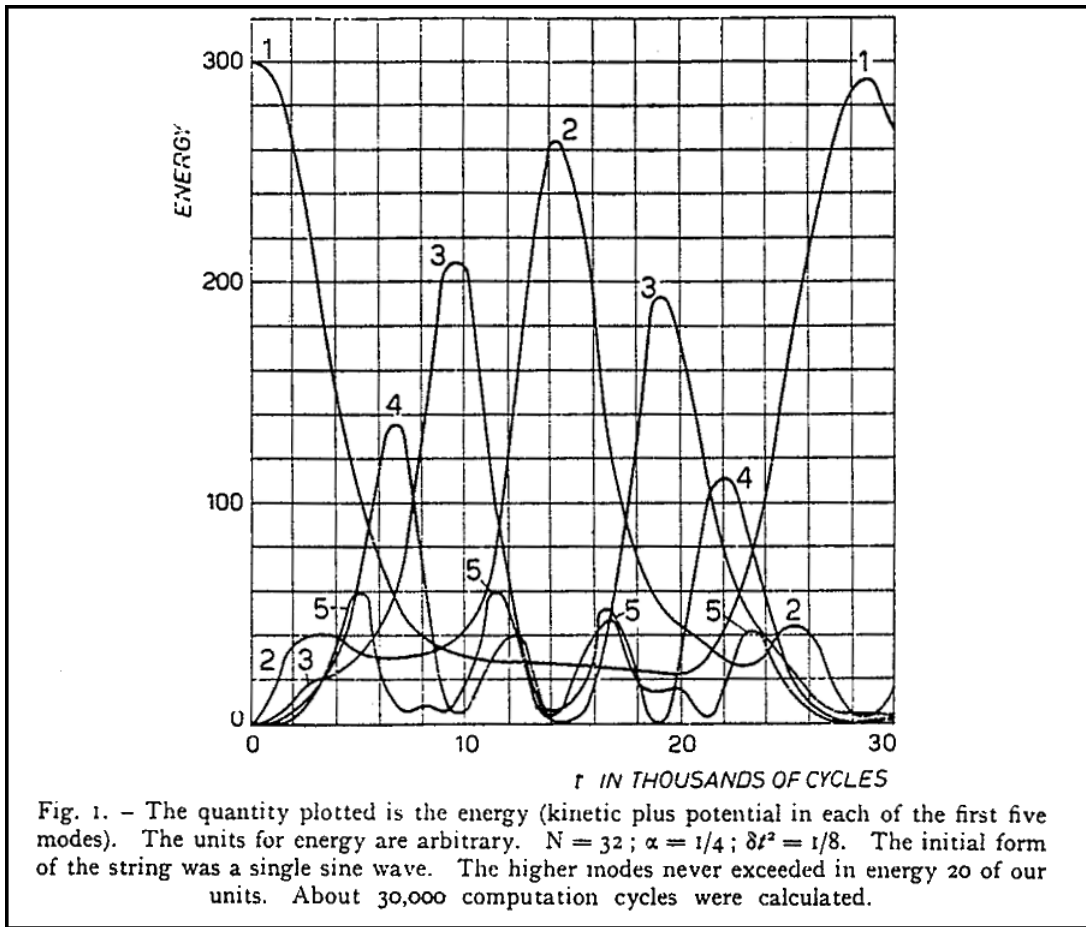


FIGURE 6.1 – Simulation réalisée par *Fermi, Pasta et Ulam* montrant l'énergie présente au cours du temps dans chaque mode de vibration du système. Dans le cas de forces inter-atomiques non harmoniques, l'énergie ne reste pas dans le mode de départ, mais se répartit dans d'autres modes propres par couplage anharmonique. Ces simulations ne rendent pas compte du principe d'ergodicité.

traitée microscopiquement comme un excès du nombre de phonons dans un mode acoustique. L'article original s'attache à décrire des processus d'interaction à trois phonons en négligeant l'anisotropie du cristal et la dispersion. Depuis, de nombreux travaux ont étendu cette théorie pour comprendre les effets de l'anisotropie (Herring en 1954 [95] et Simons en 1957 [96]) et de la dispersion (Maris et Tamura en 1995 [97]).

Dans l'approche de Landau-Rumer, l'énergie et la quantité de mouvement doivent se conserver au cours de la collision ou de la fission. Ces conditions sont strictes à basse température, lorsque le temps de vie est très long devant la pulsation de l'onde étudiée $\omega\tau \gg 1$. Dans ces conditions, l'énergie et la quantité de mouvement sont bien définies. A contrario, à haute température, lorsque $\omega\tau \sim 1$ et $\omega\tau \ll 1$, ces règles de conservation deviennent plus lâches.

Dans ce cas, une autre approche a été proposée par Akhiezer [98]. Il considère l'onde acoustique comme un champ de contraintes macroscopiques perturbant localement les populations de phonons $\omega\tau \ll 1$. Le couplage entre cette onde macroscopique et le bain de phonons passe par une relaxation locale des populations de phonons vers leurs populations d'équilibre qu'il est possible de décrire au moyen de l'équation de transport de Boltzmann.

En effet, la répartition en fréquence et polarisation des populations de phonons du bain thermique dépend de la contrainte au sein du cristal, conduisant d'une part à une migration des phonons entre régions chaudes et froides et d'autre part à un retour à l'équilibre local des populations relatives des phonons polarisés transversalement et longitudinalement. Concernant ce dernier point, les variations de population de phonons transverses et longitudinales ne sont pas identiques face à une variation de température ; des échanges entre les populations de phonons de polarisation distincte ont donc lieu par l'intermédiaire de l'anharmonicité du cristal.

Par conséquent, ces retours à l'équilibre local –par migration ou échange entre les populations transverses et longitudinales– conduisent à une perte d'énergie de l'onde acoustique macroscopique.

Initialement, cette approche fut utilisée pour calculer l'atténuation à haute température où $\omega\tau \ll 1$; elle fut ensuite étendue quelque soit la valeur de $\omega\tau$ [99] dans le régime des hautes températures.

La théorie de Landau-Rumer est un calcul simple de perturbation mené au premier ordre. Il est possible d'introduire rigoureusement les effets de temps de vie finis des phonons thermiques en introduisant des termes de perturbation d'ordres supérieurs. Une approche diagrammatique a été proposée par Bernard Perrin [100, 101, 102] qui démontre que lorsque $\omega\tau \ll 1$, une série infinie de diagrammes échelles doit être prise en compte. La sommation de ces diagrammes conduit alors à la résolution d'une équation de Boltzmann et permet de retrouver rigoureusement l'approche d'Akhiezer.

2 Cadre mathématique

2.1 Situation expérimentale

Les mesures d'atténuation réalisées dans le cadre de cette thèse au sein de l'équipe de Bernard Perrin ont été faites à basse température entre 15 K et 100 K dans l'arséniure de gallium (composé diélectrique) sur des phonons subterahertz à terahertz (0,1 THz à 1 THz). Dans ces conditions expérimentales, nous sommes entièrement dans le régime $\omega\tau \gg 1$ où les interactions peuvent être limitées à 3 phonons et l'approche de Landau-Rumer est donc valable.

L'onde acoustique sera assimilée à un faisceau de phonons haute fréquence ; l'atténuation sera traitée comme l'interaction de ce faisceau de phonons acoustiques hors équilibre thermique avec l'ensemble des phonons du bain thermique.

Dans le domaine de températures étudié, seuls les processus faisant intervenir trois phonons seront pris en compte. Il sont statistiquement beaucoup plus probables que les processus multiphonons d'ordre supérieur.



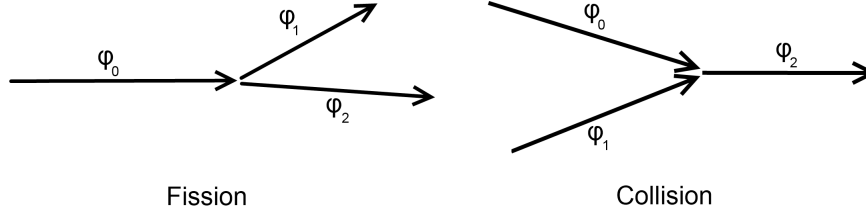


FIGURE 6.2 – Exemple de processus mettant en jeu trois phonons.

Un processus à trois phonons donné peut être décrit par la relation suivante :

$$p_0 + \chi \cdot p_1 \longrightarrow p_2 \quad (6.3)$$

où p_i est la polarisation du phonon ϕ_i , $\chi = +1$ pour un processus de collision, et -1 pour un processus de fission.

Les phonons ϕ sont indexés de 0 à 2 : ϕ_0 est le phonon acoustique introduit en excès dans le système, $\phi_{1,2}$ sont les phonons du bain thermique.

2.2 Théorie de Landau-Rumer

L'approche théorique de Landau-Rumer est en tout point similaire à la situation expérimentale décrite dans cette thèse. Elle consiste à prendre un bain de phonons à l'équilibre thermique à une température T . Les phonons sont des bosons ; le nombre de phonons de vecteur d'onde $\mathbf{q}$, et de polarisation² p est donc donné par la statistique de Bose-Einstein [52] :

$$n(\mathbf{q}p) = \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega(\mathbf{q}p)} - 1} \quad (6.4)$$

avec $\beta = \frac{1}{k_b T}$.

L'introduction d'une onde acoustique dans le système équivaut à faire varier la population de phonons du mode $\mathbf{q}p_0$ d'une quantité $\Delta N = N(\mathbf{q}p_0) - n(\mathbf{q}p_0)$, où N est la population hors équilibre. Le temps de vie des phonons acoustiques hors équilibre thermique est alors défini par la relation suivante :

$$\frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} = \frac{d\Delta N(\mathbf{q}p_0)}{dt} = -\frac{\Delta N(\mathbf{q}p_0)}{\tau(\mathbf{q}p_0)} \quad (6.5)$$

La grandeur $\frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt}$ est calculée grâce à la règle d'or de Fermi permettant de calculer la probabilité par unité de temps de passer d'un état quantique initial $|\psi_i\rangle$ vers un état final $|\psi_f\rangle$. Les états initiaux et finaux sont définis par l'émission ou l'absorption d'un phonon ϕ_0 .

2. Un mode de phonon sera désigné par $\mathbf{q}p$ d'une manière générale, lorsqu'il n'y a pas d'ambiguïté sur la polarisation p , cette dernière ne sera pas précisée.

$$\frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} = \frac{2\pi}{\hbar} \left\{ \sum_{f^+} |\langle \psi_f | \mathbf{H} | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_i - E_f) - \sum_{f^-} \langle \psi_f | \mathbf{H} | \psi_i \rangle^2 \delta(E_i - E_f) \right\} \quad (6.6)$$

E_i et E_f sont les énergies des états $|\psi_i\rangle$ et $|\psi_f\rangle$. Les sommations sur les indices f^+ et f^- correspondent aux états $|\psi_f\rangle$ ayant soit $N+1$ ou $N-1$ phonons par rapport à l'état initial.

$\mathbf{H}$ correspond à l'hamiltonien du cristal : $\mathbf{H} = \mathbf{E}_{cin} + \Phi$. Un développement en puissance du déplacement atomique de l'énergie potentielle inter-atomique donne³ :

$$\hat{\Phi} = \hat{\Phi}_0 + \sum_l \frac{\partial \hat{\Phi}}{\partial u_l} u_l + \frac{1}{2} \sum_{l,m} \frac{\partial^2 \hat{\Phi}}{\partial u_l \partial u_m} u_l u_m + \frac{1}{6} \sum_{l,m,n} \frac{\partial^3 \hat{\Phi}}{\partial u_l \partial u_m \partial u_n} u_l u_m u_n + \dots \quad (6.7)$$

La position d'équilibre atomique correspond au minimum d'énergie potentielle, le premier ordre du développement limité de l'équation (6.7) est donc nul.

$$\hat{\Phi}_0 + \frac{1}{2} \sum_{l,m} \frac{\partial^2 \hat{\Phi}}{\partial u_l \partial u_m} u_l u_m \quad (6.8)$$

Nous devons donc considérer le terme cubique de l'énergie potentielle des déplacements atomiques du réseau cristallin pour autoriser le couplage entre phonons [63].

Le potentiel inter-atomique s'écrit :

$$\hat{\Phi}_3 = \frac{1}{6} \sum_{l,m,n} \frac{\partial^3 \hat{\Phi}}{\partial u_l \partial u_m \partial u_n} u_l u_m u_n \doteq \frac{1}{6} \sum_{l,m,n} \hat{\Phi}_{lmn} u_l u_m u_n \quad (6.9)$$

En sommant sur tous les atomes du cristal, la partie anharmonique de l'hamiltonien est donnée par l'équation (6.10) :

$$\mathbf{H}_a = \Phi_3 = \frac{1}{6} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \sum_{l,m,n} \hat{\Phi}_{lmn} \begin{pmatrix} \lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2 \end{pmatrix} u_l \begin{pmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{pmatrix} u_m \begin{pmatrix} \lambda_1 \\ \kappa_1 \end{pmatrix} u_n \begin{pmatrix} \lambda_2 \\ \kappa_2 \end{pmatrix} \quad (6.10)$$

u_l est la coordonnée du déplacement $\mathbf{u}$ du $\kappa^{\text{ième}}$ atome de la $\lambda^{\text{ième}}$ cellule relativement à sa position moyenne $\mathbf{x}(\lambda, \kappa)$. Il est possible de décomposer le déplacement en une somme d'ondes planes harmoniques de vecteur d'onde $\mathbf{k}$, de pulsation ω et de polarisation $\mathbf{e}$ [103, 52, 63] :

$$u_l \begin{pmatrix} \lambda \\ \kappa \end{pmatrix} = \sum_{\mathbf{q}p} \left(\frac{\hbar}{2\mathfrak{M}_\kappa \omega(\mathbf{q}p)} \right)^{1/2} e_l(\mathbf{q}p, \kappa) \left[a(\mathbf{q}p) - a^\dagger(-\mathbf{q}p) \right] e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}(\lambda, \kappa)} \doteq \sum_{\mathbf{q}p} \tilde{u}_l(\mathbf{q}p_0) \quad (6.11)$$

3. l , m et n sont les indices des composantes des coordonnées cartésiennes.



où $\mathfrak{N}$ est le nombre de mailles du cristal ; a et a^+ sont les opérateurs annihilation et création respectivement, définis tels que [104] :

$$\begin{aligned} a^\dagger |n\rangle &= \sqrt{n+1} |n+1\rangle \\ a |n\rangle &= \sqrt{n} |n-1\rangle \\ |n\rangle &\text{ dénote un état quantique de } n \text{ bosons dans le même état.} \end{aligned} \quad (6.12)$$

Dans l'équation (6.10), les phonons $\phi_{0,1,2}$ jouent un rôle équivalent, ils peuvent être intervertis indépendamment du résultat final. Ainsi, en fixant un phonon dans le mode $\mathbf{q}p_0$, l'équation (6.10) devient :

$$\mathbf{H}_a = 3 \cdot \frac{1}{6} \sum_{\substack{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2 \\ l, m, n}} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \hat{\Phi}_{lmn} \tilde{u}_l(\mathbf{q}p_0) \tilde{u}_m(\mathbf{q}p_1) \tilde{u}_n(\mathbf{q}p_2) \quad (6.13)$$

En remplaçant u_l dans l'équation (6.13), et en introduisant une masse atomique moyenne par maille⁴ $\tilde{M}$ dans l'expression de $\hat{\Phi}$:

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_a &= \frac{\hbar^{3/2}}{2^{5/2} V^{1/2} \rho^{3/2}} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{\mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2)}{(\omega_0 \omega_1 \omega_2)^{1/2}} \\ &\quad \times \left[a(\mathbf{q}p_0) - a^\dagger(-\mathbf{q}p_0) \right] \left[a(\mathbf{q}p_1) - a^\dagger(-\mathbf{q}p_1) \right] \left[a(\mathbf{q}p_2) - a^\dagger(-\mathbf{q}p_2) \right] \end{aligned} \quad (6.14)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) &= \frac{\tilde{M}^{3/2}}{V} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \frac{\hat{\Phi}_{lmn} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2 \end{smallmatrix} \right)}{\sqrt{M_{\kappa_0} M_{\kappa_1} M_{\kappa_2}}} e_l(\mathbf{q}p_0, \kappa_0) e_m(\mathbf{q}p_1, \kappa_1) e_n(\mathbf{q}p_2, \kappa_2) \\ &\quad \times e^{i \left(\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right) + \mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_1 \\ \kappa_1 \end{smallmatrix} \right) + \mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_2 \\ \kappa_2 \end{smallmatrix} \right) \right)} \end{aligned} \quad (6.15)$$

$\hat{\Phi}_{lmn}$ est invariant par translation dans le cristal. En notant $x \left(\begin{smallmatrix} \lambda_i \\ \kappa_i \end{smallmatrix} \right) = X \left(\begin{smallmatrix} \lambda_i \\ \kappa_i \end{smallmatrix} \right) + x \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right)$, la partie exponentielle complexe de l'équation (6.15) se réécrit :

$$e^{i \left[\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right) + \mathbf{q}_1 \cdot (X \left(\begin{smallmatrix} \lambda_1 \\ \kappa_1 \end{smallmatrix} \right) + x \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right)) + \mathbf{q}_2 \cdot (X \left(\begin{smallmatrix} \lambda_2 \\ \kappa_2 \end{smallmatrix} \right) + x \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right)) \right]} = e^{i(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_0 \\ \kappa_0 \end{smallmatrix} \right)} \cdot e^{i \left[\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_1 \\ \kappa_1 \end{smallmatrix} \right) + \mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{x} \left(\begin{smallmatrix} \lambda_2 \\ \kappa_2 \end{smallmatrix} \right) \right]} \quad (6.16)$$

L'argument de la première exponentielle doit donc être un multiple entier de 2π puisque l'équation (6.15) doit être indépendante du choix du vecteur de translation. Par conséquent, $e^{2i\pi(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{x}(\lambda_0)}$ peut être remplacée par un symbole de Kronecker de la forme $\delta(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 - \mathbf{Q})$, avec $\mathbf{Q}$ un vecteur du réseau réciproque.

Dans la suite, nous poserons $\delta(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 - \mathbf{Q}) = \Delta(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2)$, représentant la conservation du vecteur d'onde au sein du cristal par des processus normaux ou Umklapp [105, 59].

4. $\tilde{M} = V_{\text{maille}} \rho = \frac{V \rho}{\mathfrak{N}}$

CHAPITRE 6. THÉORIE DE L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE

L'équation (6.15) se réécrit alors de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) = \Delta(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \tilde{M}^{3/2} \sum_{\substack{-\lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \frac{\Phi_{lmn} \left(\begin{smallmatrix} 0 & \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2 \end{smallmatrix} \right)}{\sqrt{M_{\kappa_0} M_{\kappa_1} M_{\kappa_2}}} \\ \times e_l(\mathbf{q}p_0, \kappa_0) e_m(\mathbf{q}p_1, \kappa_1) e_n(\mathbf{q}p_2, \kappa_2) \\ \times e^{i \left(\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{x} \left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1} \right) + \mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{x} \left(\frac{\lambda_2}{\kappa_2} \right) \right)} \end{aligned} \quad (6.17)$$

Les équations (6.2), (6.6) et (6.14) donnent l'expression de l'atténuation suivante :

$$\begin{aligned} \frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} = \frac{\pi \hbar^2}{16V \rho^3 \omega_0 v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1 \omega_2} \\ \times \left[\sum_{f^+} |\langle \psi_f | \mathfrak{M} [a_0 - a_0^\dagger] [a_1 - a_1^\dagger] [a_2 - a_2^\dagger] | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_i - E_f) \right. \\ \left. - \sum_{f^-} |\langle \psi_f | \mathfrak{M} [a_0 - a_0^\dagger] [a_1 - a_1^\dagger] [a_2 - a_2^\dagger] | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_i - E_f) \right] \end{aligned} \quad (6.18)$$

Le produit d'opérateurs a et $a^\dagger$ peut se réécrire :

$$\begin{aligned} [a_0 - a_0^\dagger] [a_1 - a_1^\dagger] [a_2 - a_2^\dagger] = a_0 a_1 a_2 + a_0 a_1 a_2^\dagger + a_0 a_1^\dagger a_2 + a_0 a_1^\dagger a_2^\dagger \\ + a_0^\dagger a_1 a_2 + a_0^\dagger a_1^\dagger a_2 + a_0^\dagger a_1 a_2^\dagger + a_0^\dagger a_1^\dagger a_2^\dagger \end{aligned} \quad (6.19)$$

Les termes $a_0 a_1 a_2$ et $a_0^\dagger a_1^\dagger a_2^\dagger$ ne satisfont pas la conservation de l'énergie $\delta(E_i - E_f)$, ils correspondent à l'annihilation ou la création de trois phonons. Parmi les six termes restant, trois correspondent à la création d'un phonon ϕ_0 (états f^+ non nul) et trois à l'annihilation d'un phonon ϕ_0 (états f^- non nul). De plus, les opérateurs $a_0 a_1 a_2^\dagger$ et $a_0 a_1^\dagger a_2$ d'une part, $a_0^\dagger a_1 a_2^\dagger$ et $a_0^\dagger a_1^\dagger a_2$ d'autre part sont équivalents par permutation des phonons ϕ_1 et ϕ_2 . Deux états quantiques différents étant orthogonaux entre eux, il est possible d'inverser les sommes f^+ et f^- avec le carré.

L'équation (6.18) se réécrit donc :

$$\begin{aligned} \frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} = \frac{\pi \hbar}{16V \rho^3 \omega_0 v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1 \omega_2} \cdot \left[2 |\langle \psi_f | \mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2) a_0 a_1 a_2^\dagger | \psi_i \rangle|^2 \delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \right. \\ + |\langle \psi_f | \mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2) a_0 a_1^\dagger a_2^\dagger | \psi_i \rangle|^2 \delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \\ - 2 |\langle \psi_f | \mathfrak{M}(-\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) a_0^\dagger a_1^\dagger a_2 | \psi_i \rangle|^2 \delta(-\omega_0 - \omega_1 + \omega_2) \\ \left. + |\langle \psi_f | \mathfrak{M}(-\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) a_0^\dagger a_1 a_2 | \psi_i \rangle|^2 \delta(-\omega_0 + \omega_1 + \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.20)$$



En substituant (6.12) dans (6.20), et avec les relations de symétrie de l'opérateur $\mathfrak{M}$:

$$\begin{aligned} \frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} &= \frac{\pi\hbar}{16V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \\ &\times \left[2.\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(N_0N_1(N_2+1) - (N_0+1)(N_1+1)N_2)\delta(\omega_0+\omega_1-\omega_2) \right. \\ &\quad \left. + \mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(N_0(N_1+1)(N_2+1) - (N_0+1)N_1N_2)\delta(\omega_0-\omega_1-\omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.21)$$

Soit, avec $N_0 = n_0 + \Delta N$, $N_1 = n_1$ et $N_2 = n_2$ ⁵

$$\begin{aligned} \frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} &= \frac{\pi\hbar}{16V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \\ &\times \left[2.\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)((n_0 + \Delta N)n_1(n_2 + 1) - (n_0 + \Delta N + 1)(n_1 + 1)n_2)\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \right. \\ &\quad \left. + \mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)((n_0 + \Delta N)(n_1 + 1)(n_2 + 1) - (n_0 + \Delta N + 1)n_1n_2)\delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.22)$$

Par définition, les termes de populations à l'équilibre donnent une contribution nulle. En ne gardant que les termes en facteur de ΔN :

$$\begin{aligned} \frac{dN(\mathbf{q}p_0)}{dt} &= \Delta N \frac{\pi\hbar}{16V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \times \left[2.\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(n_1 - n_2)\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \right. \\ &\quad \left. + \mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(1 + n_1 + n_2)\delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.23)$$

In fine, l'atténuation dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer a pour expression :

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{\pi\hbar}{32V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \times \left[2.\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(n_1 - n_2)\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \right. \\ &\quad \left. + \mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(1 + n_1 + n_2)\delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.24)$$

Cette relation peut se décomposer suivant les deux types de processus existant : fission ou collision.

$$\begin{aligned} \text{Collision : } \alpha_{p_2}^{p_0, p_1} &= \frac{\pi\hbar}{32V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \times \left[2.\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(n_1 - n_2)\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \right] \\ \text{Fission : } \alpha_{p_1, p_2}^{p_0} &= \frac{\pi\hbar}{32V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2} \frac{1}{\omega_1\omega_2} \times \left[\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, -\mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)(1 + n_1 + n_2)\delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \right] \end{aligned} \quad (6.25)$$

5. n_i sont les populations à l'équilibre.

Avec pour facteur de populations associé :

$$\begin{aligned} \text{Collision} &: n_1 - n_2 \\ \text{Fission} &: 1 + n_1 + n_2 \end{aligned} \tag{6.26}$$

2.3 Les régimes d'approximation dans la théorie de Landau-Rumer

Les équations donnant le temps de vie dans la théorie de Landau-Rumer sont conceptuellement simples à interpréter : l'ensemble des triplets de phonons $\{\phi_0, \phi_1, \phi_2\}$ satisfaisant la conservation de l'énergie et du vecteur d'onde participe à l'atténuation totale moyennant leur population au sein du bain thermique et un coefficient de couplage $\mathfrak{M}$ dépendant des caractéristiques des trois phonons.

Le calcul analytique général de ces équations présente deux difficultés majeures :

- La recherche des triplets $\{\phi_0, \phi_1, \phi_2\}$
- L'expression du coefficient de couplage

La méconnaissance de ces deux aspects du problème ont mené à une succession d'hypothèses fortes permettant de mener les calculs ; la première d'entre elles décrite dans l'article de Landau et Rumer [93] consiste à mener le calcul dans le cas d'un cristal isotrope, en négligeant la dispersion et en prenant un développement limité aux grandes longueurs d'onde pour le coefficient de couplage $\mathfrak{M}$.

Les relations de dispersion

La prise en compte de l'anisotropie et de la dispersion⁶ engendre une grande richesse dans les processus à trois phonons à envisager. Cette richesse est détaillée dans la suite de ce chapitre, où nous décrirons dans un premier temps les apports de l'anisotropie puis dans un second temps l'influence de la dispersion dans un cadre général.

L'influence précise de la dispersion est en soit un problème complet puisqu'il nécessite le calcul exact des couples vecteurs d'onde-fréquence pour chaque polarisation dans toute la zone de Brillouin. Il n'existe pas de relation analytique donnant les relations de dispersion exactes dans toute la zone de Brillouin pour les cristaux réels d'arséniure de gallium ou de silicium par exemple.

Différentes approches sont à envisager pour ces relations de dispersion. La première consiste à en négliger les effets. Les fréquences et les polarisations sont alors calculées sous le modèle de Debye en résolvant l'équation de Christoffel [106] faisant intervenir des constantes élastiques macroscopiques :

$$\rho\omega^2 e_i = C_{ijkl} q_j q_l e_k \tag{6.27}$$

où les C_{ijkl} sont les constantes élastiques du deuxième ordre. Dans ce modèle, les fréquences sont linéaires en vecteur d'onde $\omega = qv$ où v est la vitesse de l'onde acoustique et ne dépend que de la direction de propagation et de la polarisation envisagée.

6. Par opposition à la relation linéaire entre vecteur d'onde et fréquence dans le modèle de Debye.



Le deuxième modèle de dispersion est le Rigid Ion Model (RIM [107, 108]). Ce modèle de dispersion vise à décrire les cristaux de type cubiques faces centrées (NaCl, GaAs, Si par exemple) à partir des interactions inter-atomiques. Ce modèle à 11 paramètres ajustables ne permet cependant pas de reproduire le comportement des phonons situés en bord de zone de Brillouin [109] et fournit des polarisations de phonons éloignées de la réalité.

La troisième et dernière approche utilisée dans ces travaux repose sur l'utilisation de calculs *abinitio* [110]. Ces procédures numériques permettent de calculer les relations de dispersion et les polarisations de phonons dans toute la zone de Brillouin avec un très bon accord avec la réalité.

Le coefficient de couplage $\mathfrak{M}$

Le coefficient de couplage $\mathfrak{M}$ fait intervenir les potentiels inter-atomiques de la structure cristalline. Ces potentiels inter-atomiques sont à l'heure actuelle très mal connus. Seule l'approximation des grandes longueurs d'onde faisant intervenir les constantes élastiques macroscopiques⁷ permet de caractériser la dépendance en vecteur d'onde $\mathbf{q}$ de ce coefficient de couplage.

2.4 L'approximation des grandes longueurs d'onde

La relation fondamentale de la dynamique appliquée aux milieux élastiques continus⁸ s'écrit en développant aux ordres supérieurs à 2 la dérivée du déplacement atomique $\mathbf{u}$ [111, 112] :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_k \partial x_l} + id_{ikjlm} \frac{\partial^3 u_j}{\partial x_k \partial x_l \partial x_m} + \dots \quad (6.28)$$

L'équation (6.28) admet comme solution une onde plane de la forme $u_j = U_j e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x} - \omega t)}$ et doit satisfaire l'équation suivante :

$$\left\{ D_{ij} - \rho \omega^2 \delta_{ij} \right\} U_j = 0 \quad (6.29)$$

où $D_{ij} = c_{ijkl} q_k q_l + id_{ikjlm} q_k q_l q_m + \dots$ est la matrice dynamique décrivant donc les interactions et les potentiels inter-atomiques. La connaissance de cette matrice permettrait de caractériser le coefficient de couplage $\mathfrak{M}$ de l'interaction à trois phonons.

La suite de ce paragraphe est consacrée aux calculs de l'expression du coefficient de couplage $\mathfrak{M}$ aux grandes longueurs d'onde.

⁷. Ces constantes élastiques –déterminées expérimentalement– sont aussi mal connues.

⁸. L'hypothèse d'un milieu élastique continu est en soi une approximation des grandes longueurs d'onde devant les distances inter-atomiques.

Expression de $\phi_{\alpha\beta\gamma}$ aux grandes longueurs d'onde

Reprenons l'expression de $\mathfrak{M}$ donnée en (6.15) :

$$\mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) = \frac{\tilde{M}^{3/2}}{V} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0' \kappa_1' \kappa_2}} \frac{\hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2)}{\sqrt{M_{\kappa_0} M_{\kappa_1} M_{\kappa_2}}} e_{\alpha}(\mathbf{q}p_0, \kappa_0) e_{\beta}(\mathbf{q}p_1, \kappa_1) e_{\gamma}(\mathbf{q}p_2, \kappa_2) \\ \times e^{i\left(\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0}\right) + \mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1}\right) + \mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_2}{\kappa_2}\right)\right)} \quad (6.30)$$

A l'ordre 0, les polarisations deviennent :

$$e_l(\mathbf{q}\mathbf{i}, \kappa i) = \sqrt{\frac{M_{\kappa i}}{\tilde{M}}} e_l^{(0)}(\mathbf{q}\mathbf{i}) \quad (6.31)$$

Posons

$$W_{\alpha\beta\gamma} = \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0' \kappa_1' \kappa_2}} \hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) e^{i\left(\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0}\right) + \mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1}\right) + \mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_2}{\kappa_2}\right)\right)} \quad (6.32)$$

Le développement limité des $W_{\alpha\beta\gamma}$ pour $\mathbf{q}_i$ petit a pour expression :

$$W_{\alpha\beta\gamma} = W_{\alpha\beta\gamma}^{(0)} + \sum_{i\delta} \frac{\partial W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta}} q_{i\delta} + \frac{1}{2} \sum_{i\delta j\zeta} \frac{\partial^2 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta} \partial q_{j\zeta}} q_{i\delta} q_{j\zeta} + \frac{1}{6} \sum_{i\delta j\zeta k\eta} \frac{\partial^3 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta} \partial q_{j\zeta} \partial q_{k\eta}} q_{i\delta} q_{j\zeta} q_{k\eta} \quad (6.33)$$

avec $(i, j, k) = 0..2$ correspondant aux indices de phonons ϕ_0, ϕ_1 et ϕ_2 ; $(\delta, \zeta, \eta) = 1..3$ sont les indices de coordonnées cartésiennes.

Cette approximation est valable tant que la longueur d'onde ($\lambda_q = \frac{2\pi}{q}$) est grande devant la portée des forces inter-atomiques au sein du cristal. Sous cette condition, le terme de couplage $\hat{\Phi}$ maintient la validité du développement limité de l'exponentielle pour $\mathbf{x}\left(\frac{\lambda_i}{\kappa_i}\right) - \mathbf{x}\left(\frac{\lambda_j}{\kappa_j}\right)$ grand puisque dans le cas de forces d'interaction à courte portée, $\hat{\Phi}$ va rapidement tendre vers zéro.

Les dérivées partielles ont pour expression :

$$\frac{\partial W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta}} = i \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0' \kappa_1' \kappa_2}} \hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) x_{\delta} \left(\frac{\lambda_i}{\kappa_i} \right) \quad (6.34)$$

$$\frac{\partial^2 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta} \partial q_{j\zeta}} = -1 \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0' \kappa_1' \kappa_2}} \hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) x_{\delta} \left(\frac{\lambda_i}{\kappa_i} \right) x_{\zeta} \left(\frac{\lambda_j}{\kappa_j} \right) \quad (6.35)$$



$$\frac{\partial^3 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta} \partial q_{j\zeta} \partial q_{k\eta}} = -i \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) x_\delta \left(\frac{\lambda_i}{\kappa_i} \right) x_\zeta \left(\frac{\lambda_j}{\kappa_j} \right) x_\eta \left(\frac{\lambda_k}{\kappa_k} \right) \quad (6.36)$$

L'invariance par translation des $\hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}$ dans les cristaux [113] conduit à l'égalité suivante :

$$\sum_{\substack{\lambda_i \\ \kappa_i}} \phi_{\alpha\beta\gamma} = 0 \quad (6.37)$$

Dans les équations (6.34) et (6.35), en raison de la triple sommation et de la présence d'au maximum deux $x_\varepsilon \left(\frac{\lambda_i}{\kappa_i} \right)$, il est toujours possible d'isoler une somme de la forme de (6.37). Ainsi, $\frac{\partial W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta}} = 0$ et $\frac{\partial^2 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{i\delta} \partial q_{j\zeta}} = 0$.

Pour les mêmes raisons dans (6.36), seuls les termes tels que les (i, j, k) sont différents deux à deux contribuent à la somme. Ainsi (6.36) s'écrit :

$$\frac{\partial^3 W_{\alpha\beta\gamma}}{\partial q_{0\delta} \partial q_{1\zeta} \partial q_{2\eta}} = -6i \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \hat{\Phi}_{\alpha\beta\gamma}(\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) x_\delta \left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0} \right) x_\zeta \left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1} \right) x_\eta \left(\frac{\lambda_2}{\kappa_2} \right) \quad (6.38)$$

Lien entre les constantes élastiques de Brugger S_{ijklmn} et $\Phi_{\alpha\beta\gamma}$

L'identification des expressions de l'énergie libre (6.10) microscopique et macroscopique permet de trouver une relation entre les constantes élastiques et les paramètres de couplage. L'approximation des grandes longueurs d'onde permet d'avoir des déformations dont la longueur caractéristique est plus grande que les forces d'interaction, par conséquent les déformations macroscopiques sont homogènes aux déformations microscopiques : la déformation des mailles atomiques et la déformation cristalline sont homothétique l'une de l'autre. Cela revient à négliger les déformations internes aux mailles du réseau cristallin (il n'y a pas de déplacement d'un sous réseau par rapport à un autre).

Dans la théorie de la déformation élastique, la déformation $\eta_{\alpha\beta}$ s'exprime en fonction des déformations relatives $\varepsilon_{\alpha\beta} = \frac{\partial u_\alpha}{\partial x_\beta}$:

$$\eta_{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \left(\varepsilon_{\alpha\beta} + \varepsilon_{\beta\alpha} + \sum_i \varepsilon_{i\alpha} \varepsilon_{i\beta} \right) \quad (6.39)$$

Les constantes élastiques de Brugger sont définies avec la déformation η :

$$\begin{aligned} \Phi &= V \cdot \tilde{\Phi} \\ \tilde{\Phi} &= \tilde{\Phi}_0 + \sum_{\alpha\beta} C_{\alpha\beta} \eta_{\alpha\beta} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} C_{\alpha\beta\gamma\delta} \eta_{\alpha\beta} \eta_{\gamma\delta} + \frac{1}{6} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} C_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} \eta_{\alpha\beta} \eta_{\gamma\delta} \eta_{\mu\nu} + \dots \end{aligned} \quad (6.40)$$

qui s'écrit en terme de déformation relative (6.39) :

$$\begin{aligned}\tilde{\Phi} = \tilde{\Phi}_0 &+ \sum_{\alpha\beta} C_{\alpha\beta} \varepsilon_{\alpha\beta} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} (C_{\alpha\beta\gamma\delta} + C_{\beta\delta\alpha\gamma}) \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} \\ &+ \frac{1}{6} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} (C_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} + C_{\alpha\beta\nu\delta\gamma\mu} + C_{\beta\delta\mu\nu\alpha\gamma} + C_{\nu\beta\gamma\delta\alpha\mu}) \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} \varepsilon_{\mu\nu} + \dots\end{aligned}\quad (6.41)$$

Soit l'expression macroscopique de l'énergie interne :

$$\tilde{\Phi} = \tilde{\Phi}_0 + \sum_{\alpha\beta} S_{\alpha\beta} \varepsilon_{\alpha\beta} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} S_{\alpha\beta\gamma\delta} \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} + \frac{1}{6} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} S_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} \varepsilon_{\mu\nu} + \dots \quad (6.42)$$

L'équation (6.10) fournit l'expression microscopique des coefficients de couplage, en réécrivant (6.10), les déplacements microscopiques u_i s'expriment en fonction du gradient du déplacement $u_i \left(\frac{\lambda}{\kappa} \right) = \varepsilon_{ij} x_j \left(\frac{\lambda}{\kappa} \right)$ ⁹ :

$$\begin{aligned}\tilde{\Phi} = \tilde{\Phi}_0 &+ \frac{1}{V} \sum_{\substack{\lambda_0 \\ \kappa_0}} \sum_{\alpha\beta} \hat{\Phi}_{\alpha} \left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0} \right) x_{\beta} \left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0} \right) \varepsilon_{\alpha\beta} + \frac{1}{V} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \\ \kappa_0 \kappa_1}} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \hat{\Phi}_{\alpha\gamma} \left(\frac{\lambda_0 \lambda_1}{\kappa_0 \kappa_1} \right) x_{\beta} \left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0} \right) x_{\delta} \left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1} \right) \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} \\ &+ \frac{1}{V} \sum_{\substack{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2 \\ \kappa_0 \kappa_1 \kappa_2}} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} \hat{\Phi}_{\alpha\gamma\mu} \left(\frac{\lambda_0 \lambda_1 \lambda_2}{\kappa_0 \kappa_1 \kappa_2} \right) x_{\beta} \left(\frac{\lambda_0}{\kappa_0} \right) x_{\delta} \left(\frac{\lambda_1}{\kappa_1} \right) x_{\nu} \left(\frac{\lambda_2}{\kappa_2} \right) \varepsilon_{\alpha\beta} \varepsilon_{\gamma\delta} \varepsilon_{\mu\nu} + \dots\end{aligned}\quad (6.43)$$

En assimilant les termes du troisième ordre des équations (6.42) et (6.43), et en les substituant dans l'équation (6.38) :

$$\frac{1}{V} \frac{\partial^3 W_{\alpha\gamma\nu}}{\partial q_{0\beta} \partial q_{1\delta} \partial q_{2\mu}} = -i S_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} \quad (6.44)$$

Le coefficient de couplage (6.30) devient dans l'approximation des grandes longueurs d'onde :

$$\mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) = -i \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} S_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} e_{\alpha}(\mathbf{q}_0) e_{\gamma}(\mathbf{q}_1) e_{\mu}(\mathbf{q}_2) q_{0\beta} q_{1\delta} q_{2\nu} \quad (6.45)$$

$$\text{avec } S_{\alpha\beta,\gamma\delta,\mu\nu} = C_{\alpha\beta,\gamma\delta,\mu\nu} + \delta_{\alpha\gamma} C_{\beta\delta,\mu\nu} + \delta_{\alpha\mu} C_{\beta\nu,\gamma\delta} + \delta_{\gamma\mu} C_{\alpha\beta,\delta\nu}$$

9. Les facteurs combinatoires résultants de la levée d'indétermination des termes relatifs aux phonons ϕ_0, ϕ_1, ϕ_2 sont pris en compte dans l'équation (6.43).



3 Généralité sur les processus à trois phonons

Lois de conservation

L'expression générale pour un processus d'interaction à trois phonons est (6.3) :

$$p_0 + \chi \cdot p_1 \longrightarrow p_2 \quad (6.46)$$

avec p_i la polarisation du phonon ϕ_i ¹⁰. $\chi = 1$ pour une collision, $\chi = -1$ pour un processus de fission spontanée.

Les processus d'interaction à trois phonons doivent vérifier les règles de conservation de l'énergie et de l'impulsion au cours de la transformation, auxquelles il faut rajouter les relations de dispersion.

$$\begin{cases} \mathbf{q}_0 + \chi \cdot \mathbf{q}_1 = \mathbf{q}_2 + \mathbf{Q} \\ \omega_0 + \chi \cdot \omega_1 = \omega_2 \\ \omega_i = f_{dispersion}(\mathbf{q}_i, p_i) \quad i = 0..2 \end{cases} \quad (6.47)$$

où $\mathbf{Q}$ est un vecteur du réseau réciproque¹¹ ou zéro.

$$\alpha \propto \sum_{\mathbf{q}_1} F(\mathbf{q}_0 p_0, \mathbf{q}_1 p_1) \cdot \delta_S(\omega_0 - \Omega_{\mathbf{q}_1}) \quad (6.48)$$

avec $\Omega_{\mathbf{q}_1} \doteq \chi \cdot \omega_1(\mathbf{q}_1) - \omega_2(\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_1)$

Densité d'états à deux phonons

Dans une géométrie à trois dimensions, l'espace solution des processus à trois phonons est une surface complètement définie par le jeu d'équations (6.47). L'aire de cette surface peut être interprétée comme une densité d'états à deux phonons pour les processus d'interaction à trois phonons ; cette aire est définie par les relations suivantes :

$$\begin{cases} \text{Collision :} \\ \mathfrak{S}_{p_2}^{p_0 p_1} = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}_1} \delta_S(\omega_0(\mathbf{q}_0) + \omega_1(\mathbf{q}_1) - \omega_2(\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_1)) \\ \text{Fission :} \\ \mathfrak{S}_{p_1 p_2}^{p_0} = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}_1} \delta_S(\omega_0(\mathbf{q}_0) - \omega_1(\mathbf{q}_1) - \omega_2(\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_1)) \end{cases} \quad (6.49)$$

Au facteur de couplage et de population près, ces expressions sont semblables à celles donnant l'atténuation dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer et peuvent servir

10. La , sT , et fT pour une polarisation longitudinale (Longitudinal acoustic), Transverse lente (slow Transvers) et Transverse rapide (fast Transvers)

11. L'impulsion totale de l'ensemble des phonons n'est à proprement parlé pas conservée dans le cas de processus Umklapp.

d'approximation pour accéder à la dynamique d'évolution de l'atténuation en fonction de la fréquence et de la température.

Indépendance des processus dans l'approche de Landau-Rumer

L'équation (6.24) est une fonction linéaire des processus. Il est donc possible de les traiter de manière indépendante les uns des autres. Concernant la dépendance en température, il est à remarquer que :

- Les processus de collision ($\chi = +1$) dépendent de la présence de phonons thermiques, et donc leur efficacité s'écroule à basse température ($n_1 - n_2$).
- Les processus de fission ($\chi = -1$) sont présents même à température nulle ($1 + n_1 + n_2$), mais ils sont moins efficaces que les processus de collision pour les phonons acoustiques de basse énergie car ils impliquent une petite surface de la zone de Brillouin.

Le phonon ϕ_0 de polarisation p_0 est un phonon acoustique introduit dans le système et par conséquent est hors équilibre thermique. D'un point de vue expérimental, produire des phonons acoustiques de polarisation longitudinale dans le régime sub-terahertz à terahertz est devenue très récemment possible grâce à la transduction opto-acoustique. La production d'ondes acoustiques transverses est loin d'être parfaitement maîtrisée dans cette gamme de fréquence. Bien que des résultats soient donnés pour les polarisations transverses (partie 4 en page 186), l'étude portera principalement sur des phonons acoustiques longitudinaux (partie 3 en page 170).

3.1 Dépendance en température des processus à trois phonons

La dépendance en température de l'atténuation dans le modèle de Landau-Rumer intervient dans les facteurs de populations de phonons du bain thermique (6.4) :

$$n = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_b T}} - 1} \quad (6.50)$$

Haute température

La dépendance à haute température est aisée à donner. Si $k_b T > \hbar\omega_{max}$ ¹², avec ω_{max} la plus haute fréquence de phonon du bain thermique se couplant avec un phonon acoustique, alors quel que soit le phonon thermique participant à l'atténuation $n \simeq \frac{k_b T}{\hbar\omega}$.

Par conséquent l'atténuation est linéaire en température à haute température :

$$\alpha \propto T \quad (6.51)$$

12. Tout en restant dans le domaine de validité de la théorie de Landau-Rumer.



Basse température

La dépendance à plus basse température est plus délicate à obtenir et dépend fortement du processus considéré.

- Pour les processus de fission, la dépendance en température est négligeable à basse température. En effet $1 \gg n$, par conséquent le facteur thermique (6.26) $1 + n_1 + n_2 \approx 1$.

- Pour les processus de collision, la dépendance en fréquence et température a été étudiée par Herring [95]. Dans le régime $k_b T < \hbar \omega$:

$$\alpha \propto \omega_0^{5-a} T^a \quad (6.52)$$

avec a un entier compris entre 2 et 4 [95] et dépendant de la structure cristalline. Pour l'arséniure de gallium $a = 3$.

3.2 Les processus de collision : $p_0 + p_1 \longrightarrow p_2$

L'objectif de cette partie est d'apporter des éléments de discussion sur les règles de sélection des processus à trois phonons autorisés dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer, ainsi que l'influence de l'anisotropie et de la dispersion sur les changements concernant ces règles de sélection.

L'expression de l'atténuation causée par ces processus a pour expression :

$$\alpha = \frac{\pi \hbar}{16V \rho^3 \omega_0 v_0} \sum_{\mathbf{q} p_1, \mathbf{q} p_2} \frac{|\mathfrak{M}|^2}{\omega_1 \omega_2} (n_1 - n_2) \delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) \quad (6.53)$$

La conservation de l'énergie (traduite par le facteur $\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2) = \delta(\omega_0 - \Omega)$ ¹³ dans l'équation (6.53)) fournit une contrainte forte sur les processus autorisés puisqu'une contribution non nulle implique Ω positif. Cela signifie que l'énergie du phonon ϕ_2 doit être plus grande que celle du phonon ϕ_1 , ce qui n'est pas le cas pour toutes les combinaisons de polarisation.

3.2.1 Relation de dispersion linéaire et isotrope

En négligeant la dispersion, la relation entre vecteur d'onde et pulsation est la suivante :

$$\omega(\mathbf{q}p) = q v_p \quad (6.54)$$

où v est la vitesse de l'onde acoustique, supposée constante quel que soit le vecteur d'onde $\mathbf{q}$; avec $v_p = v_l$ pour la branche de polarisation longitudinale, et $v_p = v_t$ pour la branche

13. $\Omega = \omega_2 - \omega_1$

CHAPITRE 6. THÉORIE DE L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE

transverse¹⁴, de plus $v_l > v_t$.

En prenant le système de coordonnées défini à la figure 6.3, les équations de conservation (6.47) deviennent en négligeant les processus Umklapp :

$$\begin{aligned} q_0 + q_1 \cos(\theta_1) &= q_2 \cos(\theta_2) \\ q_1 \sin(\theta_1) &= q_2 \sin(\theta_2) \\ q_0 v_0 + q_1 v_1 &= q_2 v_2 \end{aligned} \quad (6.55)$$

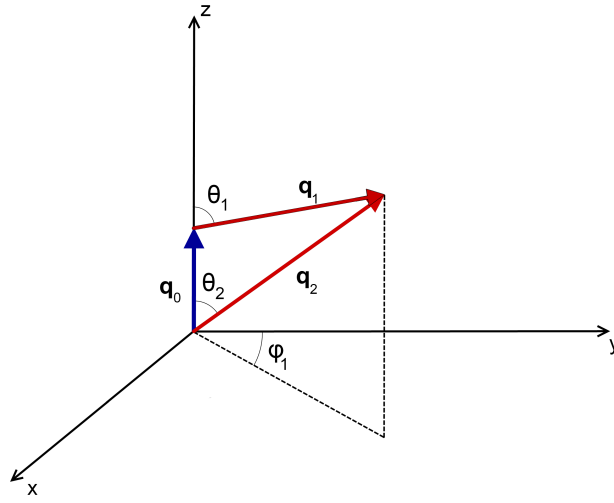


FIGURE 6.3 – Coordonnées sphériques pour le processus de collision à trois phonons.

En posant $x = \frac{q_1}{q_0}$ le système d'équations (6.55) conduit à une expression de $\cos(\theta_1)$:

$$\cos(\theta_1) = \frac{2xv_0v_1 + v_0^2 - v_2^2 + x^2(v_1^2 - v_2^2)}{2xv_2^2} \quad (6.56)$$

L'analyse de l'équation (6.56) suivant le type de processus permet de trouver des solutions θ_1 en fonction de x . S'il existe des solutions, le processus est autorisé. Les résultats sont résumés dans le tableau 6.1.

(a) $T_0 + p_1 \longrightarrow p_2$			(b) $L_0 + p_1 \longrightarrow p_2$		
$p_2 \backslash p_1$	T	L	$p_2 \backslash p_1$	T	L
T	✓	✓	T	×	✓
L	×	✓	L	×	✓

TABLE 6.1 – Règles de sélection pour un processus de collision à trois phonons dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope. × processus interdit, ✓ processus autorisé.

14. L'isotropie conduit à une dégénérescence des modes transverses lents et rapides.



Sous ces hypothèses, les calculs peuvent être menés jusqu'à des expressions littérales donnant les dépendances en température et fréquence de l'atténuation (Orbach [114] et Maris [63]).

3.2.2 Influence de l'anisotropie seule sur les processus de collision à trois phonons

La figure 6.4 représente la relation de dispersion linéaire anisotrope pour les phonons acoustiques (i.e. les branches de plus basses énergies¹⁵). Les polarisations sont indexées sur chacune des branches. Il est possible de définir une relation d'ordre concernant la vitesse et l'énergie de chaque polarisation ; pour un vecteur d'onde $\mathbf{q}$ donné, $E(La) > E(Tf) > E(Ts)$ pour l'énergie du phonon et $v_{La} > v_{Tf} > v_{Ts}$ pour les vitesses.

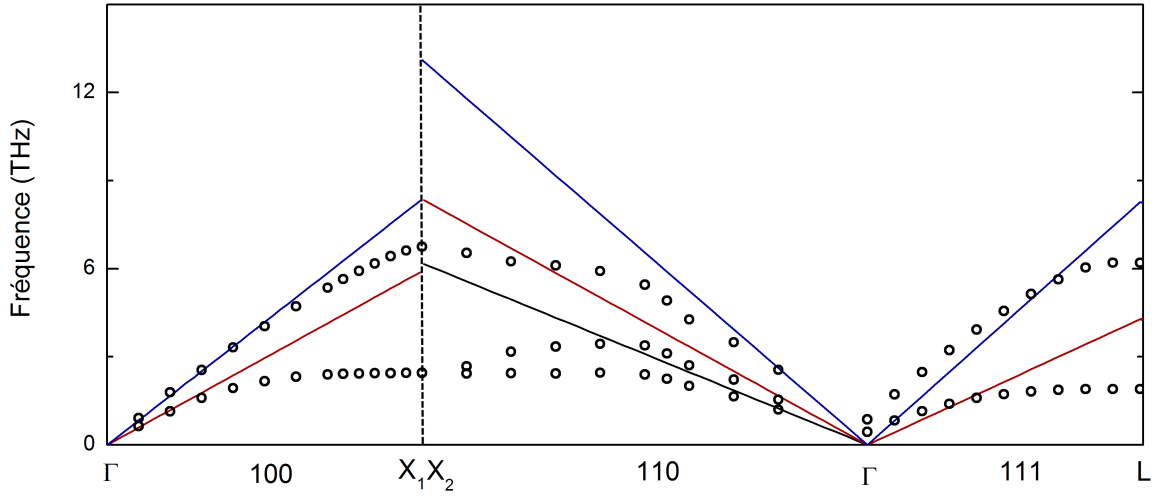


FIGURE 6.4 – Courbes de dispersion linéaire du modèle de Debye étendues à toute la zone de Brillouin pour les branches acoustiques. La courbe bleue représente la polarisation longitudinale, les courbes rouges et noires sont respectivement les branches de polarisation transverse rapide et lente. Dans certaines directions de symétrie, les branches rapides et lentes sont dégénérées. Les points sont les valeurs expérimentales de la dispersion dans l'arséniure de gallium [109]. *Note : Ce modèle est incompatible avec la périodicité de la zone de Brillouin. Les points X_1 et X_2 atteints soit par la direction $[100]$ soit par $[110]$ sont deux points distincts de l'espace réciproque. Pour cette raison la continuité de la relation de dispersion n'est pas assurée en ce point.*

l'équation (6.56) reste valable pour n'importe quel ensemble de vitesses ; elle offre donc un outil d'analyse pour déterminer la validité des processus à trois phonons en tenant compte de l'anisotropie. En effet, en définissant les vitesses réduites $r_1 = \frac{v_1}{v_0}$ et $r_2 = \frac{v_2}{v_0}$, l'équation (6.56) se paramétrise selon la vitesse du phonon acoustique :

$$\cos(\theta_1) = \frac{2xr_1 + 1 - r_2^2 + x^2(r_1^2 - r_2^2)}{2xr_2^2} \quad (6.57)$$

15. L'interaction avec les branches optiques n'est pas prise en compte dans ces travaux.

CHAPITRE 6. THÉORIE DE L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE

La terme de droite de l'égalité (6.57) n'est pas nécessairement compris entre -1 et 1. Les triplets $[x, r_1, r_2]$ ne sont pas tous solutions de l'équation. Posons la fonction solution S suivante :

$$S(x, r_1, r_2) = \begin{cases} 1 & \text{si le triplet } [x, r_1, r_2] \text{ est solution de l'équation (6.57)} \\ 0 & \text{si le triplet } [x, r_1, r_2] \text{ n'est pas solution de l'équation (6.57)} \end{cases} \quad (6.58)$$

Ainsi que la fonction $I.S$ suivante :

$$I.S(x^-, x^+, r_1, r_2) = \int_{x^-}^{x^+} S(x, r_1, r_2) dx \quad (6.59)$$

Le nombre $I.S(0, \infty, r_1, r_2)$ donne donc le nombre de solutions pour les vitesses v_0, v_1, v_2 associées à un processus donné pour n'importe quelle valeur de q_0 et q_1 . A chaque processus $p_0 + p_1 \rightarrow p_2$ correspond un couple de vitesses réduites $[r_1, r_2]$. Par conséquent, chaque processus peut-être positionné sur un graphe orthonormé $[r_1, r_2] \in [0, 2]^2$.

Exemple : Pour le processus $Tf + Ts \rightarrow La$, les vitesses de phonons basses fréquences ne sont pas identiques : $v_1 < v_0 < v_2$; ainsi pour les vitesses réduites $r_1 < 1 < r_2$ indiquant la position du processus dans le quadrant supérieur gauche du graphique orthonormé $[0, 2]^2$

Une représentation simplifiée de la fonction $I.S(0, \infty, r_1, r_2)$ est donnée à la figure 6.5 ; en rouge $I.S = 0$ et en bleu $I.S > 0$.

Un grand nombre de processus reste interdit en tenant compte de l'anisotropie. Ces résultats sont condensés dans les tableaux 6.2 suivant :

(a) $Ts_0 + p_1 \rightarrow p_2$				(b) $Tf_0 + p_1 \rightarrow p_2$				(c) $La_0 + p_1 \rightarrow p_2$			
$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La
Ts	✓	✓	✓	Ts	×	✓	✓	Ts	×	✓	✓
Tf	×	✓	✓	Tf	×	✓	✓	Tf	×	×	✓
La	×	⊗	✓	La	×	×	✓	La	×	×	✓

TABLE 6.2 – Processus de collision à trois phonons interdits (× et ⊗) et permis (✓) en tenant compte de l'anisotropie. Les cases vertes (respectivement rouges) sont les processus permis (respectivement interdits) dans l'hypothèse d'un milieu isotrope.

Le processus $Ts + La \rightarrow Tf$ est autorisé vis à vis des règles de conservation, cependant une analyse plus fine indique qu'il nécessite un vecteur d'onde q_1 bien plus petit que le vecteur d'onde q_0 ($x = \frac{q_1}{q_0} \leq 0,2$). Par conséquent, la surface solution de la densité d'états associée à ce processus est trop restreinte pour donner une contribution notable.



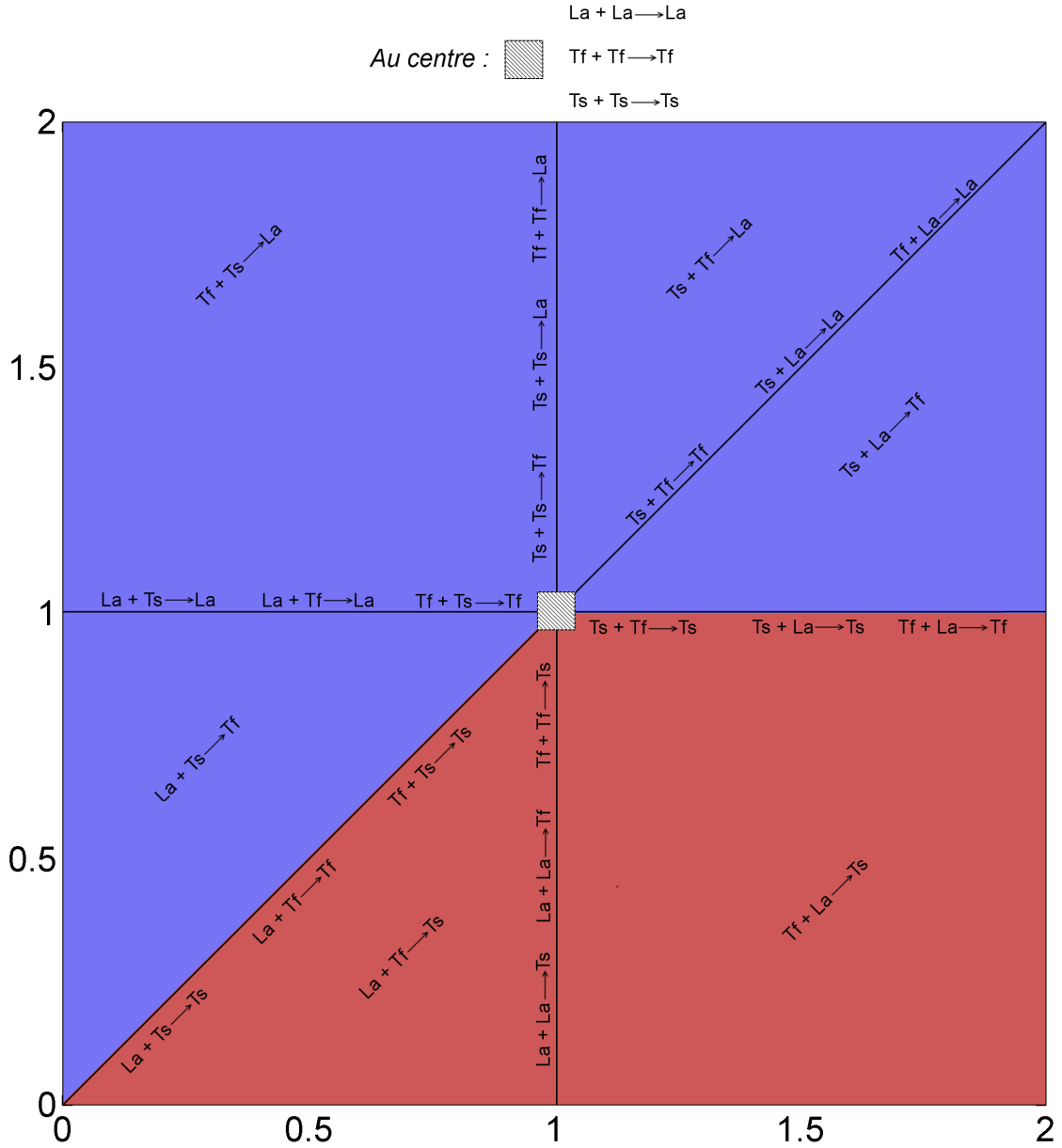


FIGURE 6.5 – Représentation simplifiée de $I.S(0, \infty, r_1, r_2)$ en fonction des paramètres de vitesses r_1 et r_2 . Les lieux des processus sont indiqués sur le graphique, les processus longeant les lignes sont à cheval sur les axes de symétrie. La zone rouge correspond à l'absence de solution, et donc aux processus interdits.

Le processus de Herring : $La + Ts \rightarrow Tf$

Parmi les changements qu'apporte l'anisotropie, la possibilité d'obtenir le processus $La + Ts \rightarrow Tf$ s'avère remarquable. Herring en 1954 s'est fortement intéressé à cette

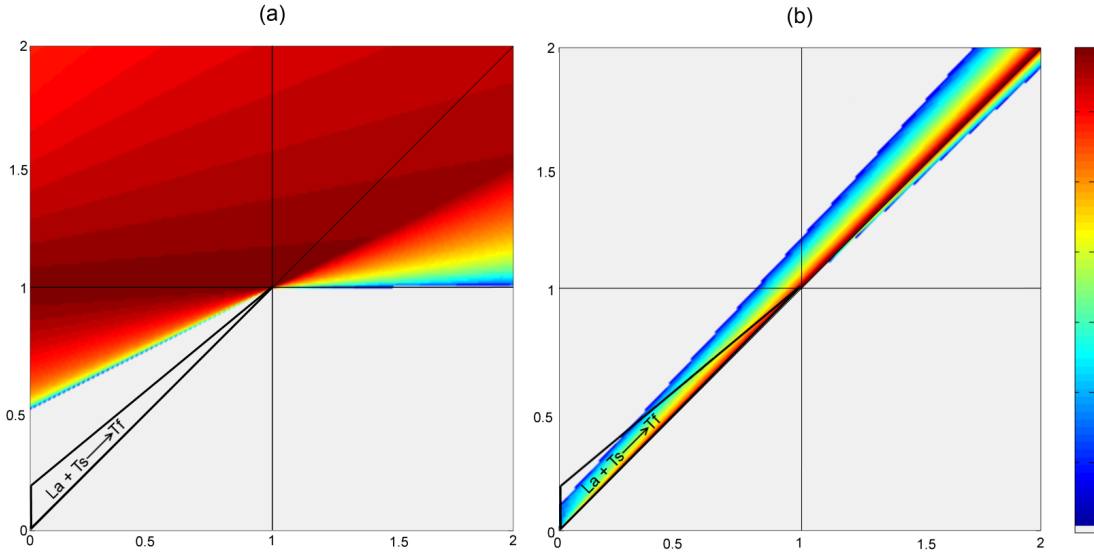


FIGURE 6.6 – Fonction $I.S$ tracée pour deux plages distinctes de x . (a) représente $I.S(0, 1, r_1, r_2)$; (b) représente $I.S(10, \infty, r_1, r_2)$. Le processus de Herring est inexistant pour les valeurs de x petites et prépondérant pour les valeurs de $x \gg 1$. La couleur grise correspond à l'absence de solution; les échelles de couleurs croissent du bleu au rouge et sont arbitraires.

classe de processus en montrant qu'elle couplait des phonons acoustiques ϕ_0 de faible vecteur d'onde avec des phonons thermiques ϕ_1 et ϕ_2 de grand vecteur d'onde comme le montre la figure 6.6.

En raison de ce couplage avec les phonons hautes fréquences du bain thermique, le processus de Herring est très efficace dès les basses fréquences et permet de rendre compte d'une conductivité thermique finie dans les cristaux réels¹⁶.

Une expression de l'atténuation sans tenir compte de la dispersion et dans le cas de

16. En effet, sans ce processus, les temps de vie des phonons deviennent extrêmement longs à basse température. La conductivité thermique est reliée aux temps de vie par la relation $\kappa = \frac{Cv^2\tau}{3}$, ainsi un temps de vie très long tend à donner une très grande conductivité, ce qui entre en contradiction avec la réalité expérimentale.



cristaux à symétrie cubique est donnée par Simons[96] :

$$\alpha_{\text{Herring}} = \frac{3\zeta(3)\hbar}{2v_l^3 v_t C_{44}^2} \left(\frac{k_b}{\hbar}\right)^3 \frac{C_{11} + C_{12}}{C_{11} + 2C_{12} + C_{44}} \frac{(C_{155} - C_{144} + 2C_{44})^2}{|C_{11} - C_{12} - 2C_{44}|} [E(x) - (1 - x^2)K(x)] \nu^2 T^3$$

avec

$$x^2 = \frac{(C_{11} + 2C_{12} + C_{44})(C_{11} - C_{44})}{C_{11} + C_{12}}$$

$$E(x) = \int_0^{\pi/2} \sqrt{1 - x^2 \sin^2 \phi} d\phi$$

$$K(x) = \int_0^{\pi/2} \frac{d\phi}{\sqrt{1 - x^2 \sin^2 \phi}}$$
(6.60)

où ζ est la fonction zeta de Riemann, E et K des grandeurs définies à partir d'intégrales elliptiques. Les C_{ij} et les C_{ijk} sont respectivement les constantes élastiques du deuxième et troisième ordre.

Dans la direction [100], l'atténuation ultra-sonore par le biais des processus de Herring a donc pour expression dans un cristal d'arséniure de gallium :

$$\alpha(\mu\text{m}^{-1}) = 3,95 \cdot 10^{-8} \nu^2 T^3$$
(6.61)

avec ν la fréquence (en THz) de l'onde ultra-sonore introduite dans le système.

3.2.3 Influence de l'anisotropie et de la dispersion sur les processus de collision à trois phonons

La figure 6.7 représente une relation de dispersion réelle d'un cristal anisotrope. Les polarisations sont indexées sur chacune des branches. De même que dans le cas linéaire anisotrope, il est possible de définir une relation d'ordre concernant la vitesse et l'énergie de chaque polarisation ; pour un vecteur d'onde $\mathbf{q}$ donné, $E(La) > E(Tf) > E(Ts)$ pour l'énergie du phonon et $v_{La} > v_{Tf} > v_{Ts}$ pour les vitesses.

Voyons à présent l'apport de la dispersion sur l'existence des processus à trois phonons. Considérons les processus tels que les polarisations des trois phonons soient identiques $P + P \rightarrow P$.

La conservation de l'énergie nous donne :

$$\omega_0(q_0) + \omega_1(q_1) = \omega_2(q_2)$$
(6.62)

Un développement en $q = 0$ à l'ordre 1 de l'équation (6.62)¹⁷ donne :

$$q_0 \frac{d\omega(q_0)}{dq} + q_1 \frac{d\omega(q_1)}{dq} = q_2 \frac{d\omega(q_2)}{dq}$$
(6.63)

17. L'ordre 0 est nul pour les branche acoustique : $\omega(0) = 0$

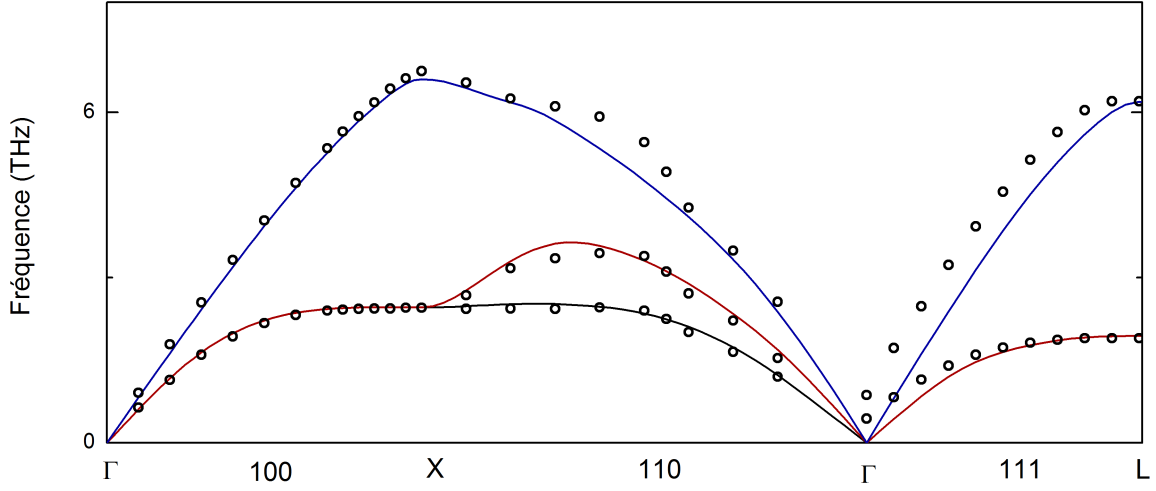


FIGURE 6.7 – Courbes de dispersion d'un cristal d'arséniure de gallium. La courbe bleue représente la polarisation longitudinale, les courbes rouges et noires sont respectivement les branches de polarisation transverse rapides et lentes. Les points sont les valeurs expérimentales [109]. Dans certaines directions de symétrie, les branches rapides et lentes sont dégénérées.

L'égalité (6.63) impose que la conservation du vecteur d'onde ne soit vérifiée uniquement dans le cas où $\frac{d\omega}{dq}$ est constant, c'est à dire si la dispersion est nulle. Ce n'est rigoureusement pas le cas d'une relation de dispersion d'un cristal réel, cependant en centre de zone la dispersion est quasi nulle. Il faut donc s'attendre à ce que ce processus soit autorisé. Sa contribution sera faible puisqu'il ne peut coupler que des phonons en centre de zone, restreignant fortement la surface des solutions du groupe d'équations (6.47).

Dans le cas d'une relation de dispersion réelle, les courbes de dispersion s'aplatissent en bord de zone (figure 6.7). Par conséquent, il faut s'attendre à l'existence d'une fréquence quasi-résonnante du phonon acoustique pour laquelle la densité d'états à deux phonons devient très grande. Ceci s'explique par le fait qu'il existe un grand nombre de vecteurs d'onde $\mathbf{k}$ d'énergie quasi-constante en bord de zone de Brillouin.

Le dernier point à souligner est l'existence d'une borne limite pour l'énergie du phonon acoustique au delà de laquelle la densité d'états à deux phonons, et donc l'atténuation sera nulle. En effet, les écarts d'énergie entre les branches acoustiques sont bornés, par conséquent les processus à trois phonons faisant intervenir un phonon acoustique dont l'énergie est plus grande que les écarts énergétiques inter-branches ne pourra satisfaire la conservation de l'énergie.

Le tableau 6.3 résume les processus de collision autorisés par les lois de conservation



3 Généralité sur les processus à trois phonons

en tenant compte de l'anisotropie et de la dispersion.

(a) $Ts + p_1 \longrightarrow p_2$				(b) $Tf + p_1 \longrightarrow p_2$				(c) $La + p_1 \longrightarrow p_2$			
$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La
Ts	$\sim$	✓	✓	Ts	$\sim$	✓	✓	Ts	×	✓	✓
Tf	×	✓	✓	Tf	×	$\sim$	✓	Tf	×	×	✓
La	×	×	✓	La	×	×	✓	La	×	×	$\sim$

TABLE 6.3 – Processus de collision interdits (× et $\sim$) et autorisés (✓ et $\sim$) pour $\phi_{p_0} + \phi_{p_1} \longrightarrow \phi_{p_2}$; $\sim$ signifie que le processus est interdit dans le cas d'une relation de dispersion de phonons non linéaire, *i.e.* en dehors du centre de zone. $\sim$ indique les processus faiblement autorisés par la dispersion. Les cases rouges (respectivement vertes) sont les processus interdits (respectivement permis) dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et anisotrope.

Les processus du type $X + X \longrightarrow X$ (repérés par $\sim$ dans le tableau 6.3) subsistent uniquement si les effets de la dispersion sont négligeables, c'est à dire en centre de zone de Brillouin. Leur contribution est donc faible (la surface solution de la densité d'états est limitée au centre de zone) et limitée aux basses fréquences du phonon acoustique ϕ_0 .

Le processus $Tf + Ts \longrightarrow Ts$ est interdit dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et anisotrope, la dispersion permet d'obtenir une faible contribution de ce processus suivant les axes de dégénérescence des branches transverses lentes et rapides.

3.3 Les processus de fission : $p_0 \longrightarrow p_1 + p_2$

L'expression de l'atténuation relative aux processus de fission a pour expression :

$$\alpha = \frac{\pi \hbar}{32V \rho^3 \omega_0 v_0} \sum_{\mathbf{q}^{p_1}, \mathbf{q}^{p_2}} \frac{|\mathfrak{M}|^2}{\omega_1 \omega_2} (1 + n_1 + n_2) \delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2) \quad (6.64)$$

Ce type de processus conduit forcément à deux phonons de plus basse énergie. En prenant une limite haute de 1 THz pour le phonon acoustique, les deux phonons issus d'un processus de fission sont donc de fréquence plus basse et ne sortent que très rarement du centre de zone où les effets de la dispersion sont faibles.

Les études réalisées jusqu'à présent restent valables dans le cadre de cette étude. Le comportement des processus de fission n'est pas profondément modifié par l'introduction de l'anisotropie et de la dispersion.

3.3.1 Existence des processus

Parmi l'ensemble des processus de fission possible, la quasi totalité sont autorisés. Les processus $T \longrightarrow La + La$ sont interdits (×) pour des raisons de conservation de l'énergie ; la densité d'état à deux phonons associée à ces processus est quasi nulle. Quant aux

CHAPITRE 6. THÉORIE DE L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE

(a) $Ts_0 \longrightarrow p_1 + p_2$				(b) $Tf_0 \longrightarrow p_1 + p_2$				(c) $La_0 \longrightarrow p_1 + p_2$			
$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La	$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La
Ts	✓	✓	×	Ts	✓	✓	✓	Ts	✓	✓	✓
Tf	✓	✓	⊠	Tf	✓	✓	⊠	Tf	✓	✓	⊠
La	×	⊠	×	La	✓	⊠	×	La	✓	⊠	✓

TABLE 6.4 – Processus de fission interdits (× et ⊠) et autorisés (✓) pour $\phi_{p_0} \longrightarrow \phi_{p_1} + \phi_{p_2}$;

processus $T \longrightarrow La + Tf$, le coefficient de couplage donne une contribution très faible (⊠), et sont interdits dans le cas d'une dispersion strictement linéaire.



4 Retour sur la densité d'états à deux phonons : $\mathfrak{S}$ dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope

La densité d'états définie par la relation 6.49 peut se calculer analytiquement dans des cas simples.

L'équation 6.49 s'écrit sous forme intégrale :

$$\mathfrak{S} = \iiint_{\mathbb{R}} \delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2) d^3\vec{q}_1 \quad (6.65)$$

Avec $\omega_i = |q_i|v_i$

En coordonnée sphérique :

$$\mathfrak{S} = \iiint_{\theta, \phi, q_1} \delta(f(q_1, \cos \theta)) \sin \theta q_1^2 d\theta d\phi dq_1 \quad (6.66)$$

La symétrie par rotation d'angle ϕ est assurée par l'anisotropie. Pour la suite, nous poserons $u \doteq \cos \theta$:

$$\mathfrak{S} \doteq 2\pi \iint_{u, q_1} \delta(f(q_1, u)) q_1^2 du dq_1 = 2\pi \iint_{u, q_1} \frac{\delta(u - u_0)}{|\frac{\partial f(q_1, u)}{\partial u}|_{u=u_0}} q_1^2 du dq_1 \quad (6.67)$$

Pour un vecteur d'onde q_1 fixé, u_0 est déterminé par les règles de conservation 6.47 :

$$u_0 = \frac{(q_0 v_0 + \chi q_1 v_1)^2 - v_2^2(q_1^2 + q_0^2)}{2\chi v_2^2 q_1 q_0} \quad (6.68)$$

Dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope, $\omega_i = qv_i$; par conséquent, f a pour expression (voir règles de conservation 6.47) :

$$\begin{aligned} f &= q_0 v_0 + \chi q_1 v_1 - q_2 v_2 \\ \frac{\partial f}{\partial u}|_{u=u_0} &= -v_2 \frac{\partial q_2}{\partial u} = \frac{-\chi v_2^2 q_1 q_0}{q_0 v_0 + \chi q_1 v_1} \end{aligned} \quad (6.69)$$

Par conséquent :

$$\mathfrak{S} = 2\pi \int_{q_1} \frac{q_1 |q_0 v_0 + \chi q_1 v_1|}{v_2^2 q_0} dq_1 \quad (6.70)$$

En posant $x = \frac{q_1}{q_0}$:

$$\mathfrak{S} = 2\pi \frac{q_0^2}{v_2^2} \int_x x |v_0 + \chi v_1 x| dx \quad (6.71)$$

Ou encore

$$\begin{aligned} \mathfrak{S} &= A \omega_0^2 \\ \text{avec } A &= 2\pi \frac{1}{(v_0 v_2)^2} \int_x x |v_0 + \chi v_1 x| dx \end{aligned} \quad (6.72)$$

CHAPITRE 6. THÉORIE DE L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE

Les bornes de l'intégrale (6.71) sont définies telles que

$$q_2 > 0 \text{ et } u \in [-1, 1] \quad (6.73)$$

Ces conditions définissent des bornes d'intégration pour chaque type de processus, ces limites sont indiquées dans le tableau 6.5 :

(a) $T_0 \rightarrow p_1 + p_2$			
Processus	limite basse	limite haute	A (nm ³ /ps ³)
$T \rightarrow T + T$	0	1	$6,93 \cdot 10^{-2}$
$T \rightarrow L + T$	interdit		.
$T \rightarrow L + L$	interdit		.

(b) $L_0 \rightarrow p_1 + p_2$			
Processus	limite basse	limite haute	A (nm ³ /ps ³)
$L \rightarrow T + T$	$\frac{v_L - v_T}{2v_T}$	$\frac{v_L + v_T}{2v_T}$	$9,44 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow T + L$	0	$\frac{2v_L}{v_T + v_L}$	$2,78 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow L + T$	$\frac{v_L - v_T}{v_L + v_T}$	1	$2,78 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow L + L$	0	1	$0,99 \cdot 10^{-2}$

TABLE 6.5 – Densité d'états et limites d'intégration de la densité d'états (équation (6.71)). A est calculé pour $v_T = 2,473$ nm/ps et $v_L = 4,73$ nm/ps.

Ces calculs permettront de vérifier la convergence et la validité de la procédure numérique détaillée au chapitre 8.

5 Conclusion

Dans cette partie nous avons précisé le cadre théorique de l'approche de Landau-Rumer pour le calcul de l'atténuation ainsi que les approximations des grandes longueurs d'onde. Ces calculs serviront de base aux procédures numériques nous permettant d'évaluer les densités d'états à trois phonons et les calculs d'atténuation dans l'arséniure de gallium et le silicium.

Les résultats importants de la discussion concernant les processus de collisions sont le faible nombre de processus de collision autorisés pour un phonon acoustique polarisé longitudinalement. Cependant, nous avons aussi montré l'apparition d'un processus d'une grande efficacité (processus de Herring¹⁸) due à l'anisotropie cristalline. Ce processus doit avoir un comportement peu conventionnel avec la fréquence, avec une résonance puis une extinction de ce dernier lorsque l'énergie du phonon acoustique devient trop élevée.

18. $La + Ts \rightarrow Tf$



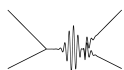
CHAPITRE 7

L'ATTÉNUATION ULTRA-SONORE DANS LES CRISTAUX : MESURES DANS L'ARSÉNIURE DE GALLIUM

Sommaire

1	Les différentes causes d'atténuation des ondes mécaniques dans les cristaux	143
1.1	Divergence du faisceau acoustique	143
1.2	Causes extrinsèques de l'atténuation	143
1.3	Causes intrinsèques : anharmonicité de réseau	143
2	Les mesures d'atténuation avec la technique pompe-sonde	144
2.1	Mesures absolues de l'atténuation dans l'arséniure de gallium (A. J. Kent).	144
2.2	Mesure relative de l'atténuation : contribution des processus d'interaction à trois phonons.	144
2.3	Les différentes configurations de mesure	145
2.3.1	Mesure en transmission simple avec double super-réseau . .	146
2.3.2	Mesure de l'écho acoustique en aller et retour dans un substrat d'arséniure de gallium	148
3	Résultats de l'atténuation dans un substrat d'arséniure de gallium	148
3.1	Dépendance en température	148
3.2	Dépendance en fréquence	148
3.3	Conclusions	151

CHAPITRE 7. RÉSULTAT EXPÉRIMENTAUX SUR L'ATTÉNUATION



Ovide

*Corpus adhuc Echo, non uox erat et tamen usum garrula non alium,
quam nunc habet, oris habebat, reddere de multis ut uerba nouissima
posset.*

*Jusqu'alors, Écho était un corps, non une simple voix, et pourtant,
cette bavarde ne se servait pas autrement de sa bouche que maintenant :
elle ne pouvait que répéter les tous derniers mots d'une longue phrase.*

Les métamorphoses - Traduction de A.-M. Boxus et J. Poucet

L'ensemble des mesures expérimentales sur l'atténuation d'ondes acoustiques longitudinales cohérentes dans le cristal d'arséniure de gallium sont regroupées dans ce chapitre. Le domaine de fréquence couvre la plage allant de 0,3 THz à 1 THz. Dans une première partie nous détaillerons les protocoles expérimentaux, puis dans un second temps les résultats.

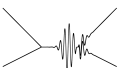
L'atténuation ultra-sonore est reliée à l'amplitude du champ acoustique par la relation :

$$A(z) = A_0 e^{-\alpha z} \quad (7.1)$$

Où $A(z)$ est l'amplitude du champ acoustique à une distance z , et A_0 l'amplitude du champ acoustique généré.

Notations

- α coefficient d'atténuation ultra-sonore (μm^{-1})
- τ temps de vie des phonons : $\tau = \frac{1}{2\alpha v}$
- λ_a longueur d'onde acoustique



1 Les différentes causes d'atténuation des ondes mécaniques dans les cristaux

Les mesures expérimentales de l'atténuation sont conceptuellement simples. L'amplitude de l'onde sonore diminue exponentiellement avec la distance parcourue et la connaissance de l'amplitude à deux positions données permet –en principe– d'avoir accès au facteur d'atténuation.

Comme il a été indiqué au chapitre 6, les causes d'atténuation sont nombreuses et variées.

1.1 Divergence du faisceau acoustique

Le faisceau acoustique généré n'est pas parfaitement collimaté. Des mesures réalisées par A. J. Kent [54] en 2002 montre qu'un faisceau généré par un super-réseau (GaAs/AlAs) au moyen d'un laser pulsé émet suivant un cône de demi-angle de 20° suivant une direction normale aux plans du super-réseau. Cependant Kent mesure à la fois les vibrations hautes fréquences générées par le super-réseau et les effets thermiques dus au chauffage par le laser. La divergence du faisceau acoustique haute fréquence est beaucoup plus faible, sur la distance de Fresnel correspondant au champ proche, le faisceau d'onde acoustique reste parfaitement collimaté :

$$z_f = \frac{a^2}{\lambda_a} \approx 50 \text{ mm} \quad (7.2)$$

a est la largeur caractéristique sur laquelle le faisceau est émis, ici $2a = 50 \mu\text{m}$ correspond au rayon du faisceau laser ; Pour 100 GHz, $\lambda_a = 50 \text{ nm}$ est la longueur d'onde acoustique.

Dans ces conditions, la divergence du faisceau est complètement négligeable.

1.2 Causes extrinsèques de l'atténuation

L'ensemble des causes extrinsèques dont l'origine se trouve en volume du cristal vont suivre une loi en e^{-z/z_0} . Ces causes ont pour origine des défauts structuraux du cristal par rapport au cristal parfait (dislocations et impuretés dans le réseau, etc.).

Une autre cause extrinsèque de l'atténuation est la rugosité des interfaces lorsque l'onde étudiée subit une réflexion. Cette atténuation se modélise par une diminution brutale de l'amplitude de l'onde au moment de la réflexion.

Ces causes d'atténuation ont en principe une très faible dépendance en température.

1.3 Causes intrinsèques : anharmonicité de réseau

La dernière cause d'atténuation des ondes sonores dans les cristaux est l'ensemble des processus d'interaction anharmonique avec les phonons du bain thermique. La dépendance de cette atténuation avec la distance suit une loi de décroissance exponentielle $e^{-\alpha d}$.

Les populations de phonons dépendant de la température du cristal, l'atténuation issue de ces processus d'interaction dépend donc fortement de la température.

2 Les mesures d'atténuation avec la technique pompe-sonde

Les principes de génération et de détection des ondes ultra-sonores sont détaillés dans les chapitres 2 et 4.

2.1 Mesures absolues de l'atténuation dans l'arséniure de gallium (A. J. Kent).

Des travaux réalisés par A. J. Kent et ses collaborateurs [54] ont permis des mesures absolues du libre parcours moyen de phonons longitudinaux à une fréquence de 640 GHz à une température de 2 K.

La figure 7.1 schématise le principe de mesure utilisé par Kent. Un super-réseau est placé sur une face d'un substrat d'arséniure de gallium poli de façon à faire apparaître un gradient d'épaisseur. Les impulsions acoustiques sont ensuite détectées avec des bolomètres en aluminium. Cette configuration permet –tout en gardant des conditions expérimentales stables et fixes– de mesurer l'énergie acoustique. Les bolomètres ne sont en effet sensibles qu'à l'énergie et non à la phase du champ acoustique, ce qui permet des mesures sur une épaisseur présentant un fort gradient. Des mesures sensibles à la phase donneraient dans les mêmes circonstances une moyenne de champ nulle. Le désavantage des bolomètres est de fonctionner uniquement à très basse température¹ et de ne pas permettre d'études en fonction de la température. Dans les conditions de l'expérience de Kent seuls les processus de fission et la diffusion isotopique sont donc à envisager.

2.2 Mesure relative de l'atténuation : contribution des processus d'interaction à trois phonons.

Une simple mesure d'amplitude ne permet pas de discriminer les différentes causes d'atténuation. Ces dernières agissant simultanément lors de la propagation de l'onde acoustique dans le cristal.

Cependant, seuls les processus d'interaction anharmoniques possèdent une dépendance significative en température. Il est donc possible de réaliser des mesures d'atténuation relative en mesurant l'amplitude du signal en fonction de la température.

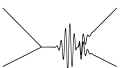
Les mesures que nous présentons dans ce chapitre ne permettent pas de comparer les amplitudes des champs acoustiques pour différentes épaisseurs d'échantillons. Il est par contre possible de suivre la variation de l'amplitude avec la température.

L'amplitude de l'onde en fonction de la distance s'écrit dans le cas général :

$$A(z) = A_0 \times r \times e^{-\frac{z}{\bar{l}}} \times e^{-\alpha(T)z} \quad (7.3)$$

où A_0 est l'amplitude de l'onde à l'origine ; $\bar{l}$ le libre parcours moyen de l'onde soumis aux processus extrinsèques ; α le coefficient d'atténuation ultra-sonore pour les processus anharmoniques ; r est un coefficient de réflexion des ondes acoustiques à l'arrière de

1. A la température de l'hélium liquide pompé : $T = 2,4$ K



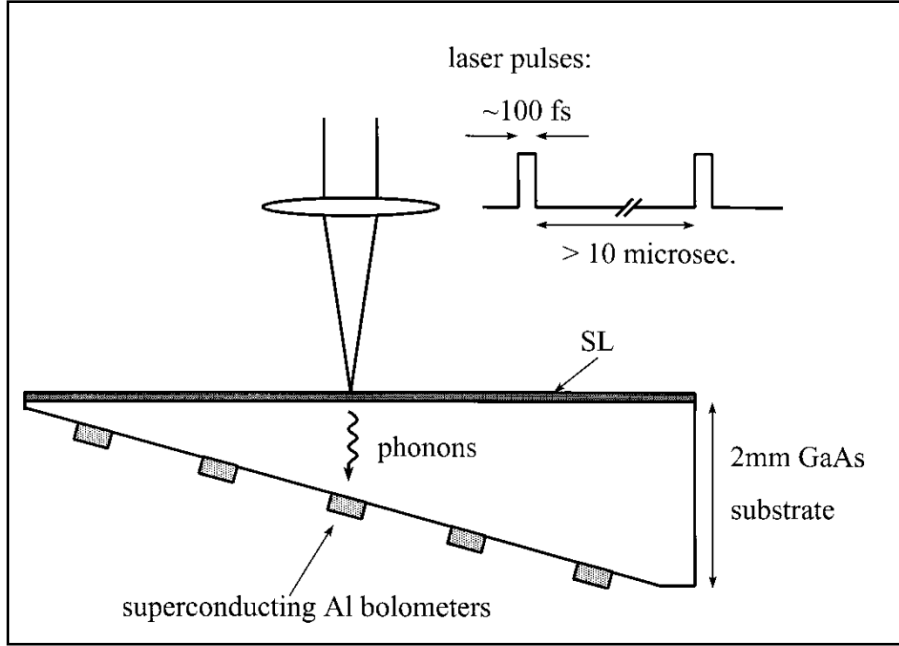


FIGURE 7.1 – Configuration expérimentale utilisée par Kent [54] pour les mesures d'atténuation basse température. Un super-réseau calibré à 650 GHz génère des phonons traversant un substrat d'épaisseur variable avant d'être détectés par des bolomètres.

l'échantillon dans le cas d'une étude en aller et retour.

Pour une distance d parcourue par l'onde,

$$A_d(T) = A_0 e^{-\alpha(T)d} \quad (7.4)$$

Il n'est pas nécessaire de connaître tous les termes responsables de l'atténuation pour obtenir α :

$$\frac{A_d(T_1)}{A_d(T_0)} = e^{d(\alpha(T_0) - \alpha(T_1))} \quad (7.5)$$

Les mesures en température couvrent un domaine allant de 10 K à 100 K. Il est donc possible d'avoir accès aux variations $\alpha(T)$:

$$\alpha(T) - \alpha(10K) = -\frac{1}{d} \log \left(\frac{A_d(T)}{A_d(10K)} \right) \quad (7.6)$$

2.3 Les différentes configurations de mesure

Deux configurations ont été utilisées pour les mesures : une première en transmission à travers le substrat, une seconde en aller-retour après réflexion sur la face arrière du substrat.

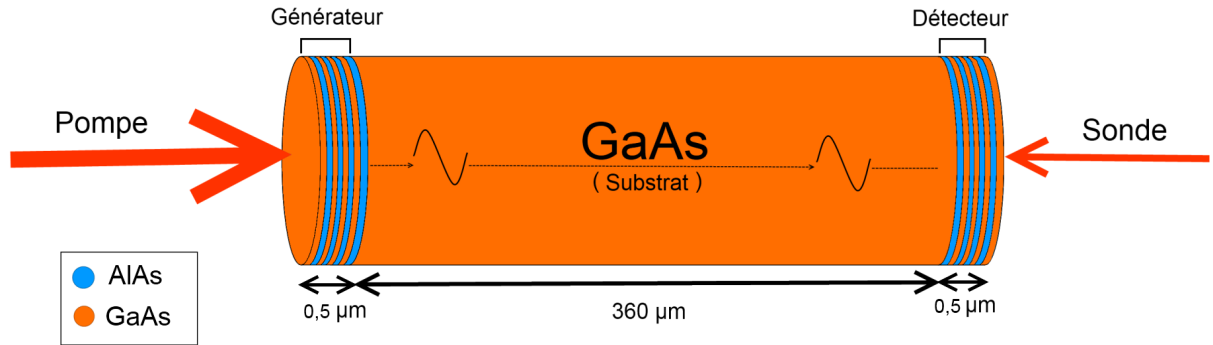


FIGURE 7.2 – Schéma de la configuration d'une expérience pompe-sonde en transmission avec un double super-réseau.

2.3.1 Mesure en transmission simple avec double super-réseau

Les mesures présentées dans ce chapitre ont toutes été obtenues grâce à la transduction opto-acoustique à l'aide de super-réseaux. Si les super-réseaux sont transparents ou semi-transparentes aux longueurs d'onde optiques utilisées, il y a un renforcement très important de la génération des modes acoustiques en centre de zone et de la détection des modes à des vecteurs d'onde satisfaisant la règle de sélection $q = 2k$. Un super-réseau n'est donc pas en général efficace pour générer et détecter les ondes acoustiques de même fréquence.

Pour surmonter cette difficulté nous avons entrepris des mesures de transmission acoustique au travers de substrats sur les deux faces desquels des super-réseaux sont déposés. Un premier super-réseau acoustique de période fixe est déposé en surface du substrat d'arséniure de gallium ; sur la face arrière de ce même substrat un autre super-réseau de période variable est déposé.

Au cours de l'épithaxie moléculaire² la rotation de l'échantillon est arrêtée de façon à créer un gradient d'épaisseur des couches du super-réseau suivant une direction. Ce gradient permet –en déplaçant le point de focalisation du laser– de sélectionner la fréquence de génération où de détection en fonction du super-réseau de pas fixe situé sur l'autre face.

Ce couple de super-réseaux permet donc de générer et détecter des hautes fréquences acoustiques en transmission au travers d'un substrat dont l'épaisseur peut atteindre 1 mm.

Le contenu fréquentiel est quasi-monochromatique. Les formules précédemment détaillées peuvent s'appliquer sur l'amplitude des pics de transformée de Fourier temporelle du signal.

La figure 7.3 nous montre le signal temporel obtenu pour des super-réseaux calibrés pour générer et détecter des ondes acoustiques à 395 GHz, la courbe rouge étant le signal filtré à cette fréquence. L'amplitude du pic à 395 GHz évolue avec la température comme le montre la figure 7.4.

2. Procédé de fabrication permettant de déposer sur un substrat des couches dont l'épaisseur peut être contrôlée à la couche atomique près.



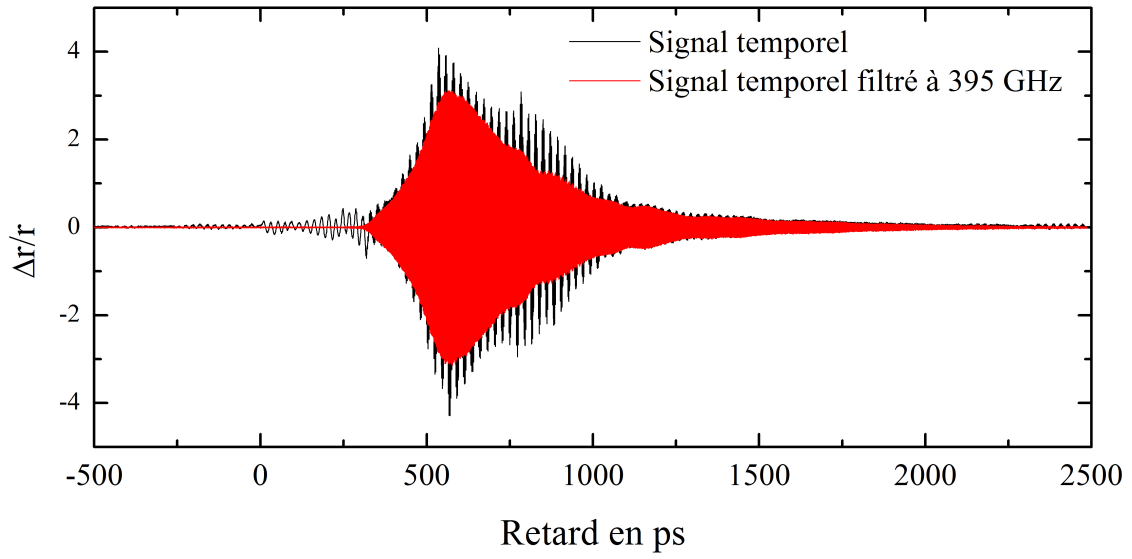


FIGURE 7.3 – Mesure en transmission sur un super-réseau du signal acoustique généré par un super-réseau calibré à 395 GHz. La courbe rouge est le signal filtré à 395 GHz.

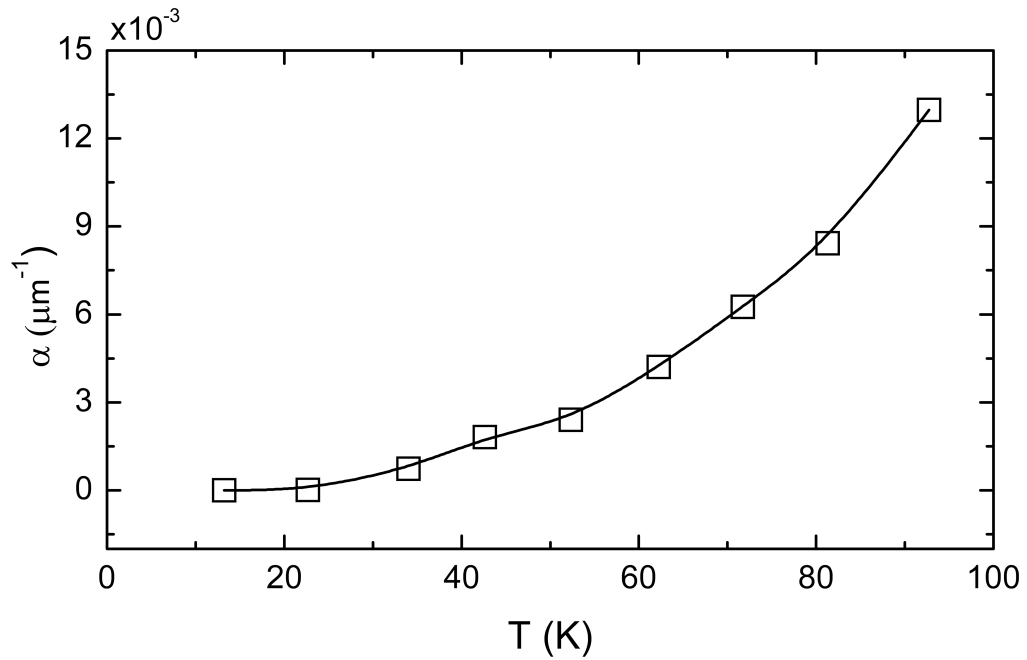


FIGURE 7.4 – Atténuation en fonction de la température pour une onde acoustique à 0.395THz.

CHAPITRE 7. RÉSULTAT EXPÉRIMENTAUX SUR L'ATTÉNUATION

2.3.2 Mesure de l'écho acoustique en aller et retour dans un substrat d'arséniure de gallium

Les règles de sélection³ peuvent être modifiées dans le cas d'une réflexion non nulle du champ électromagnétique à l'arrière du super-réseau. Un des échantillons possède cette propriété et a permis des mesures en aller-retour dans le substrat à 400 GHz (figure 7.4).

Il a été montré (chapitre 4) qu'un super-réseau acoustique placé dans une micro-cavité optique autorise la génération et la détection d'un même mode acoustique. Le principal effet de la micro-cavité optique est de modifier le champ électromagnétique vu par le super-réseau. Les règles de sélection sont alors modifiées, et permettent la génération et la détection d'un même mode acoustique de centre de zone ($q = 0$), contrairement aux simples super-réseaux.

Dans cette configuration, l'écho acoustique est détecté après un aller et retour dans le substrat.

3 Résultats de l'atténuation dans un substrat d'arséniure de gallium

3.1 Dépendance en température

Les mesures d'atténuation relative (figure 7.5) obtenues en température pour différentes fréquences présentent des similitudes de comportement ; deux régimes de température sont observés :

- un régime basse température ($T < 30$ K) se distinguant par une faible croissance en loi de puissance de l'atténuation.
- un régime haute température ($T > 30$ K) où l'atténuation est linéaire en température.

3.2 Dépendance en fréquence

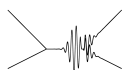
Validation du protocole de mesures

La dépendance en fréquence de l'atténuation (figure 7.7) présente un comportement inattendu vis à vis des théories existantes. Deux régimes sont observés ; à basse fréquence l'atténuation croît avant d'atteindre un plateau aux alentours de 0,7 THz.

Cette stagnation de l'atténuation est une réelle surprise. L'état de l'art concernant les thématiques d'atténuation ne laisse pas présupposer un tel comportement. La méthode de mesure peut profondément influencer le résultat final. Les mesures d'amplitude des très hautes fréquences avec une technique pompe-sonde est particulièrement sensible aux conditions de mesure et les propriétés optiques des super-réseaux varient avec la température. Malgré les difficultés expérimentales, les résultats sont cohérents entre eux pour différentes séries de mesures et différentes fréquences.

Le dernier point attestant de la fiabilité du protocole de mesure sont les acquisitions réalisées sur des échantillons d'épaisseurs différentes :

3. Imposant à un super-réseau de ne pouvoir détecter le contenu fréquentiel généré.



3 Résultats de l'atténuation dans un substrat d'arséniure de gallium

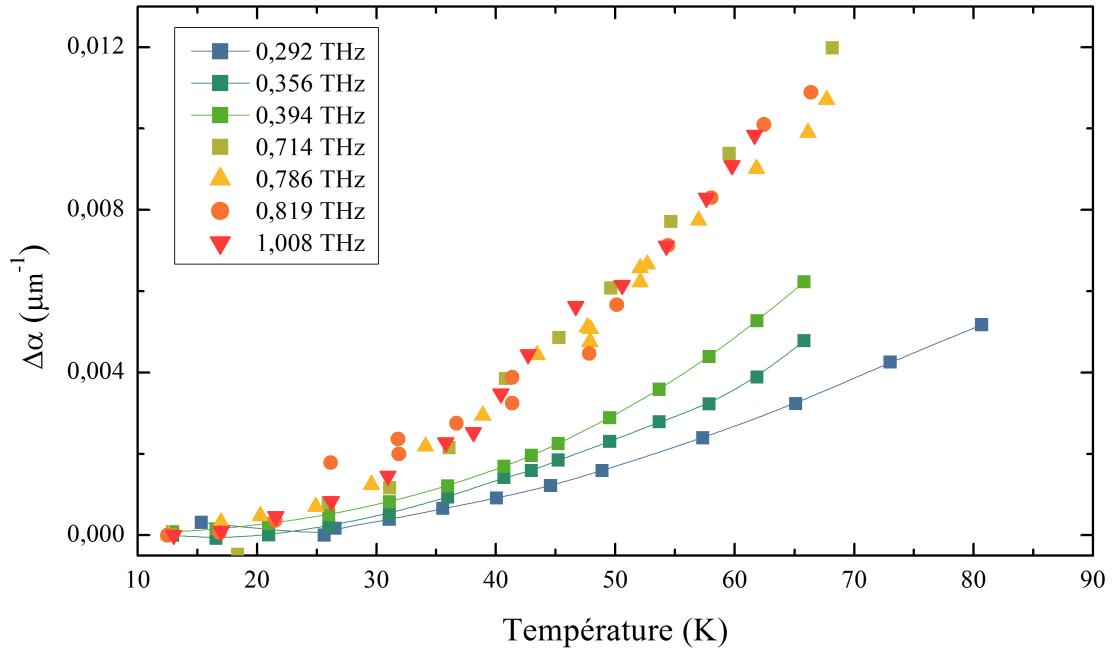


FIGURE 7.5 – Atténuation en fonction de la température pour l'ensemble des échantillons.

- en transmission sur substrat fin : $d = e = 360 \mu\text{m}$
- en transmission sur substrat épais : $d = e = 983 \mu\text{m}$
- en aller et retour sur substrat fin : $d = 2e = 692 \mu\text{m}$

L'ensemble des données obtenues sur ces échantillons fournissent des variations d'atténuation avec la température identiques comme le montre la figure 7.6. Ces données permettent de valider le protocole expérimental utilisé.

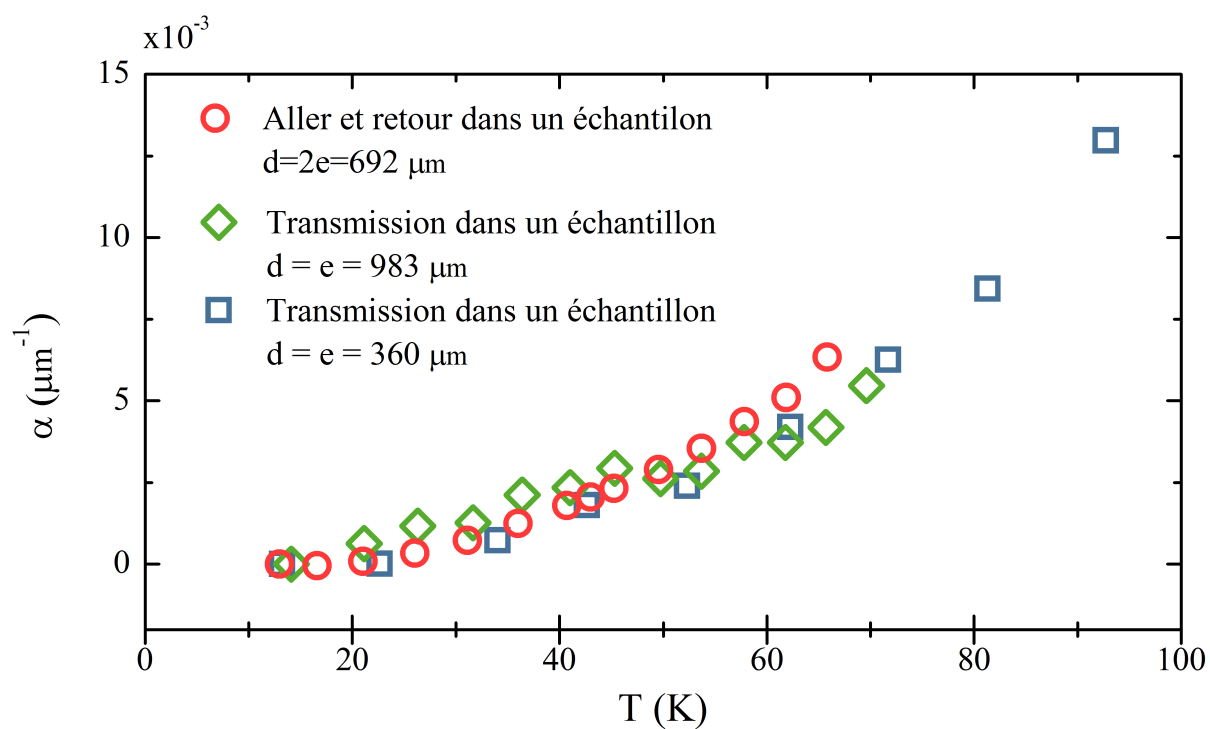
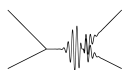


FIGURE 7.6 – Atténuation à 400 GHz en fonction de la température pour différentes épaisseurs parcourues. Sur trois épaisseurs différentes, l'atténuation ultra-sonore est identique.



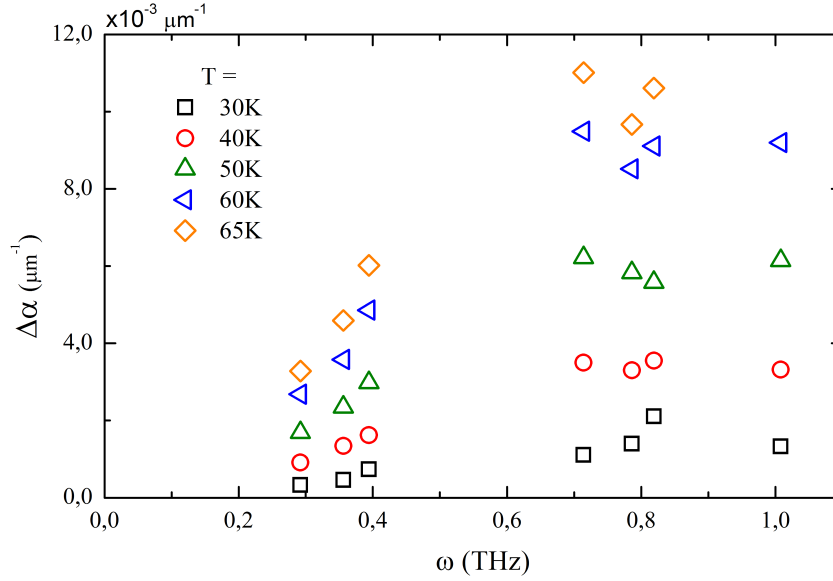


FIGURE 7.7 – Atténuation en fonction de la fréquence pour une température allant de 30 K à 65 K. Les mesures ont été réalisées avec double super-réseau en transmission mais aussi avec le super-réseau à cavité optique. Un plateau apparaît avec l'augmentation de la température à partir de 0,7 THz.

Discussion sur les théories basses fréquences

L'atténuation en fonction de la fréquence pour différentes températures est reportée en figure 7.7.

Un prolongement des théories basses fréquences laisserait supposer un comportement monotone en loi de puissance de l'atténuation. Cependant, les fréquences acoustiques atteintes dans le cadre de ces mesures permettent au processus de Herring de coupler les phonons acoustiques avec des phonons thermiques atteignant le bord de zone de Brillouin. Deux paramètres jusqu'à présent négligés dans les théories basses fréquences entrent en jeu :

- la dispersion apparaissant dès le milieu de zone de Brillouin
- la limite en fréquence des phonons thermiques atteignant le bord de la zone de Brillouin

Ces deux paramètres tendent à diminuer drastiquement l'efficacité des processus de Herring pour les très hautes fréquences ; ce processus étant dépendant de l'existence de phonons hautes fréquences pour rester le mode d'interaction dominant.

3.3 Conclusions

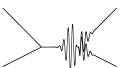
Les mesures d'atténuation relatives dans le domaine allant de 200 GHz à 1 THz présentent un comportement non envisagé par les théories courantes. Il est usuellement admis que l'atténuation varie comme une loi de puissance, et a un comportement monotone.

CHAPITRE 7. RÉSULTAT EXPÉRIMENTAUX SUR L'ATTÉNUATION

Les mesures faites dans l'arséniure de gallium montrent le contraire. Un plateau est observé entre 600 GHz et 1 THz, contredisant alors un comportement monotone de l'atténuation.

Le chapitre suivant est centré sur l'explication de deux points majeurs :

- Explication du plateau en fréquence pour l'arséniure de gallium
- Les valeurs anormalement hautes de l'atténuation hautes fréquences par rapport aux théories existantes à plus basses fréquences.



CHAPITRE 8

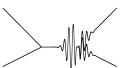
PROCÉDURE NUMÉRIQUE DE L'APPROCHE DE LANDAU-RUMER

Sommaire

1	Description de la procédure numérique	157
1.1	Conservation du vecteur d'onde	157
1.2	Sommation sur la zone de Brillouin	158
1.3	Coefficient de couplage $ \mathfrak{M} ^2$	159
1.4	Conservation de l'énergie et évaluation de $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$	161
1.5	Relations de dispersion	163
2	Paramètres utilisés pour les calculs	166
2.1	Fonction de substitution pour $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$	166
2.2	Relation de dispersion et fréquence de coupure	167
2.3	Contrôle des calculs	168
2.3.1	Densité d'états à 2 phonons calculée analytiquement	168
2.3.2	Formule de Simons et relation de dispersion linéaire anisotrope	168
3	Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement	170
3.1	Processus de collision	170
3.1.1	Densité d'états à deux phonons	170
3.2	Processus de Herring	170
3.2.1	Densité d'états à deux phonons pour le processus de Herring	171
3.2.2	Atténuation pour le processus de Herring	174
3.3	Autres processus de collision : $La + Tf \rightarrow La$ et $La + Ts \rightarrow La$.	175
3.4	Les processus de fission : $La \rightarrow X + Y$	175
3.5	Contribution totale à l'atténuation et accords expérimentaux pour l'arséniure de gallium	178
3.6	Dépendance en température	180
3.7	Résultats à basse température et processus de diffusion isotopique .	181
3.8	Directions [110] et [111]	184
3.9	Conclusions	184

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

4	Atténuation pour un phonon polarisé transversalement	186
4.1	Paramètres de simulation pour l'atténuation des phonons polarisés transversalement	186
4.2	Processus de collisions $T_{s,f} + X \longrightarrow Y$	186
4.3	Processus d'Herring pour la polarisation transverse	189
4.4	Conclusion	189
5	Application au cristal de silicium	190
5.1	Relation de dispersion et densité d'états du silicium	190
5.2	Densité d'états à deux phonons	192
5.3	Processus de Herring et plateau haute fréquence	192
5.4	Conclusion	193
6	Conclusion générale	193



F. Herbert

Le besoin pressant d'un univers logique et cohérent est profondément ancré dans l'inconscient humain. Mais l'univers réel est toujours un pas au-delà de la logique.

Face aux surprenants résultats expérimentaux concernant l'atténuation ultra-sonore, des calculs tenant compte de la dispersion et de l'anisotropie réelle dans les cristaux ont été menés afin d'expliquer les anomalies observées. Ce chapitre est consacré aux méthodes numériques de calcul de l'atténuation dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer détaillée au chapitre 6.

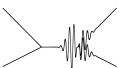
Une première partie s'attache à expliquer les méthodes numériques utilisées ainsi que les choix de paramètres pour le calcul de l'atténuation. La seconde partie de ce chapitre est consacrée aux résultats de ces calculs concernant l'atténuation ultra-sonore dans le régime subtérahertz.

Je tiens à souligner la collaboration avec Jelena Sjakste (LSI - Palaiseau) dans la conception de l'approche développée dans ce chapitre, non seulement pour les grilles de fréquence pour l'arséniure de gallium et le silicium mais aussi pour l'expression *ad hoc* des coefficients de couplage et les nombreux conseils concernant les calculs numériques sur *mesh* dont je n'étais que peu familier.

Notations

Les notations utilisées sont identiques à celles utilisées dans le chapitre 6 sur la théorie de l'atténuation.

- α : coefficient d'atténuation en μm^{-1}
- $\Delta\alpha = \alpha(T) - \alpha(T_0)$: Variation relative de l'atténuation en fonction de la température
- F_p : Facteur de population
- n : facteur de population de Boltzmann
- λ_c : Indice de maille du maillage numérique de la zone de Brillouin
- $\mathbf{q}$: vecteur d'onde acoustique
- q_c : Vecteur d'onde de coupure
- $\mathfrak{S}$: densité d'états à deux phonons
- DEB, RIM, AB, ABc : relation de dispersion numérique
- T : température



1 Procédure numérique pour l'atténuation des phonons dans l'approche de Landau-Rumer

Pour rappel, l'équation (6.24) dans la théorie de Landau-Rumer donne l'atténuation pour un processus donné :

$$p_0 + \chi \cdot p_1 \longrightarrow p_2$$

$$\alpha = \frac{\pi \hbar}{32V \rho^3 \omega_0 v_0} \sum_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2} \frac{|\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \chi \mathbf{q}p_1, -\mathbf{q}p_2)|}{\omega_1 \omega_2} \times F_p(\chi, \omega_1, \omega_2) \quad (8.1)$$

$$\times \Delta(\mathbf{q}_0 + \chi \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) \times \delta(\omega_0 + \chi \omega_1 - \omega_2)$$

où p_i est la polarisation du phonon ϕ_i , $\chi = -1$ pour un processus de fission, et $+1$ pour une collision.

Les phonons ϕ sont indexés de 0 à 2 : ϕ_0 est le phonon acoustique introduit en excès dans le système, $\phi_{1,2}$ sont les phonons du bain thermique.

les facteurs de population F_p ont pour expression :

$$F_p(+1, \omega_1, \omega_2) = 2(n_1(\omega_1) - n_2(\omega_2))$$

$$F_p(-1, \omega_1, \omega_2) = 1 + n_1(\omega_1) + n_2(\omega_2) \quad (8.2)$$

Deux aspects interviennent dans cette expression :

- Un coefficient de couplage entre modes qui dépend de la nature des potentiels inter-atomiques.
- Des densités d'états de processus à 2 phonons définies par la conservation simultanées de l'énergie et des vecteurs d'onde des phonons.

Cette dernière quantité suppose une très bonne connaissance des courbes de dispersion du système considéré et donc à nouveau du potentiel inter-atomique.

1.1 Conservation du vecteur d'onde

Δ est le facteur vérifiant la conservation du vecteur d'onde dans le cas de processus normaux ou Umklapp. $\Delta(\mathbf{q}_0 + \chi \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2)$ est non nul si l'argument vaut zero ou $\mathbf{Q}$ ¹.

Le vecteur d'onde $\mathbf{q}_2$ est donc entièrement déterminé par le facteur Δ :

$$\mathbf{q}_2 = \mathbf{q}_0 + \chi \mathbf{q}_1 \quad (8.3)$$

$\mathbf{q}_0$ est le vecteur d'onde acoustique, $\mathbf{q}_1$ est l'ensemble des vecteurs d'onde des phonons du bain thermique et couvre donc l'ensemble de la zone de Brillouin. Tel qu'il est défini, il est possible pour $\mathbf{q}_2$ de sortir de la zone de Brillouin ; dans ce cas nous avons affaire à un processus Umklapp et il faut retrancher un vecteur du réseau réciproque pour obtenir le vecteur d'onde équivalent appartenant à la zone de Brillouin.

1. $\mathbf{Q}$ est un vecteur du réseau réciproque.

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

Si $\mathbf{q}_0 + \chi\mathbf{q}_1$ n'est pas inclus dans la première zone de Brillouin :

$$\mathbf{q}_2 = \mathbf{q}_0 + \chi\mathbf{q}_1 - \mathbf{Q} \quad (8.4)$$

Par simplification des notations, nous allons prendre $\mathbf{q}_2 = \mathbf{q}_0 + \chi\mathbf{q}_1$ quelles que soient les valeurs de $\mathbf{q}_0$ et $\mathbf{q}_1$. Numériquement, les vecteurs $\mathbf{q}_2$ sortant de la zone de Brillouin sont systématiquement repliés dans la première zone.

1.2 Sommation sur la zone de Brillouin

Discretisation de la zone de Brillouin

La double somme de l'équation (8.1) se simplifie en une simple somme sur $\mathbf{q}_1$ puisque le vecteur d'onde du phonon ϕ_2 est entièrement déterminé par la conservation du vecteur d'onde.

$$\alpha = \frac{\pi\hbar}{32V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\mathbf{q}_1} \frac{\mathfrak{M}^2(\mathbf{q}p_0, \chi\mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_0 + \chi\mathbf{q}p_1)}{\omega_1\omega_2} \times F_p(\chi) \times \delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2) \quad (8.5)$$

Numériquement, la première zone de Brillouin est découpée suivant un pavage cubique de paramètre N tel qu'un cube élémentaire du pavage ait pour volume

$$V_e = \left(\frac{\pi}{Na} \right)^3 \quad (8.6)$$

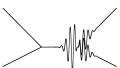
Chaque cube élémentaire est assimilé à un point de la zone de Brillouin, les grandeurs² couvrant le volume du cube sont donc discrétisées et prises égales à leur valeur au centre du cube élémentaire ; la sommation sur $\mathbf{k}_1$ revient donc à une sommation sur l'ensemble des cubes couvrant la première zone de Brillouin.

$$\alpha = \frac{\pi\hbar}{32V\rho^3\omega_0v_0} \sum_{\lambda_c} \frac{\mathfrak{M}^2}{\omega_1\omega_2} \times F_p \times \delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2) \quad (8.7)$$

En chaque élément du pavage indicé par λ_c , les grandeurs $\mathbf{k}_2$ et ω_2 sont calculées à partir des $\mathbf{k}_0$, $\mathbf{k}_1$, ω_0 et ω_1 et des règles de conservation (6.47).

N est le paramètre de convergence de la procédure numérique. Plus N sera grand plus la somme (8.7) se rapprochera d'une intégrale continue sur les vecteurs d'onde $\mathbf{q}$ au détriment des temps de calcul. La convergence de la somme est assurée pour N valant approximativement 90, soit un pavage de l'espace réciproque de $(2N+1)^3 = 5\,929\,741$ points.

2. Vecteurs d'onde, fréquences et polarisations.



Direction	[001]	[011]	[111]
Degrés de la symétrie	8	4	6

TABLE 8.1 – Degrés de symétrie de la zone de Brillouin d'un cristal cubique face centrée composés avec les directions privilégiées du cube.

Symétries de la zone de Brillouin

La figure 8.1 en page 160 représente la première zone de Brillouin pour un réseau cubique face centrée³. Les 48 symétries naturelles de la zone de Brillouin se déduisent de celles du cube (Schéma (a) figure (8.1)). Cependant, les symétries de la zone de Brillouin doivent être composées avec les symétries de la direction du phonon ϕ_0 .

Le phonon ϕ_0 sera pris selon une des trois directions de haute symétrie d'un cristal cubique⁴, réduisant les degrés de symétrie comme indiqué dans le tableau 8.1.

1.3 Coefficient de couplage $|\mathfrak{M}|^2$

Les coefficients de couplage sont mal connus à l'heure actuelle. Des calculs *ab initio* commencent à apparaître pour déterminer ces coefficients de couplage [115, 116]. Des expressions explicites dans le cadre de potentiels à forces centrales existent [97], mais ne s'appliquent pas aux cristaux tels que l'arséniure de gallium.

L'équation (6.45) donne une expression de ces coefficients dans le cadre de l'approximation à grande longueur d'onde :

$$\mathfrak{M}(\mathbf{q}p_0, \mathbf{q}p_1, \mathbf{q}p_2) = -i \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} S_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} e_{\alpha}(\mathbf{q}_0) e_{\gamma}(\mathbf{q}_1) e_{\mu}(\mathbf{q}_2) q_{0\beta} q_{1\delta} q_{2\nu} \quad (8.8)$$

$$\text{avec } S_{\alpha\beta,\gamma\delta,\mu\nu} = C_{\alpha\beta,\gamma\delta,\mu\nu} + \delta_{\alpha\gamma} C_{\beta\delta,\mu\nu} + \delta_{\alpha\mu} C_{\beta\nu,\gamma\delta} + \delta_{\gamma\mu} C_{\alpha\beta,\delta\nu}$$

Le calcul de temps de vie pour des phonons acoustiques de fréquence allant du gigahertz au terahertz fait intervenir des phonons du bain thermique appartenant à toute la zone de Brillouin. L'hypothèse des grandes longueurs d'onde (*i.e.* petit vecteur d'onde $\mathbf{q}$) n'est principalement pas valable pour les plus hautes températures considérées.

Le désaccord majeur de l'expression du coefficient $\mathfrak{M}$ à petit vecteur d'onde (8.8) avec une expression plus réaliste réside dans la dépendance linéaire en $\mathbf{q}$. En effet, les expressions explicites de ce même coefficient dans le cas de forces centrales donnent une dépendance en $\sin(\frac{a_0\mathbf{q}}{4})$ [97] respectant la linéarité pour des valeurs faibles du vecteur d'onde $\mathbf{q}$.

En s'inspirant de la dépendance en $\mathbf{q}$ du modèle à force centrale et afin d'éviter une surévaluation du coefficient de couplage pour les phonons thermiques en bord de zone de Brillouin, une fréquence de coupure q_c est introduite par J. Sjakste et moi-même pour adapter de façon *ad hoc* le comportement de $\mathfrak{M}$ à grand vecteur d'onde :

3. Octaèdre tronqué.

4. [100], [110] et [111].

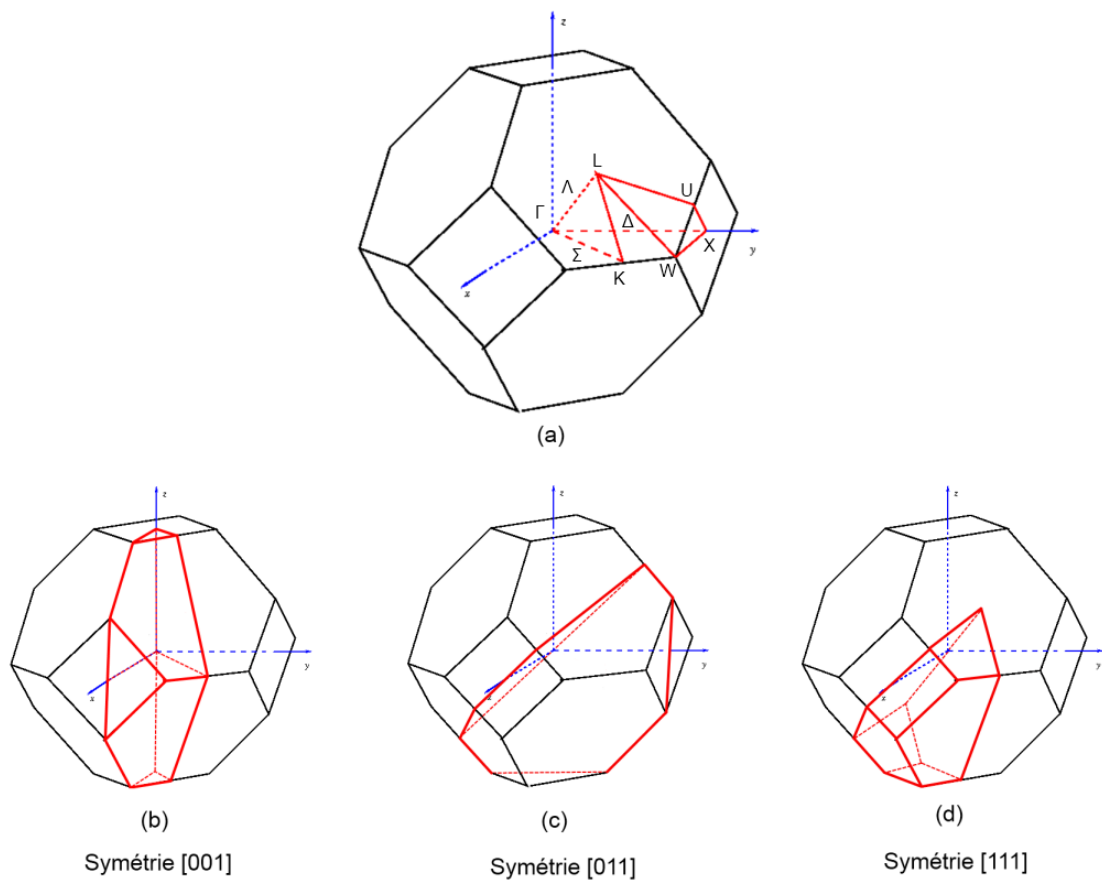
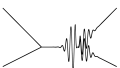


FIGURE 8.1 – Première zone de Brillouin pour un cristal à symétrie cubique face centrée. Zones dessinées en rouge : (a) zone de Brillouin réduite par symétrie de la zone Brillouin ; (b), (c) et (d) symétries de la zone de Brillouin composés avec les symétries du vecteur [001], [011] et [111].



$$\mathfrak{M}(\hat{q}p_0, \hat{q}p_1, \hat{q}p_2) = -i \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} S_{\alpha\beta\gamma\delta\mu\nu} \times \hat{q}_{0\beta} \hat{q}_{1\delta} \hat{q}_{2\nu} \times e_\alpha(\hat{\mathbf{q}}_0) e_\gamma(\hat{\mathbf{q}}_1) e_\mu(\hat{\mathbf{q}}_2)$$

$$\hat{\mathbf{q}}_i = \begin{cases} \mathbf{q}_i & \text{si } q_i < q_c \\ q_c \cdot \frac{\mathbf{q}_i}{|\mathbf{q}_i|} & \text{si } q_i \geq q_c \end{cases} \quad (8.9)$$

q_c doit prendre des valeurs correspondant au milieu de zone de Brillouin, c'est à dire $q_c = 0,4$ à $0,6(\frac{2\pi}{a})$, il s'agit de la zone où les effets de la dispersion doivent être pris en compte.

q_c est la seule variable d'ajustement de ce modèle et est déterminée avec les valeurs expérimentales des mesures d'atténuation dans l'arséniure de gallium. (annexe B en page 208)

1.4 Conservation de l'énergie et évaluation de $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$

Méthode de la lorentzienne

Le calcul numérique de l'atténuation par la théorie de Landau-Rumer pose le problème de l'évaluation d'une densité d'états à deux phonons (6.49) par le biais d'une distribution de Dirac $\delta(\omega_0 + \omega_1 - \omega_2)$. En effet, la discrétisation des vecteurs d'onde (c'est à dire le maillage cubique) sur toute la zone de Brillouin interdit l'utilisation stricte de la distribution de Dirac. Il faut la remplacer par une fonction limite δ_ε telle que :

$$\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \delta_\varepsilon = \delta \quad (8.10)$$

Une fonction lorentzienne peut-être utilisée pour δ_ε :

$$\delta_\varepsilon(x) = \frac{\frac{1}{\pi\varepsilon}}{(\frac{x}{\varepsilon})^2 + 1} \quad (8.11)$$

Cet affaiblissement de la règle de conservation en énergie permet pour une somme discrète de tenir compte du caractère continu des valeurs de vecteur d'onde $\mathbf{q}$ de la zone de Brillouin.

Le paramètre⁵ ε est directement lié à la taille du maillage ; le pied de la lorentzienne doit arriver sur les points voisins du maillage de façon à recouvrir l'espace.

La densité d'état est calculée selon :

$$\delta_{LO}(\omega) = C_{LO} \sum_{\lambda_c} W_{\lambda_c} \delta_\varepsilon(\omega(\lambda_c)) \quad (8.12)$$

avec W_{λ_c} un facteur de poids lié aux symétries de la maille λ_c .

5. ε est le double de la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne.

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

$S(w)$	Conditions	w_i
$\frac{4b^2}{l_1}$	$0 \leq w \leq w_1$ $l_1 \geq l_2 + l_3$	$w_1 = b l_1 - l_2 - l_3 $
$\frac{2b^2(l_1l_2 + l_2l_3 + l_1l_3) - (w^2 + b^2)}{l_1l_2l_3}$	$0 \leq w \leq w_1$ $l_1 \leq l_2 + l_3$	$w_1 = b l_1 - l_2 - l_3 $
$\frac{b^2(3l_2l_3 + l_1l_2 + l_3l_1) - bw(-l_1 + l_2 + l_3) - (w^2 + b^2)/2}{l_1l_2l_3}$	$w_1 < w \leq w_2$	$w_2 = b(l_1 - l_2 + l_3)$
$2b \frac{b(l_1 + l_2) - w}{l_1l_2}$	$w_2 < w \leq w_3$	$w_3 = b(l_1 + l_2 - l_3)$
$\frac{[b(l_1 + l_2 + l_3)]^2}{2l_1l_2}$	$w_3 < w \leq w_4$	$w_4 = b(l_1 + l_2 + l_3)$

TABLE 8.2 – Expression littérale de la surface $S(w)$; intersection d'un plan et d'un cube en fonction de la normale au plan (l_1, l_2, l_3) et de la distance au centre w . La figure 8.2 représente la grandeur $S(w)$ pour le cas où la normale à la surface est proche de l'axe [100] ou [111].

Méthode de Gilat et Raubenheimer [117]

Une autre approche de la densité d'états à deux phonons définie en (6.49) consiste à l'écrire sous forme intégrale :

$$\mathfrak{S} = \int_{\mathbf{q}} \delta_S(\omega_0(\mathbf{q}_0) - \Omega((\mathbf{q}_0, \mathbf{q}_1)) d^3\mathbf{q} \quad (8.13)$$

Cette équation définit une surface dans l'espace réciproque. En considérant un maillage suffisamment fin de la zone de Brillouin, l'intersection de cette surface $\mathfrak{S}$ avec un cube du maillage revient à déterminer l'intersection d'un plan tangent à la surface $\mathfrak{S}$ avec ce cube.

Cette méthode est une linéarisation de la relation de dispersion dans chaque cube du maillage [117].

$$\Omega(\mathbf{q} + d\mathbf{q}) = \Omega(\mathbf{q}) + d\mathbf{q} \nabla_{\mathbf{q}} \Omega \quad (8.14)$$

Le plan tangent à la surface $\mathfrak{S}$ est défini par les coordonnées (l_1, l_2, l_3) du cosinus directeur du gradient de Ω .

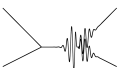
Les symétries du cube impliquent qu'il est possible de permuter arbitrairement (l_1, l_2, l_3) de façon à avoir

$$l_1 \geq l_2 \geq l_3 \quad (8.15)$$

Les cubes constituant le maillage de la zone de Brillouin ont pour arête une longueur de $2b = \frac{\pi}{Na_0}$. Posons w la distance du plan tangent à $\mathfrak{S}$ au centre du cube. D'après (8.14),

$$w = \frac{\omega_0 - \Omega_c(\lambda_c)}{\nabla_{\mathbf{q}=q_c} \Omega} \quad (8.16)$$

La fonction $S(w)$ est la surface d'intersection du cube et du plan tangent ; elle est définie par un ensemble de relations indiquées dans le tableau 8.2.



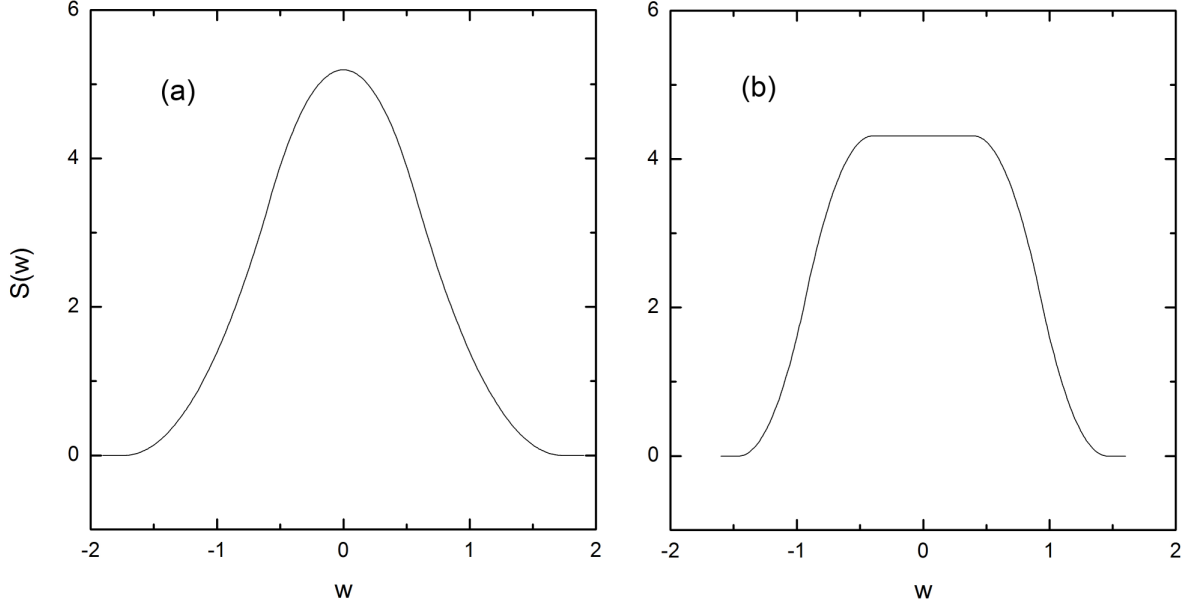


FIGURE 8.2 – Surface de l'intersection d'un plan de normale (l_1, l_2, l_3) et d'un cube en fonction de la distance w du plan au centre du cube; (a) normale proche de l'axe $[100]$ $l_1 < l_2 + l_3$; (b) normale proche de l'axe $[111]$ $l_1 > l_2 + l_3$

Par conséquent, nous obtenons :

$$g(\lambda_c, \omega) d\omega = \begin{cases} C_{GR} W_{\lambda_c} S(w) dw & \text{si } w < w_4 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (8.17)$$

avec W_{λ_c} un facteur de poids lié aux symétries de la maille λ_c ; C_{GR} est un nombre arbitraire constant sur toute la zone de Brillouin.

Au final, la densité d'états est évaluée par une somme sur l'ensemble des points du maillage (8.18) :

$$\delta_{GR}(\omega) = \sum_{\lambda_c} g(\lambda_c, \omega) \quad (8.18)$$

Le facteur C_{GR} est un facteur purement géométrique dépendant des symétries de la zone de Brillouin partielle utilisée (tableau 8.1).

1.5 Relations de dispersion

Les relations de dispersion sont la clef de voûte de l'approche numérique de calcul d'atténuation. C'est par l'intermédiaire des densités d'états à deux phonons que les relations de dispersion vont déterminer le comportement en fréquence et température des temps de vie.

Différentes relations de dispersion plus ou moins exactes ont été étudiées :

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

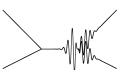
- Modèle de Debye (DEB) pour la dispersion des phonons acoustiques ; modèle linéaire, non dispersif valide en centre de zone de Brillouin
- Modèle d'ion rigide (RIM) fournissant une dispersion réaliste en centre et milieu de zone, mais non exact en bord de zone de Brillouin [108]
- Calculs *ab initio* (AB) pour la dispersion des phonons, fournissant une dispersion réaliste dans toute la zone de Brillouin [110, 118]

A ces trois relations, il faut rajouter une dernière (ABc) provenant des calculs *ab initio* et dont les fréquences des branches transverses ont été corrigées par un facteur multiplicatif 1,1 pour les ajuster au mieux aux données expérimentales. Ces courbes de dispersion sont tracées sur la figure 8.3.

L'ensemble des relations de dispersion calculées par des méthodes *ab initio* a été réalisé par J. Sjakste⁶ du Laboratoire des Solides Irradiés (Palaiseau).

Ces calculs ont été mené dans le cadre de la théorie de la perturbation de la fonctionnelle de la densité (DFPT) et réalisés avec le paquet de programmes *Quantum Espresso*. Les conditions de calculs sont celles des travaux de J. Sjakste et ses collaborateurs [118].

6. Sans ces calculs et la collaboration avec J. Sjakste, les résultats présentés dans ce chapitre n'auraient pas vu le jour.



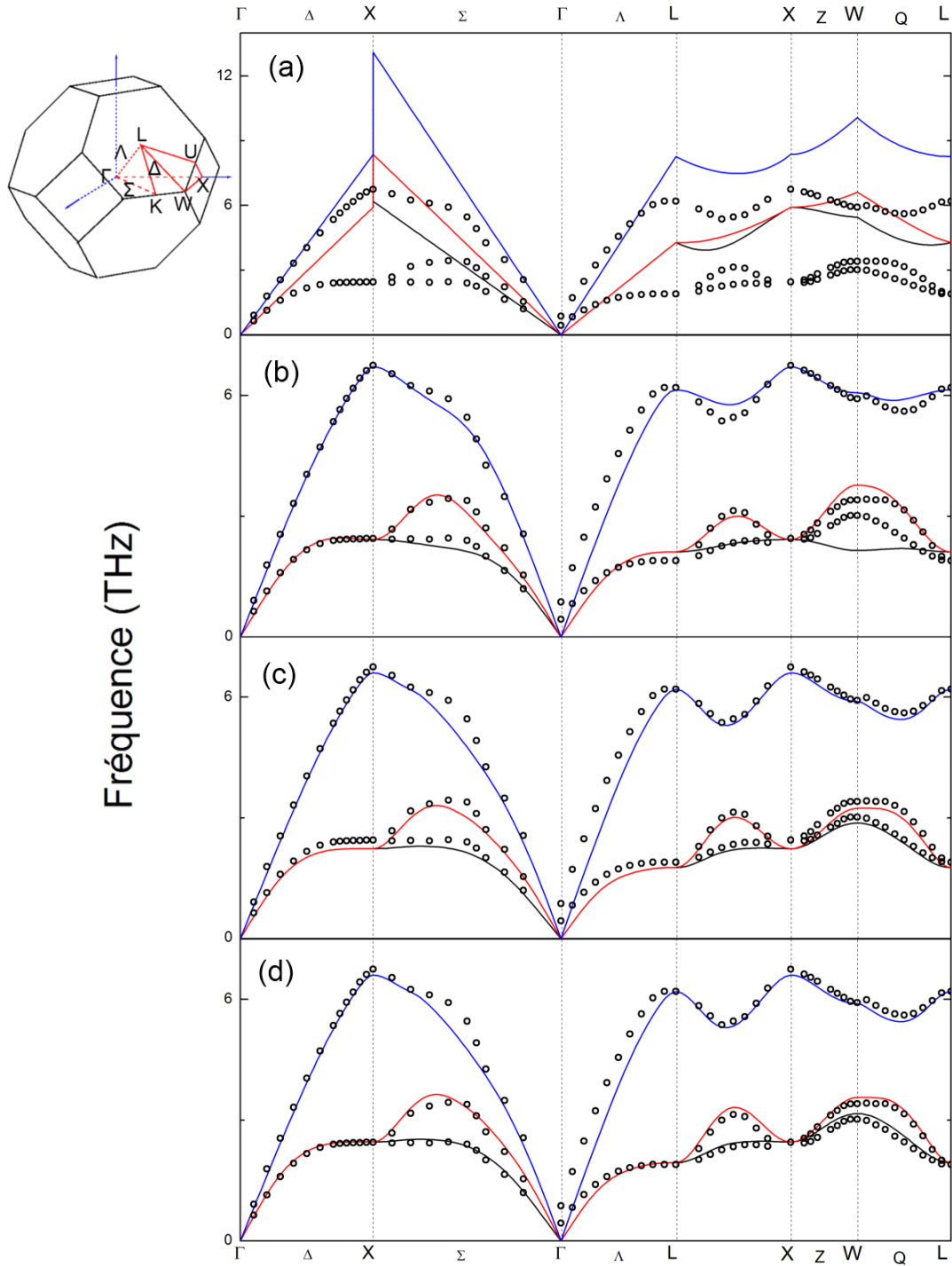


FIGURE 8.3 – Relations de dispersion calculées pour l'arséniure de gallium ($GaAs$) avec trois modèles distincts. (a) DEB : sans dispersion, modèle de Debye en tenant compte de l'anisotropie du cristal; (b) RIM : Modèle d'ion rigide; (c) AB : calculs *ab initio*; (d) ABc : calculs *ab initio* corrigés. Les points sont des données expérimentales des énergies de phonon dans le $GaAs$ par Strauch et Dorner [109].

2 Paramètres utilisés pour les calculs

Cette section est consacrée aux détails des paramètres utilisés pour les calculs. L'analyse physique des résultats en fonction des processus considérés sera faite dans la section suivante.

2.1 Fonction de substitution pour $\delta(\omega_0 + \chi\omega_1 - \omega_2)$

La méthode de Gilat et Raubenheimer est particulièrement efficace pour calculer une densité d'états à partir d'un maillage cubique. Elle permet une convergence rapide et précise dans la mesure où elle consiste en une interpolation linéaire au sein d'une maille de la grandeur calculée.

La méthode de la lorentzienne consiste à donner un poids plus important aux points du maillage satisfaisant fortement la conservation de l'énergie ; cependant elle tend à prendre en compte des points dont la conservation de l'énergie n'est pas parfaitement vérifiée. Elle permet donc de pallier les oscillations provenant d'une convergence insuffisante, résultat d'un pavage trop grossier.

La quasi totalité des calculs est menée avec la méthode de Gilat et Raubenheimer. Les rares exceptions nécessitant l'utilisation de la fonction lorentzienne viennent du faible nombre de points solutions pour certains processus de fission.

Convergence de la méthode pour le calcul de densité d'états

Dans le cas d'une dispersion linéaire et isotrope, la densité d'états peut se calculer analytiquement (voir chapitre 6).

La convergence de la procédure numérique est assurée par l'utilisation d'un maillage suffisamment fin. Le maillage le plus fin utilisé ($N = 90$) fournit un pavage cubique de la zone de 181^3 éléments. La procédure donne accès à des vecteurs d'onde q_0 allant de $\frac{2}{2N+1} = 0,011$ à 1 en unité $\frac{2\pi}{a_0}$.

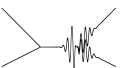
La convergence dépend aussi du vecteur d'onde q_0 et du processus étudié ; en effet, la convergence sera d'autant meilleure que la surface-densité d'états sera bien échantillonnée par le pavage cubique, ce qui sera le cas, si elle s'étend dans toute la zone de Brillouin. *A contrario*, pour certains processus tels que les processus de fission spontanée ou si le vecteur d'onde q_0 est trop petit, la surface solution sera confinée au centre de zone, et moins bien reproduite par le maillage.

Pour les processus de collision prépondérants, la convergence est largement atteinte pour des pavages de paramètre $N = 90^7$ (figure 8.4 a.).

La convergence est aussi assurée pour l'ensemble des vecteurs d'onde q_0 accessibles pour les processus de collision.

Concernant la convergence des processus de fission, elle est assurée pour $N = 90$ sauf pour le plus petit vecteur d'onde $q_0 = \frac{4\pi}{a_0(2N+1)}$. Cependant, pour ce point l'atténuation prend des valeurs très petites devant celles des processus de collision et peut alors être négligée (figure 8.4 b.).

7. *i.e.* un maillage comprenant 181^3 points.



2 Paramètres utilisés pour les calculs

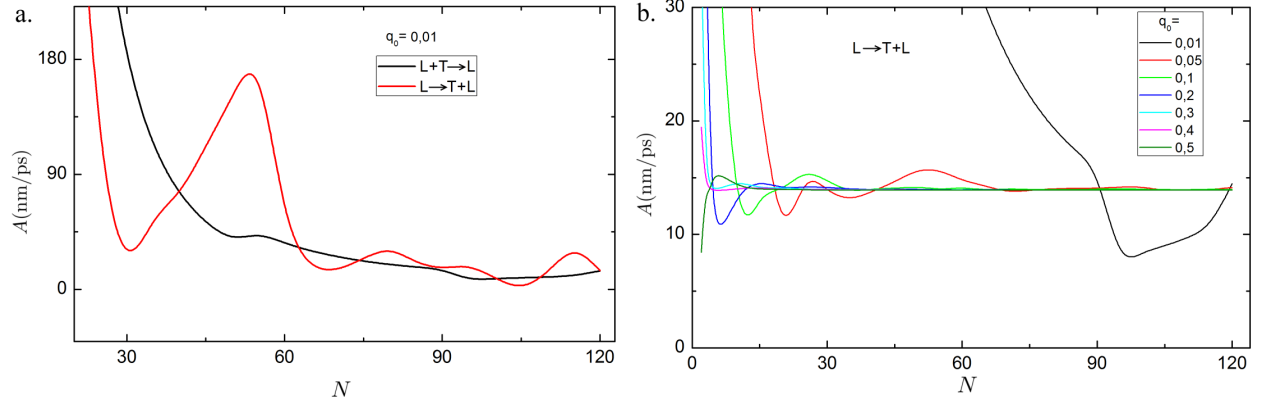


FIGURE 8.4 – Tests de convergence de la méthode de Gilat-Raubenheimer. La figure a. montre la convergence pour deux processus distincts (leurs valeurs de convergence sont décalées pour une meilleure visualisation) : fission et collision; le processus de fission dont la densité d'états est confinée en centre de zone converge beaucoup moins vite. La figure b. montre la convergence en fonction de la valeur du vecteur d'onde q_0 .

Symétrie de la zone de Brillouin

Comme indiqué précédemment, les symétries de la zone de Brillouin peuvent être prises en compte dans la procédure numérique et permettent un gain de temps de calcul conséquent. Ce découpage nécessite de pondérer chaque point du maillage en fonction de sa symétrie propre. Le tableau 8.3 indique les résultats du calcul d'une densité d'états en tenant compte ou non de la symétrie.

Direction	[001]		[011]		[111]	
Avec ou sans symétrie	oui	non	oui	non	oui	non
$q_0 = 0,05$	2,80	2,80	2,62	2,78	2,58	2,78
$q_0 = 0,2$	2,78	2,78	2,75	2,78	2,70	2,78
$q_0 = 0,4$	2,78	2,78	2,76	2,78	2,74	2,78

TABLE 8.3 – Préfacteur $A \times 10^{-2}$ de l'expression de la densité d'état $\mathfrak{S} = A\omega^2$ pour le processus $L \rightarrow T + L$ dans le cas d'une dispersion linéaire et isotrope. La valeur de référence calculée analytiquement vaut $A = 2,78 \cdot 10^{-2}$ nm/ps.

Les symétries seront donc utilisées dans le cas d'un phonon acoustique orienté suivant [001]. Pour les autres directions, le pavage cubique s'accorde moins avec le découpage de la zone de Brillouin, un calcul complet sur toute la zone de Brillouin sera utilisé au détriment des temps de calculs.

2.2 Relation de dispersion et fréquence de coupure

Le choix des paramètres concernant la relation de dispersion ainsi que la fréquence de coupure q_c est détaillé en annexe B.

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

Parmi les relations de dispersion étudiées, seuls les calculs *ab initio* corrigés (ABc) s'accordent aux valeurs expérimentales de dispersion [109] et fournissent les résultats d'atténuation les plus proches de la réalité expérimentale.

Concernant la seule variable d'ajustement de ce modèle, la fréquence de coupure la plus adaptée pour expliquer les mesures expérimentales est $q_c = 0,37 \frac{2\pi}{\text{\AA}} \text{nm}^{-1}$. Cette valeur est retenue pour l'ensemble des calculs présentés dans la suite de ce chapitre.

2.3 Contrôle des calculs

2.3.1 Densité d'états à 2 phonons calculée analytiquement

La densité d'états peut être simplement calculée dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope (chapitre 6 en page 137) et sert de fonction test pour la procédure numérique (tableau 8.4).

(a) $T_0 \rightarrow p_1 + p_2$		
Processus	A théorique (nm/ps)	A calculé (nm/ps)
$T \rightarrow T + T$	$6,93 \cdot 10^{-2}$	$\emptyset$
$T \rightarrow L + T$	0	$3,21 \cdot 10^{-5}$
$T \rightarrow L + L$	0	0
(b) $L_0 \rightarrow p_1 + p_2$		
Processus	A théorique (nm/ps)	A calculé (nm/ps)
$L \rightarrow T + T$	$9,44 \cdot 10^{-2}$	$9,44 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow T + L$	$2,78 \cdot 10^{-2}$	$2,78 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow L + T$	$2,78 \cdot 10^{-2}$	$2,78 \cdot 10^{-2}$
$L \rightarrow L + L$	$0,99 \cdot 10^{-2}$	$\emptyset$

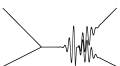
TABLE 8.4 – $\mathfrak{S} = A\omega^2$ calculé analytiquement et numériquement pour différents processus de fission dans le cadre d'une relation de dispersion linéaire et isotrope. A est calculé pour $v_T = 2,47 \text{ nm/ps}$ et $v_L = 4,73 \text{ nm/ps}$. Certains processus $\emptyset$ ne peuvent être calculés en raison de divergences apparaissant dans le gradient de fréquence dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope.

En dehors de processus conduisant à des divergences d'ordre numérique (pour les processus du type $X \rightarrow X + X$) venant de la relation de dispersion linéaire et isotrope, les grandeurs calculées numériquement sont identiques à 10^{-3} près à celles calculées analytiquement.

Ces résultats permettent de valider la procédure de calcul tant du point de vue de la convergence que de l'algorithme utilisé.

2.3.2 Formule de Simons et relation de dispersion linéaire anisotrope

L'utilisation d'une relation de dispersion linéaire et anisotrope (DEB) permettrait de retrouver la formule de Simons pour le processus de Herring (eq. 6.60).



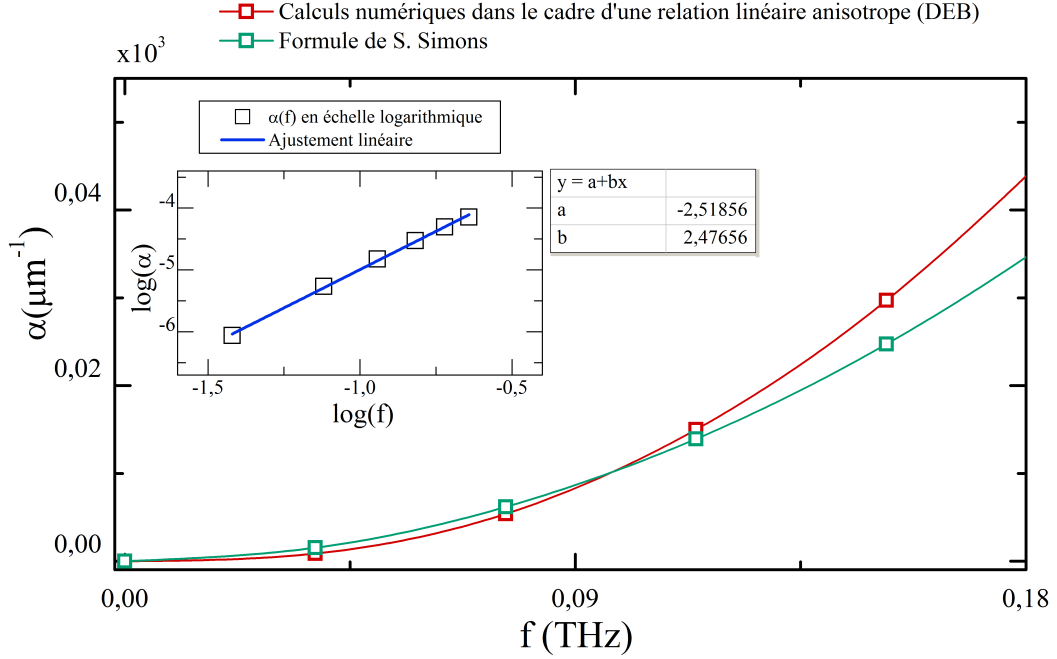


FIGURE 8.5 – Atténuation en fonction de la fréquence à 30 K calculée avec la procédure numérique dans le cas d’une relation de dispersion linéaire et la formule de Simons.

Cependant, l’obtention de cette formule avec la procédure numérique décrite dans ce manuscrit se heurte aux limites de la méthode numérique employée. Les écarts à la loi attendue sont détaillés à la figure 8.5.

L’atténuation calculée avec la méthode numérique est du même ordre de grandeur. Cependant, la loi de puissance $\alpha \propto \nu^2 T^3$ n’est pas pleinement vérifiée.

L’écart entre la procédure numérique et le calcul de Simons peut s’expliquer en partie par les limites de la procédure. Cette dernière calcule l’atténuation sur un ensemble de points situés dans la zone de Brillouin alors que les bornes d’intégrations utilisées pour établir la formule de Simons supposent un espace réciproque infini.

De plus, le calcul de Simons repose sur des développements limités et des approximations *a priori* valables uniquement à très basses fréquences et inaccessibles avec les maillages utilisés dans ces travaux.

Cet ensemble de résultats permet de valider la procédure de calcul tant du point de vue de la convergence que de l’algorithme utilisé.

3 Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement

3.1 Processus de collision

Cette section est consacrée aux processus $La + P_1 \longrightarrow P_2$. L'ensemble des figures a été calculé à partir d'un maillage cubique de paramètre $N = 90$ et avec la méthode de Gilat et Raubenheimer.

3.1.1 Densité d'états à deux phonons

La densité d'états numérique est calculée avec la relation :

$$\mathfrak{S}(\omega_0) = \sum_{\lambda_c} \delta_{GR}(\omega_0 - \Omega(\lambda_c)) \quad (8.19)$$

avec $\Omega = \omega_2(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1) - \omega_1(\mathbf{q}_1)$. L'existence d'un processus est caractérisée par une densité d'états non nulle et déterminée avec la grandeur $I.\mathfrak{S}$ (équation 8.20) :

$$I.\mathfrak{S} = \int_0^{\omega_{max}} \mathfrak{S}(\omega_0) d\omega_0 > 0 \quad (8.20)$$

Les résultats sont résumés dans le tableau 8.5.

$p_1 \backslash p_2$	Ts	Tf	La
Ts	0	11,9	13,7
Tf	0	0	14,0
La	0	0	0

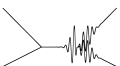
TABLE 8.5 – $I.\mathfrak{S}$ calculé avec une relation de dispersion issue de calculs *ab initio* (AB, $N = 90$) pour les différents processus de collision mettant en jeu un phonon acoustique de polarisation longitudinale suivant [100]. Les couleurs de fond de case sont un rappel des résultats du chapitre 6 sur l'existence des processus. Rouge : interdit ; vert : autorisé ; orange : interdit par la dispersion.

Les résultats obtenus au chapitre 6 sont retrouvés numériquement. Les processus interdits par la conservation de l'énergie donnent une aire de la densité d'état strictement nulle. Pour le processus $La + La \longrightarrow La$, $I.\mathfrak{S}$ est plusieurs ordres de grandeur en dessous des autres processus, et ne contribue que pour les phonons acoustiques de très faible énergie.

3.2 Processus de Herring

La partie consacrée à l'analyse de la théorie de Landau-Rumer nous a permis de mettre en évidence l'existence d'un processus autorisé grâce à l'anisotropie du milieu cristallin permettant de coupler des phonons acoustiques de basse énergie avec des phonons de haute énergie $\omega_0 \ll \omega_i$ appartenant au bain thermique.

Cette classe de processus mise en évidence par Herring se révèle être très efficace, et domine la dynamique des temps de vie à basse fréquence.



3 Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement

Le processus de Herring fait intervenir des phonons thermiques proche des axes de dégénérescence dans la zone de Brillouin (**i.e.** le long des axes [100] et [111]).

Les surfaces des lenteurs issues des branches acoustiques de polarisation transverse lente et rapide s'approchent suffisamment pour que leur écart en énergie permette le couplage avec un phonon longitudinal de basse énergie.

Ces deux surfaces se coupent le long des axes de dégénérescence. Leur intersection se fait dans deux géométries distinctes. Soit les surfaces se touchent, soit elles se coupent.

If this is not satisfied for any, the two surfaces cut only in the isolated point of degeneracy considered. It has been shown by Herring [95] that the absorption caused by this type of degeneracy is negligible compared with that due to the surface touching.

S. Simons

Les surfaces se touchent dans la direction [100] et se coupent dans la direction [111]. Simons [96] mène donc ses calculs en ne tenant compte que des points dirigés dans la direction [100].

Sous ces hypothèses [96], le comportement en fréquence et température est modélisé par une loi de puissance :

$$\alpha_{Herring} \propto \omega_0^2 T^3 \quad (8.21)$$

Nous allons montrer que la contribution des processus de Herring à l'atténuation ultrasonore est d'une plus grande efficacité que ne le prévoit la théorie et les calculs de Herring [95] et Simons [96]. Nous montrerons aussi que la loi de puissance est mise en défaut à haute fréquence.

3.2.1 Densité d'états à deux phonons pour le processus de Herring

La densité d'états telle qu'elle est définie par l'équation (8.13) permet de tracer un graphique à deux variables $\tilde{\mathfrak{S}}(\omega_0, \omega_1)$ évaluant le nombre de points de la zone de Brillouin participant au processus de Herring pour les couples de phonons (ϕ_0, ϕ_1) d'énergie (ω_0, ω_1) . C'est à dire la surface solution pour un phonon acoustique ϕ_0 fixé d'une part et l'ensemble des phonons ϕ_1 d'énergie ω_1 vérifiant les règles de conservation (6.47) d'autre part.

$$\tilde{\mathfrak{S}}(\omega_0, \omega_1) = \int_{\mathbf{q}_1} \delta_{GR}(\omega_0(\mathbf{q}_0) + \omega(\mathbf{q}_1) - \omega(\mathbf{q}_0 + \mathbf{q}_1)) \times \delta_{GR}(\omega_1 - \omega(\mathbf{q}_1)) d^3\mathbf{q} \quad (8.22)$$

La surface $\tilde{\mathfrak{S}}(\omega_0, \omega_1)$ ainsi construite pour un phonon acoustique pris dans la direction [100] est représentée en figure 8.6.

Comme attendu, le processus de Herring couple des phonons acoustiques avec des phonons thermiques d'énergie bien plus élevée.

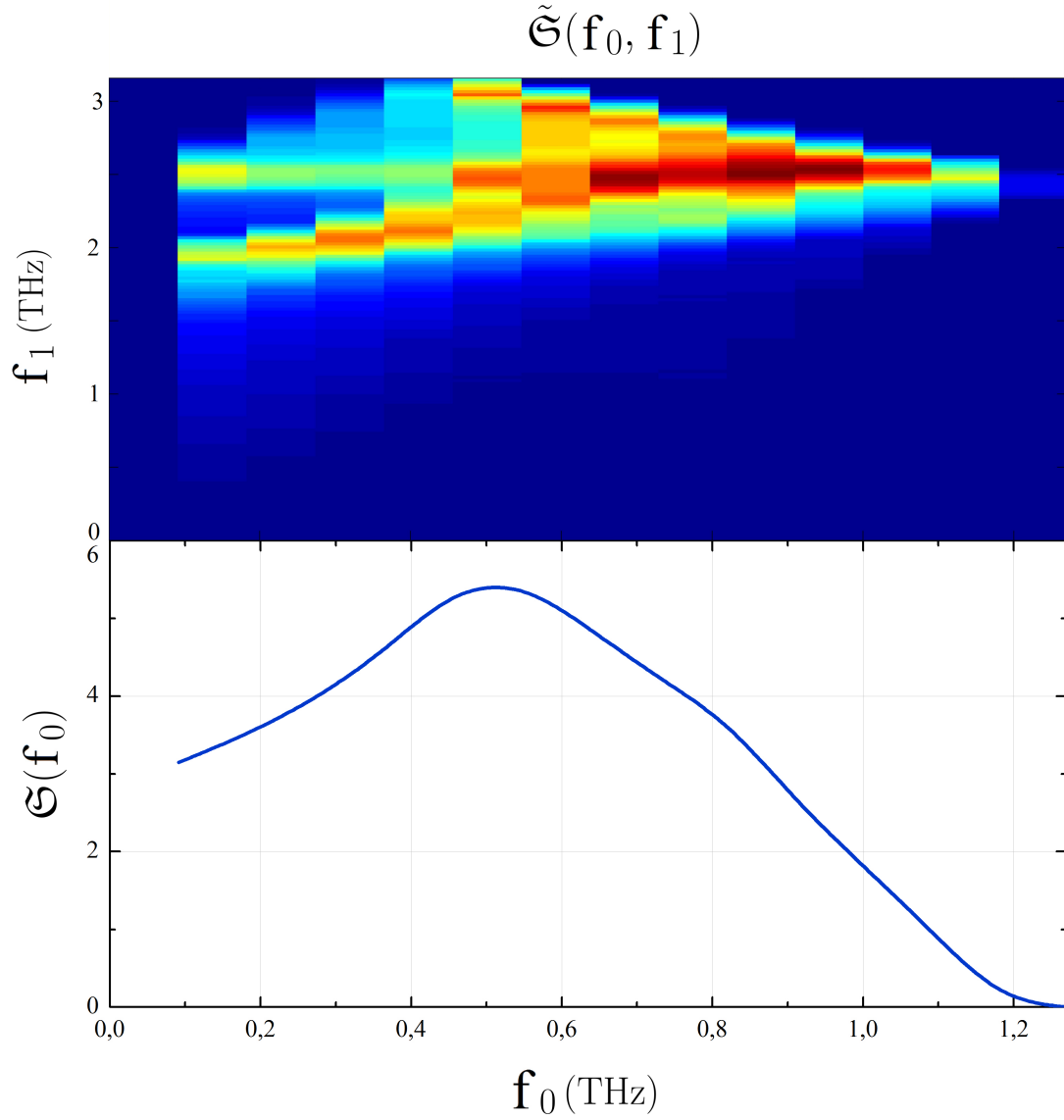
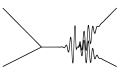


FIGURE 8.6 – Processus de Herring $La + Ts \rightarrow Tf$. $\tilde{\mathfrak{S}}(\omega_0, \omega_1)$ (en haut) et $\mathfrak{S}(\omega_0) = \int \tilde{\mathfrak{S}} d\omega_1$ (en bas) calculés dans l'arséniure de gallium avec une relation de dispersion obtenue par calcul *ab initio* (ABc) et un maillage cubique de la zone de Brillouin de paramètre $N = 90$.



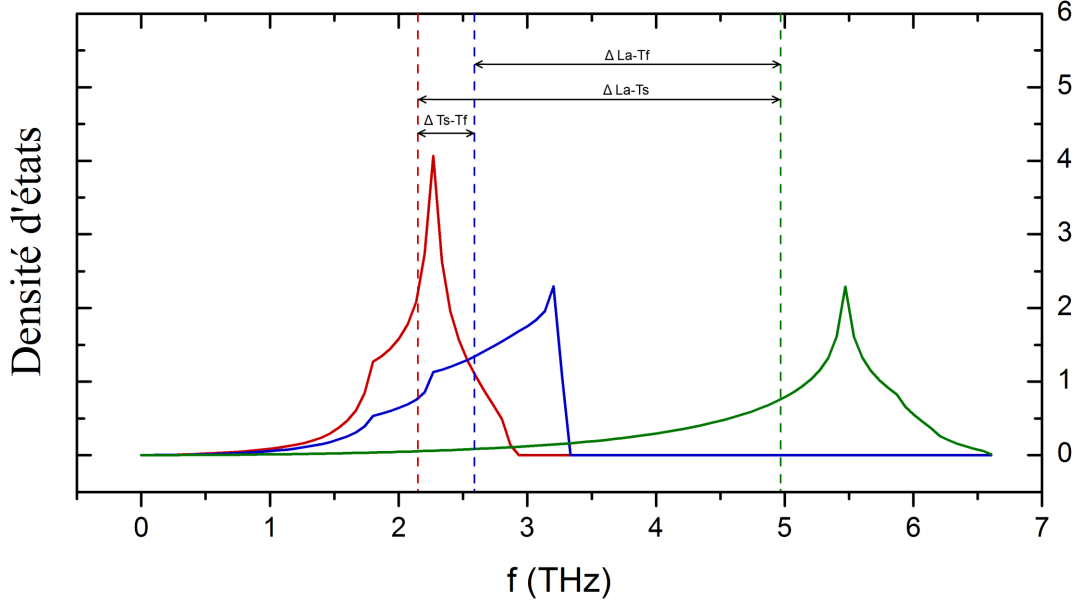


FIGURE 8.7 – Densité d'états pour chacune des branches acoustiques. Rouge : transverse lente ; bleue : transverse rapide ; verte : longitudinale. Les lignes verticales en tiret représentent les valeurs médianes de chaque courbe. Les écarts $\Delta P_x - P_y$ sont relevés dans le tableau suivant.

$\Delta T_s - T_f$	$\Delta L_a - T_f$	$\Delta L_a - T_s$
0,45 THz	2,38 THz	2,83 THz

Contribution nulle du processus de Herring aux très hautes fréquences

La densité d'états tombe à zéro pour une fréquence de phonon acoustique de 1,1 THz. En effet les écarts inter-branches sont bornés ; par conséquent il est impossible pour des phonons acoustiques de plus haute énergie d'interagir à la fois avec des phonons thermiques par le processus de Herring et de satisfaire la conservation de l'énergie.

Énergie acoustique résonnante pour le processus de Herring

Pour une fréquence acoustique de 0,45 THz ($q = 0,055(\frac{2\pi}{a})\text{m}^{-1}$), la densité d'états passe par un maximum. Cette fréquence est très sensible à la forme de la relation de dispersion et est liée aux fréquences des pics observés dans la densité d'états classique (Figure 8.7). En effet pour les branches transverses lentes et rapides, l'écart entre les fréquences médianes vaut aussi 0,45 THz.

Grande contribution dès les basses fréquences

Contrairement aux autres types de processus, le processus de Herring possède une densité d'états à deux phonons non nulle pour une fréquence acoustique tendant vers zéro. Ce résultat vient de la dégénérescence des branches transverses lentes et rapides

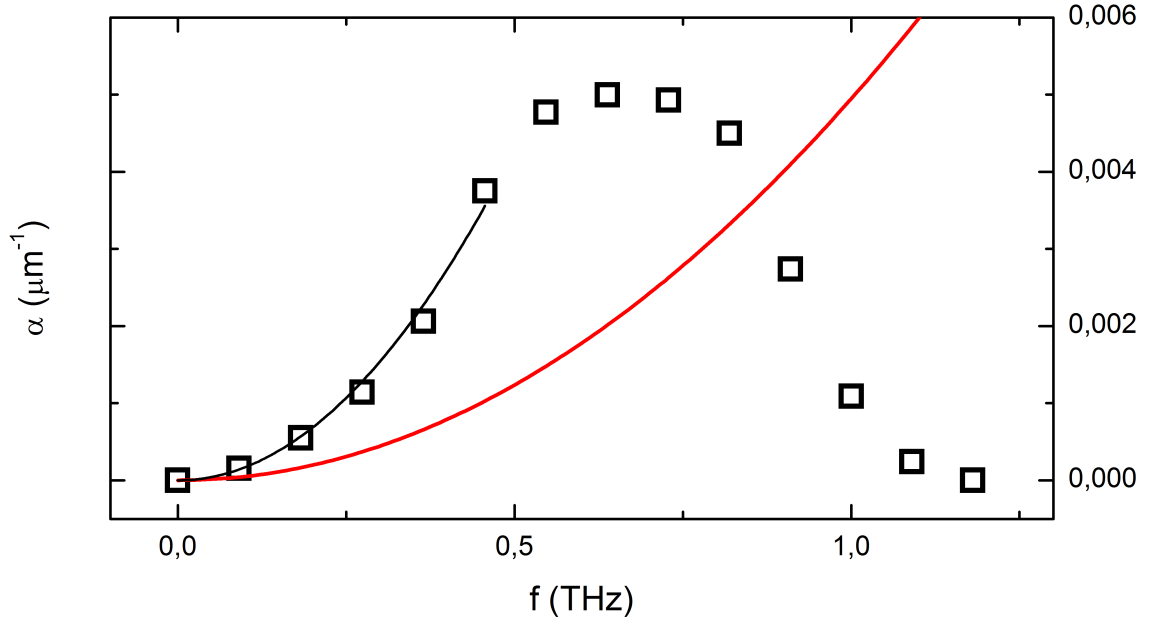


FIGURE 8.8 – Contribution du processus de Herring à l’atténuation dans le cadre de la théorie de Landau-Rumer à 50 K pour une relation de dispersion réaliste (ABc) de l’arséniure de gallium. La courbe en rouge représente l’atténuation théorique calculée par Simons en 1956 [96].

suivant certaines directions du cristal et explique la grande efficacité du processus de Herring [96].

3.2.2 Atténuation pour le processus de Herring

La figure 8.8 représente la contribution du processus de Herring à l’atténuation (équation (8.7)) à $T = 50$ K.

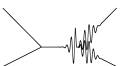
Simons en 1956 a calculé analytiquement l’expression de l’atténuation pour le processus de Herring. Sous l’hypothèse d’un vecteur d’onde acoustique petit, l’ensemble des points solution de la zone de Brillouin satisfaisant les lois de conservation est proche des axes de dégénérescence pour les phonons transverses. Il est alors possible de faire un développement analytique de la surface densité d’états et des coefficients de couplage sous l’hypothèse des grandes longueurs d’onde aux alentours de ces axes.

Pour un cristal d’arséniure de gallium, α a pour expression :

$$\alpha(\mu\text{m}^{-1}) = 3,959 \cdot 10^{-8} f^2 T^3 \quad (8.23)$$

Cette expression est comparée à l’atténuation calculée en tenant compte d’une dispersion réaliste (ABc) à la figure 8.8. Jusqu’à 0,4 THz, l’atténuation suit une loi en puissance de la fréquence ($\alpha \propto \omega^2$).

A $T = 50$ K, le pré-facteur est beaucoup plus important comparé à ce que prévoit la théorie de Simons. Cette divergence s’explique par la richesse des relations de dispersion réalistes relativement aux points de la zone de Brillouin satisfaisant les relations de



3 Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement

Sans dispersion (Simons) ^a	$3,96 \cdot 10^{-8}$
Avec dispersion (ABc)	$13,6 \cdot 10^{-8}$

a. Calculs ne tenant compte que de l'anisotropie cristalline

TABLE 8.6 – Pré-facteur A pour $T = 50$ K de la loi de puissance pour l'atténuation $\alpha = A\nu^3 T^2$ pour différents modèles de dispersion.

conservation en énergie et vecteur d'onde.

La figure 8.9 représente une coupe de la zone de Brillouin suivant le plan $q_z = 0,32(\frac{2\pi}{a_0})\text{m}^{-1}$; les zones sombres correspondent aux points du maillage dont le vecteur d'onde et l'énergie satisfont les relations de conservation (équation (6.47)).

Les deux relations de dispersion mènent donc à des densités d'états très différentes pour des phonons de haute fréquence (0,6 THz). Les solutions s'étendent dans toute la zone de Brillouin dans le cas d'une relation de dispersion réaliste (ABc), expliquant la plus grande efficacité de ce processus dans ce modèle de dispersion par rapport à une dispersion linéaire.

La surface densité d'états calculée dans le cadre d'une relation de dispersion linéaire et anisotrope présente un grand nombre de solutions proches des axes [111]. Ces dernières ne sont pas prises en compte dans la théorie de Herring [95]. A basse fréquence, il est légitime de négliger ces points. Cependant à plus haute fréquence, ils conduisent à une atténuation bien plus forte ainsi qu'à une déviation de la loi de puissance $\alpha = A\omega^2 T^3$.

3.3 Autres processus de collision : $La + Tf \longrightarrow La$ et $La + Ts \longrightarrow La$

Les conclusions issues de l'étude du processus de Herring sont aussi valables pour les autres processus de collision mettant en jeu un phonon acoustique polarisé longitudinalement.

La différence majeure réside dans la fréquence de résonance. En effet, les écarts en énergie des branches transverses lentes et rapides sont bien plus petits que les écarts entre la branche longitudinale et les branches transverses. Il en résulte pour ces processus que les densités d'états vont présenter un maximum à beaucoup plus haute fréquence comparé au processus de Herring (figure 8.10).

3.4 Les processus de fission : $La \longrightarrow X + Y$

Les processus de fission dans le cas d'une relation de dispersion réaliste donnent une contribution à l'atténuation déviant peu du cas linéaire. L'ensemble des phonons mis en jeu sont de plus faible énergie comparée à celle du phonon acoustique; tout se passe donc en centre de zone de Brillouin, où la relation de dispersion est encore linéaire. La coupure q_c n'intervient pas dans le calcul des processus de fission pour la même raison; elle est trop haute en fréquence pour intervenir dans les processus.

Les processus de fission suivent majoritairement une loi similaire à la loi basse fréquence usuellement utilisée $\alpha = A\omega^4$ (tableau 8.7).

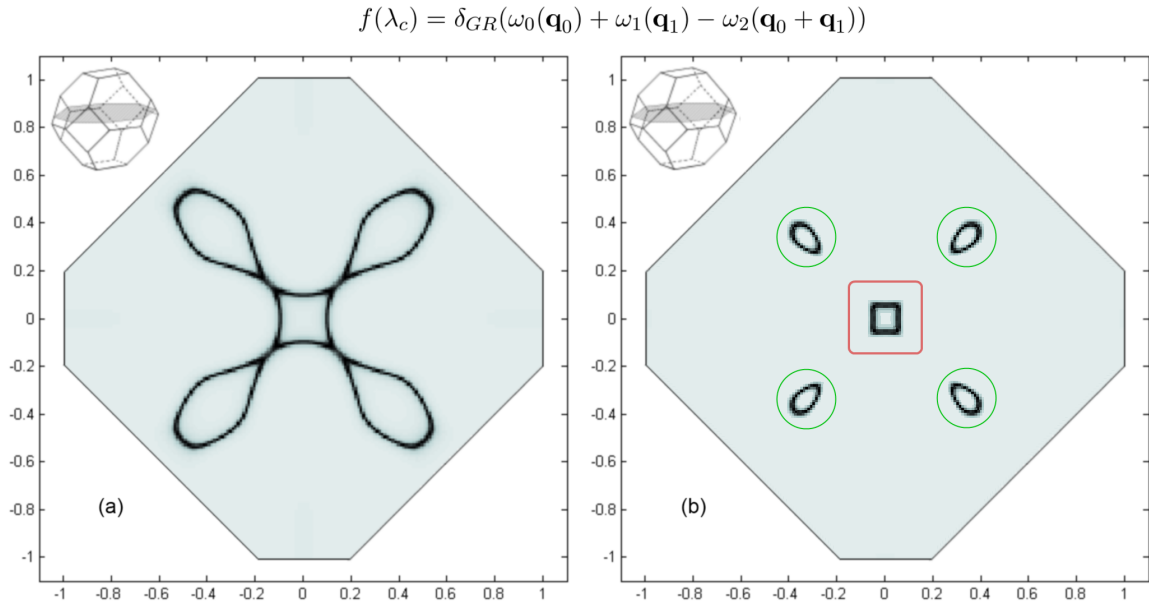
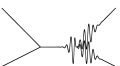


FIGURE 8.9 – Coupe de la zone de Brillouin suivant le plan $q_{1z} = 0,32 \frac{2\pi}{a_0} \text{ nm}^{-1}$ dans l'arséniure de gallium ; (a) et (b) représentent les points solutions de la conservation du vecteur d'onde et de l'énergie pour le processus de Herring et un vecteur acoustique orienté suivant $[100]$ et de fréquence $\omega_0 = 0,6 \text{ THz}$. (a) pour une relation de dispersion réaliste (AB) ; (b) pour une relation de dispersion linéaire (DEB). Les points à l'intérieur du cadre rouge sont les solutions prises en compte dans le développement analytique du calcul d'atténuation mené par Simons en ne tenant compte que de l'anisotropie ; ils correspondent aux points proches de l'axe de dégénérescence $[100]$. Les quatre zones encadrées en vert correspondent aux points de dégénérescence proches de l'axe $[111]$; ils ne sont pas pris en compte dans les calculs de Simons, le coefficient de couplage étant nul suivant l'axe $[111]$.



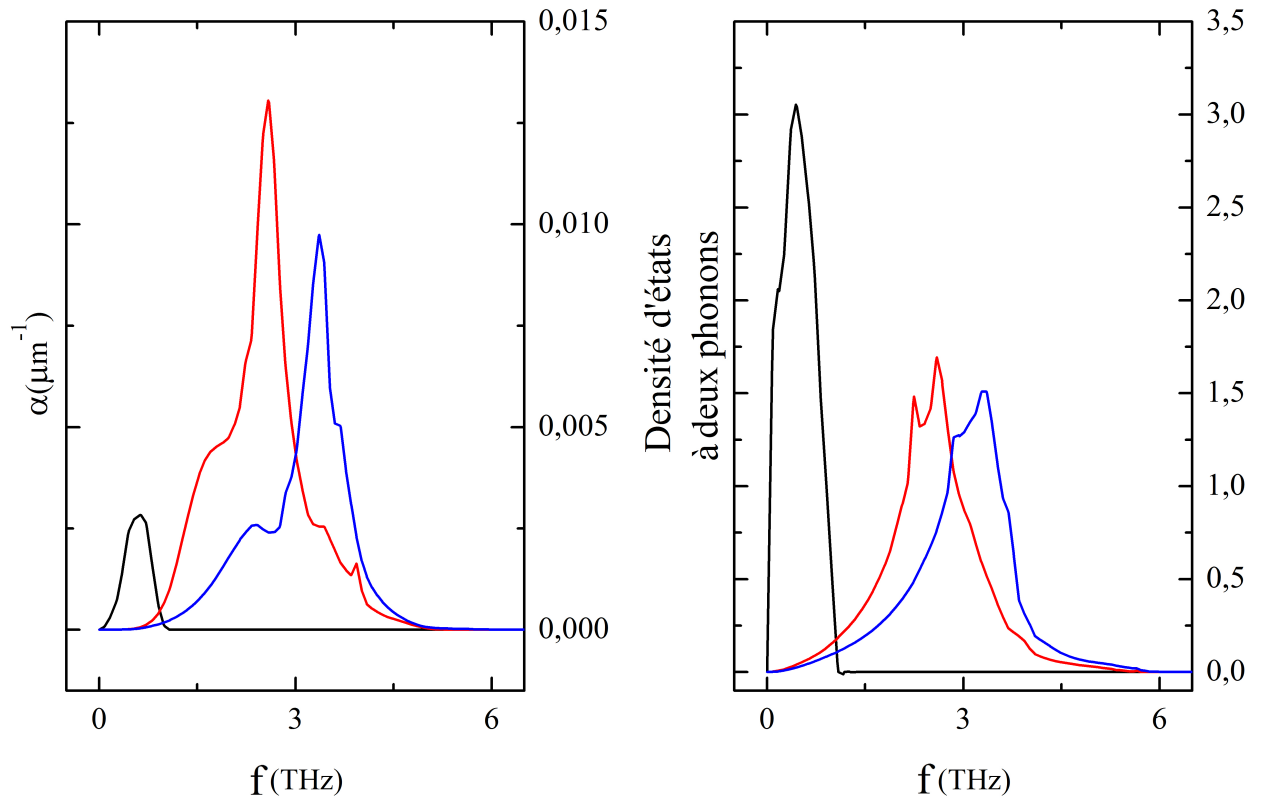


FIGURE 8.10 – Densité d'états à deux phonons et coefficient d'atténuation α pour l'ensemble des trois processus de collision autorisés pour un phonon acoustique polarisé longitudinalement. En noir : processus de Herring $La + Ts \rightarrow Tf$; en rouge : $La + Tf \rightarrow La$; en bleu : $La + Ts \rightarrow La$. Calculs réalisés pour l'arséniure de gallium, avec une relation de dispersion réaliste (AB).

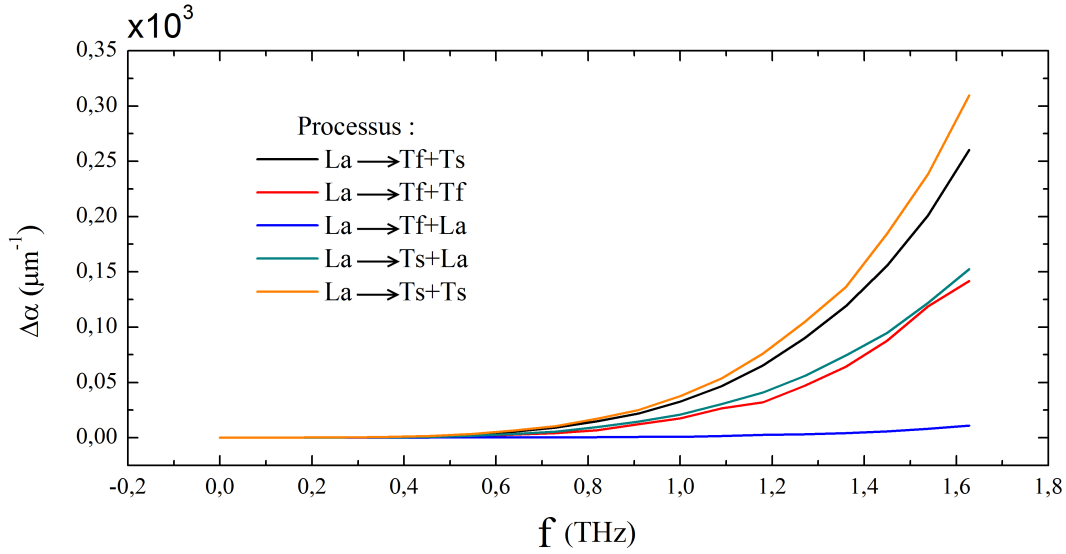


FIGURE 8.11 – Atténuation pour les processus de fission en fonction de la fréquence du phonon acoustique initial. Calcul réalisé avec un maillage de paramètre $N = 90$, avec une relation de dispersion réaliste (ABc) à $T = 50$ K et $q_c = 0,37 \frac{2\pi}{a_0} \text{nm}^{-1}$.

	$A\omega^4$	$A\omega^\alpha$	
	A	A	α
$La \rightarrow Ts + Ts$	$3,87 \cdot 10^{-5}$	$3,91 \cdot 10^{-5}$	4,14
$La \rightarrow Tf + Ts$	$3,34 \cdot 10^{-5}$	$3,37 \cdot 10^{-5}$	4,09
$La \rightarrow Tf + Tf$	$3,48 \cdot 10^{-5}$	$3,53 \cdot 10^{-5}$	4,18
$La \rightarrow Tf + La$	$8,18 \cdot 10^{-7}$	$9,55 \cdot 10^{-7}$	4,94
$La \rightarrow Ts + La$	$2,10 \cdot 10^{-5}$	$2,10 \cdot 10^{-5}$	4,08

TABLE 8.7 – Loi de puissance des processus de fission du type $La \rightarrow X + Y$. Conditions de calcul : voir figure 8.11.

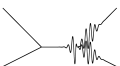
3.5 Contribution totale à l'atténuation et accords expérimentaux pour l'arséniure de gallium

Les courbes d'atténuation totale pour l'arséniure de gallium sont données en figure 8.12.

La seule variable d'ajustement de ce modèle est la fréquence de coupure $q_c = 0,37 \frac{2\pi}{a_0}$ déterminée à partir des mesures d'atténuation à $T = 50$ K. Cette unique variable d'ajustement⁸ permet de rendre compte de l'ensemble des résultats d'atténuation en fréquence et ce quelle que soit la température.

La prise en compte de l'ensemble des processus permet de reproduire et d'expliquer

8. Cette coupure est basée sur le fait que les coefficients de couplage doivent suivre une dynamique proche des relations de dispersion.



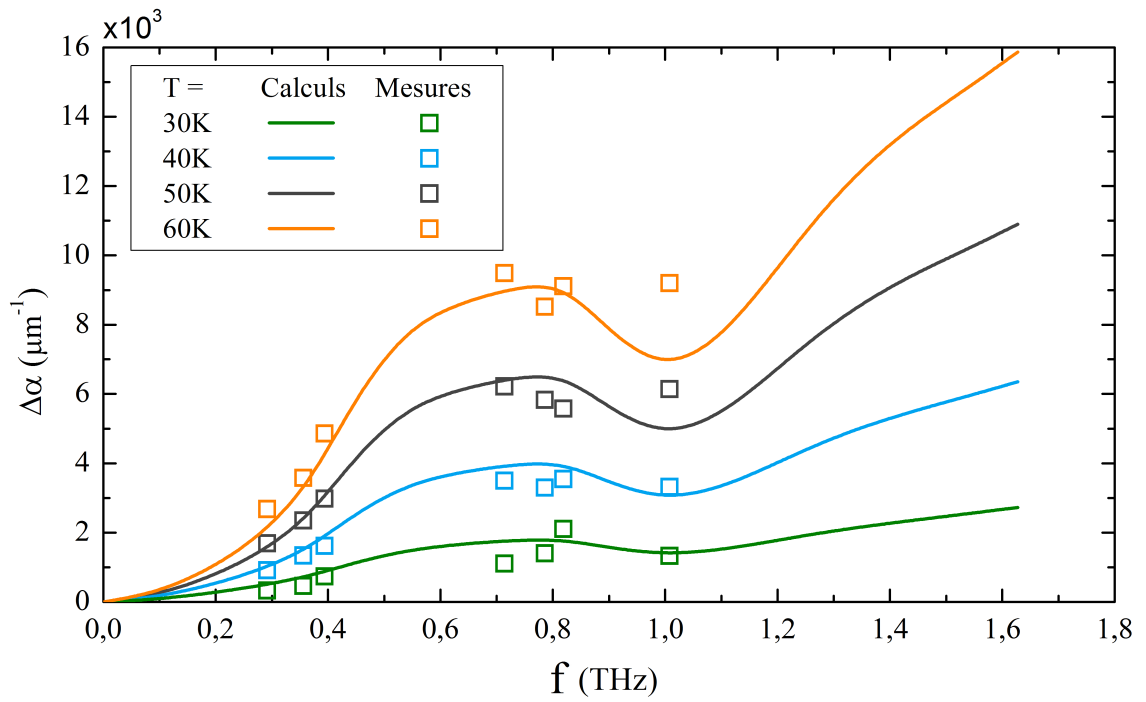


FIGURE 8.12 – Variation relative de l'atténuation dans l'arséniure de gallium en fonction de la fréquence. Les courbes sont calculées à partir d'une relation de dispersion réaliste (ABc) sur un maillage de paramètre $N = 90$ et une fréquence de coupure $q_c = 0,37 \frac{2\pi}{a_0}$. Les carrés sont issus de mesures réalisées au moyen de super-réseaux.

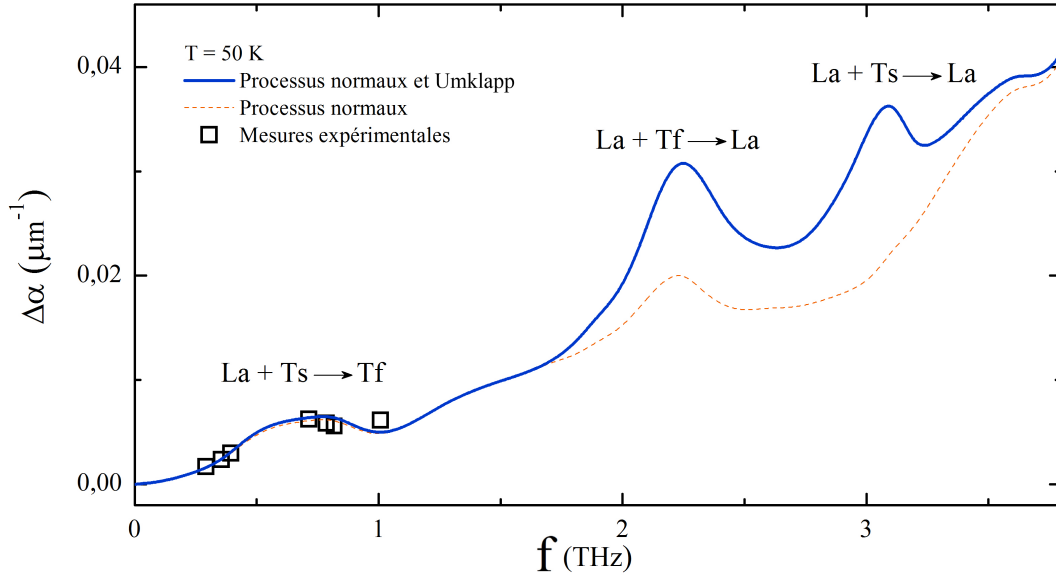


FIGURE 8.13 – Variation de l'atténuation totale dans l'arséniure de gallium calculée avec une relation de dispersion réaliste (ABc) et un maillage de paramètre $N = 90$. Au delà du terahertz, le comportement de l'atténuation n'est pas monotone et présente des accidents provenant de l'évolution des processus de collision dominant entre 2 THz et 3 THz. Ces processus ont un comportement similaire au processus de Herring mais à plus haute fréquence.

le plateau d'atténuation mesuré. Le processus de Herring très efficace à basse fréquence perd rapidement en efficacité et décroît au delà de 0,7 THz ; tandis que la contribution des deux autres processus de collision $La + Ts \rightarrow La$ et $La + Tf \rightarrow La$ devient du même ordre de grandeur que le processus de Herring vers 0,8 THz. Le croisement de régimes produit donc un accident dans la courbe d'atténuation totale entre 0,7 THz et 1,0 THz, menant au plateau observé expérimentalement.

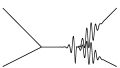
Les deux autres processus de collision $La + Ts \rightarrow La$ et $La + Tf \rightarrow La$ suivent le même comportement que le processus de Herring. L'atténuation devrait donc avoir le même comportement aux alentours des fréquences résonantes pour ces processus, à ceci près que les processus devenant prépondérants sont les processus de fission et prennent le relais entre 2 THz et 3 THz (figure 8.13).

3.6 Dépendance en température

La dépendance en température des processus d'interaction à trois phonons (figure 8.14) suit un schéma tout à fait classique.

Les processus de collision nécessitent la présence de phonons thermiques et ne contribuent donc pas à l'absorption à très basse température à l'inverse des processus de fission spontanée.

La figure 8.14 représente l'atténuation en fonction de la température pour différentes fréquences. Pour le processus de Herring, les flèches indiquent le sens de variation en



fonction de la fréquence.

Concernant les processus de collision présentés en figure 8.14 (Herring et $La + Ts \rightarrow La$), l'atténuation devient nulle avec la température. Ainsi une baisse de la température entraîne une baisse du nombre de phonons disponibles pour interagir avec les phonons acoustiques, par conséquent la contribution à l'atténuation pour ces processus devient nulle.

Un changement de régime conduisant à une dépendance linéaire en température est observé vers 30 K. C'est la température à laquelle les niveaux d'énergie des phonons correspondant à la surface densité d'états sont peuplés. Au delà, le peuplement de ces niveaux d'énergie se fait linéairement avec la température tandis qu'en dessous de cette température, les niveaux d'énergie commencent tout juste à se peupler.

L'existence des processus de fission ne nécessite pas la présence de phonons thermiques dans le système. Ces derniers ont par conséquent une contribution non nulle à basse température et à température nulle.

La figure 8.15 montre les rapports relatifs des processus de Herring, de collision et de fission⁹. A basse température, les processus de fission sont largement dominants ; la température à laquelle les processus de collision commencent à dominer dépend fortement de la fréquence.

Les processus ne participent pas avec la même proportion à l'atténuation totale. La figure 8.15 montre que les processus de fission sont les plus efficaces à basse température, les processus de collision prenant le pas rapidement avec l'augmentation de la température ; la température de basculement dépend de la fréquence du phonon acoustique initial.

Quant à la compétition entre les processus de Herring et les autres processus de collision, la température n'a pas un rôle prépondérant : le paramètre essentiel est la fréquence du phonon acoustique initial. Ces processus couplant les phonons acoustiques avec des phonons thermiques de plus haute énergie, il suffit de peupler les populations de phonons en augmentant la température pour atteindre un régime de saturation pour les processus de collision. Le niveau relatif atteint à haute température est constant. Il ne dépend que de la densité d'états $\mathfrak{S}$, et donc uniquement de la fréquence du phonon acoustique et du type de processus considéré. Le basculement de la prépondérance des autres processus de collision sur le processus de Herring arrivent vers 0,9 THz ; fréquence à laquelle le plateau d'atténuation est observé expérimentalement.

3.7 Résultats à basse température et processus de diffusion isotopique

A basse température, seuls les processus de fission sont à considérer. Le bain de phonon thermique est quasiment vide, les processus de collision sont inexistantes.

Du point de vue de la procédure numérique, les processus de fission sont plus difficiles à étudier. Le phonon initial se décomposant en des phonons de plus basse énergie, ces processus nécessitent l'utilisation d'un pavage très fin pour reproduire fidèlement la surface solution de la densité d'états à deux phonons. Cette limitation tend à sous estimer la surface de la densité d'états, et par conséquent à sous estimer l'atténuation calculée par rapport à l'atténuation réelle.

9. Le processus de Herring est aussi un processus de collision.

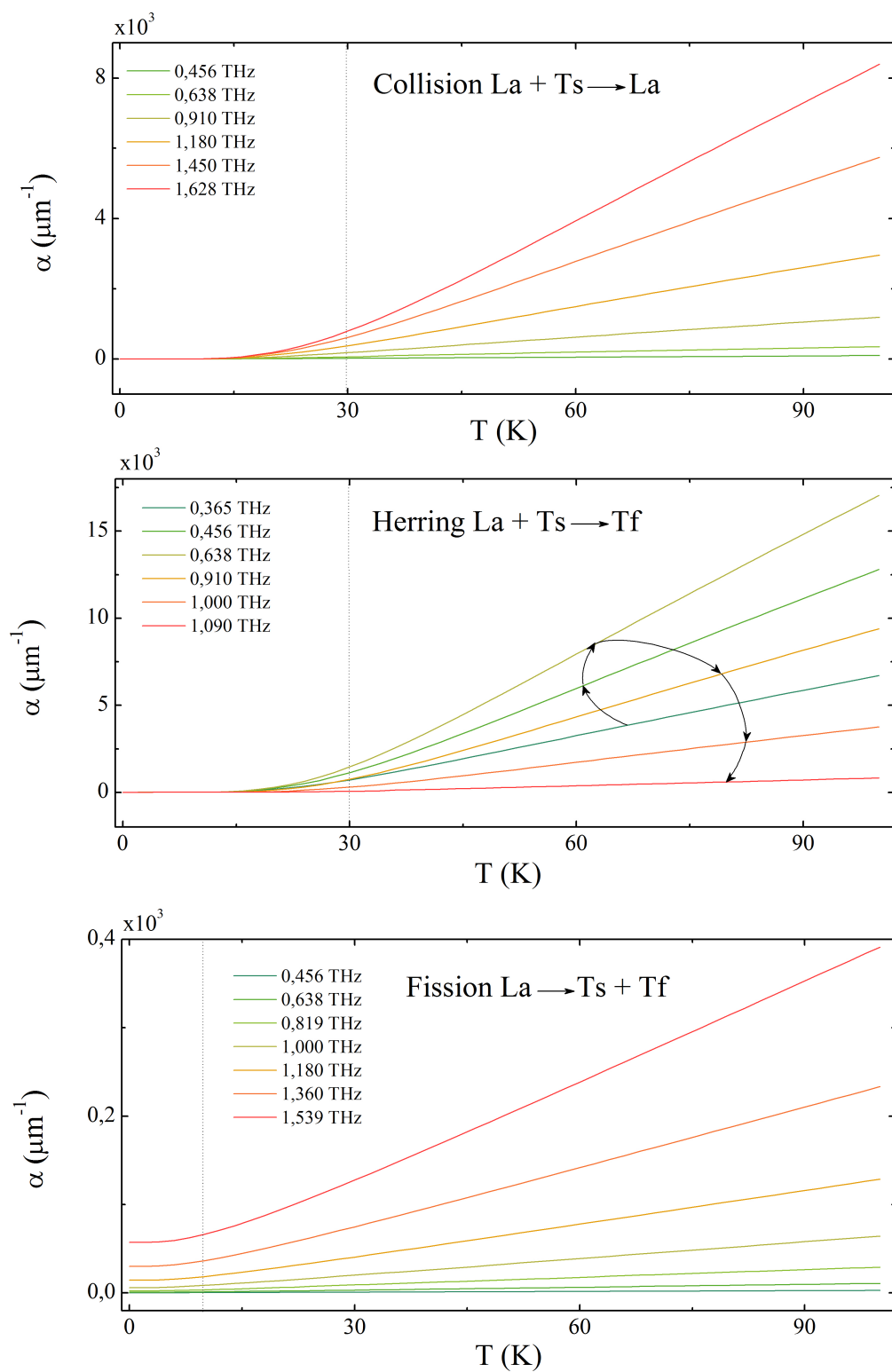
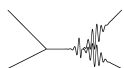


FIGURE 8.14 – Atténuation en fonction de la température et pour différentes fréquences pour les processus de Herring, $\text{La} + \text{Ts} \rightarrow \text{La}$ et $\text{La} \rightarrow \text{Ts} + \text{Tf}$.



3 Temps de vie des phonons polarisés longitudinalement

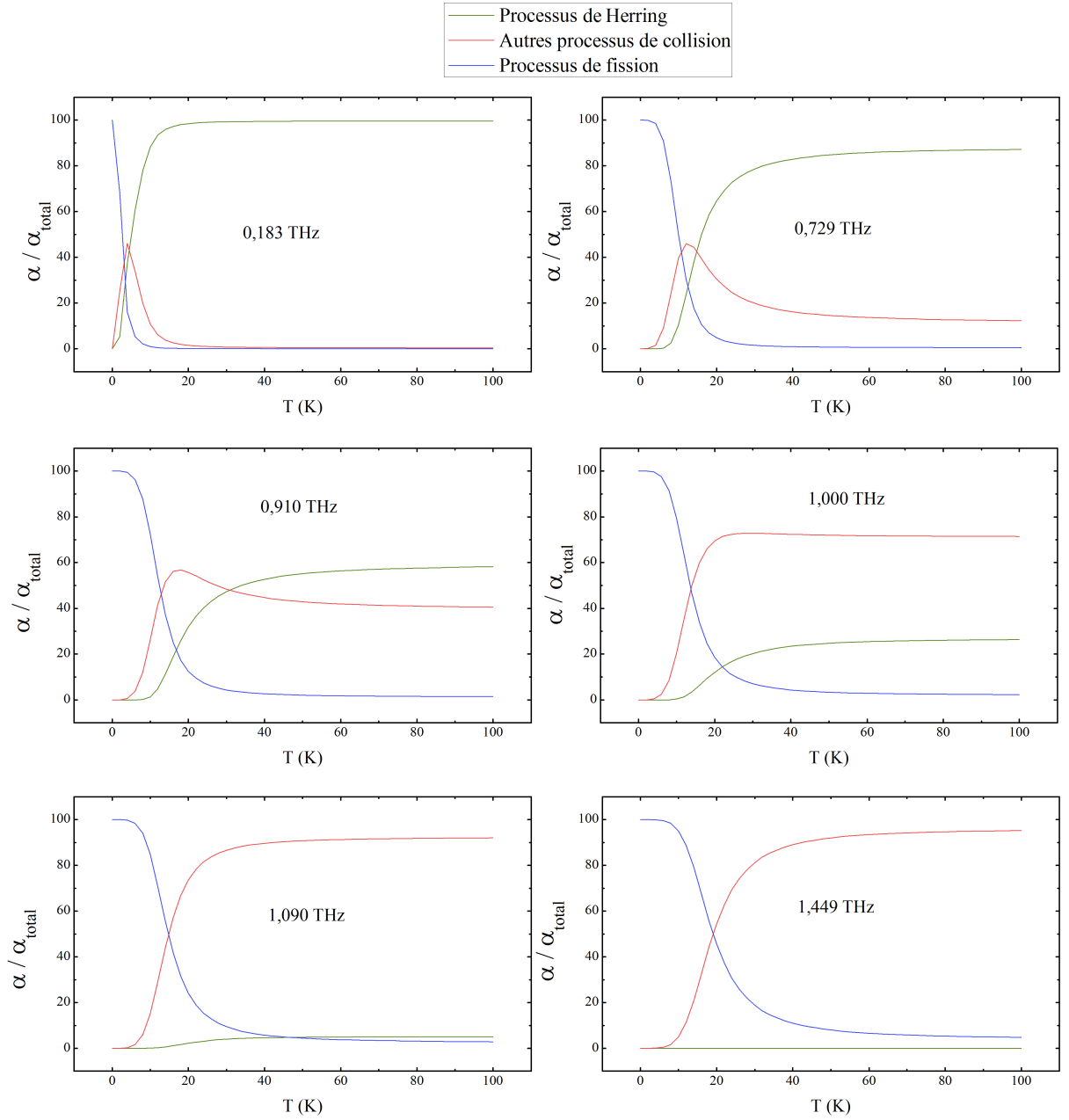


FIGURE 8.15 – Rapport de l'atténuation α sur l'atténuation totale $\alpha_{\text{tot}} = \sum_{X,Y,Z} \alpha_Z^{X,Y} + \sum_{X,Y,Z} \alpha_{X,Y}^Z$ pour un processus particulier vis à vis de l'atténuation totale.

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

Le tableau 8.8 est un rappel des travaux de Tamura [119] et de Kent [54] sur l'atténuation ultra-sonore dans un régime où seuls les processus de fission sont à considérer (basse température).

	Atténuation anharmonique $\alpha(\mu\text{m}^{-1})$	Diffusion isotopique $\alpha(\mu\text{m}^{-1})$
Tamura A[119]	$1,43 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$	$7,82 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$
Tamura B[119]	$8,17 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$	$7,82 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$
Kent[54]	$51,48 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$	$6,03 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$
ABc [100]	$3,87 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^{-1}$	/
ABc [110]	$7,46 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^{-1}$	/
ABc [111]	$3,71 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^{-1}$	/

TABLE 8.8 – Comparaison de l'atténuation calculée par Tamura et Kent avec les calculs réalisés avec une relation de dispersion réaliste (ABc) pour les trois directions de symétrie principale d'un cristal de *GaAs*.

3.8 Directions [110] et [111]

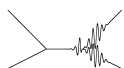
L'arséniure de gallium est un cristal faiblement anisotrope, les autres directions de symétrie du cristal présentent donc exactement le même comportement. La figure 8.16 montre l'atténuation totale relative en fonction de la fréquence ; les données expérimentales concernant la direction [100] sont placées sur les courbes comme indication d'ordre de grandeur. Un plateau est aussi observé entre 0,7 THz et 1 THz. Les conclusions données pour la direction [100] sont aussi valable pour les autres directions du cristal.

3.9 Conclusions

Le plateau surprenant observé expérimentalement à partir de 0.7 THz peut finalement s'expliquer simplement dans le cadre d'une théorie d'interaction à 3 phonons sans recours à de nouveaux mécanismes (interaction résonnante avec des niveaux électroniques d'impuretés, interaction à 4 phonons....). L'évolution de l'inverse du libre parcours moyen avec la fréquence ne suit pas une loi monotone ainsi qu'il est souvent admis dans la littérature.

L'accord expérimental est bien vérifié sur une large gamme de fréquences et de températures, validant ainsi le mécanisme de compétition entre le processus de Herring efficace jusqu'à 0,7 THz et les autres processus à trois phonons. Le processus de Herring possède une densité d'états $\mathfrak{S}$ –dans le cas d'une relation de dispersion de phonon réaliste– beaucoup plus étendue et dont la surface présente une résonance qu'il est possible de relier aux écarts de fréquence des branches acoustiques (figure 8.7).

Les dépendances usuelles en loi de puissance ne sont pas adaptées pour décrire le comportement en fréquence de l'atténuation. Quant au comportement en température, il est possible d'extraire des lois suivant le régime de température, mais elles dépendent fortement de la fréquence du phonon acoustique.



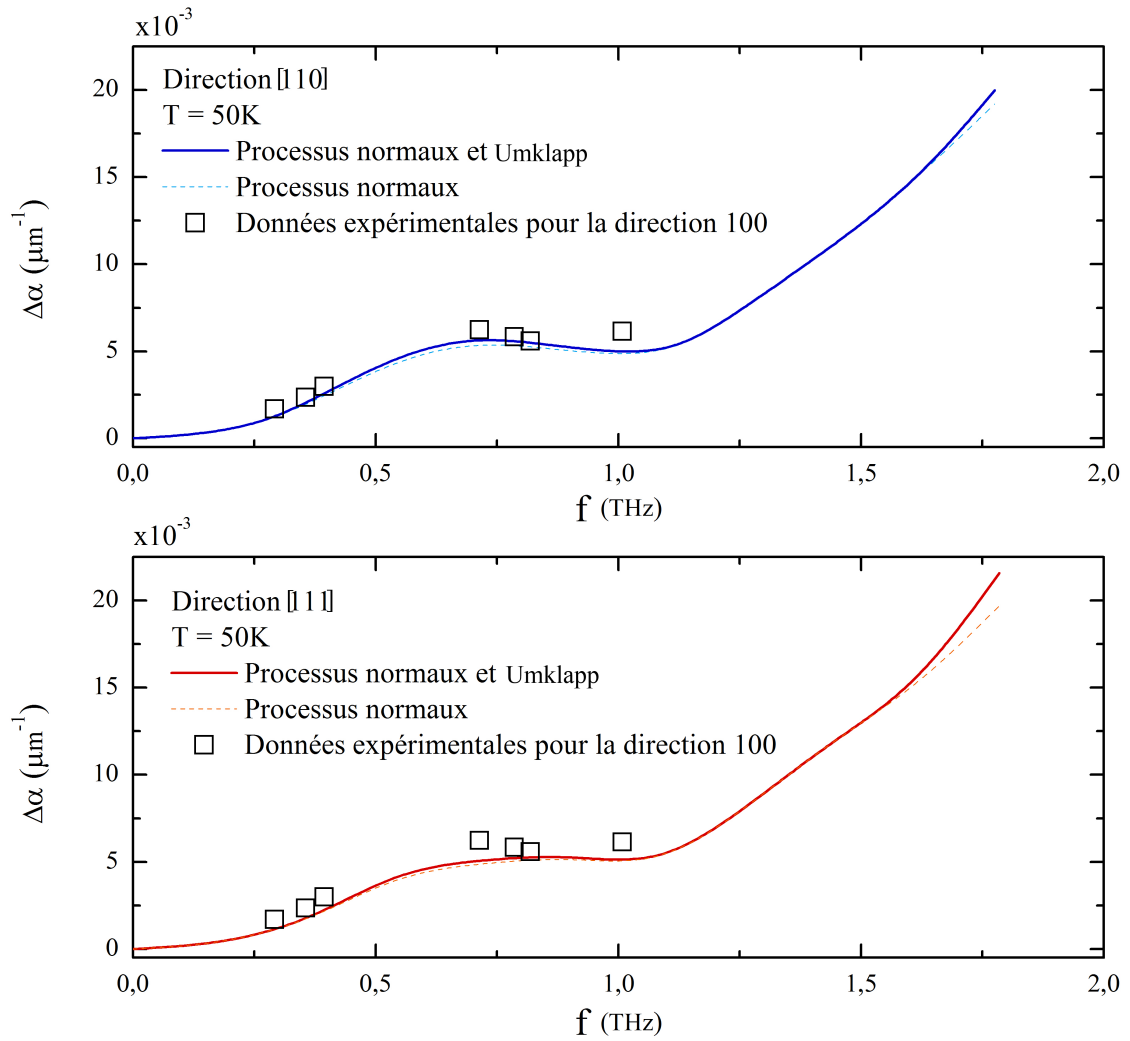


FIGURE 8.16 – e

t [111]]Atténuation relative pour les directions [110] et [111]. Le comportement en fréquence est similaire à celui des ondes longitudinales prises dans la direction [100].

4 Atténuation pour un phonon polarisé transversalement

Cette section est consacrée aux résultats de calculs de l'atténuation des phonons polarisés transversalement.

4.1 Paramètres de simulation pour l'atténuation des phonons polarisés transversalement

Il n'existe pas de données sur l'atténuation des phonons transverses dans le régime de fréquences terahertz et sub-terahertz. Par conséquent, la fréquence de coupure q_c et la relation de dispersion utilisées pour les calculs d'atténuation pour les phonons polarisés transversalement sont identiques à ceux déterminés pour les phonons longitudinaux.

4.2 Processus de collisions $T_{s,f} + X \longrightarrow Y$

Les calculs d'atténuation pour les processus $Ts + X \longrightarrow Y$ et $Tf + X \longrightarrow Y$ sont indiqués en figures 8.17 et 8.18 pour les directions de haute symétrie d'un cristal cubique et une température $T = 50$ K.

Les résultats obtenus sont compatibles avec les règles de sélection résumées dans les tableaux 6.3 (p. 135).

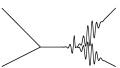
Les résultats des calculs d'atténuation concernant les phonons acoustiques de polarisation transverse ne présentent pas de surprises. Les processus interdits donnent soit une contribution nulle, soit une contribution de plusieurs ordres de grandeur en dessous des processus autorisés.

Parmi les processus autorisés, le processus $Ts + Ts \longrightarrow Ts$ (figure 8.17) donne une contribution intermédiaire entre les processus interdits et autorisés et, qui plus est, aux très basses fréquences¹⁰.

Le même comportement devrait être observé pour le processus $Tf + Tf \longrightarrow Tf$, mais ce dernier possède dans la direction [111] une atténuation du même ordre de grandeur que les processus autorisés et cela jusqu'en bord de zone de Brillouin (figure 8.18). Dans les directions [100] et [110], la contribution à l'atténuation est strictement nulle. L'analyse faite au chapitre 6 visant à déterminer les processus interdits et autorisés prend difficilement en compte les effets de l'anisotropie. La direction [111] pour le processus $Tf + Tf \longrightarrow Tf$ présente une anisotropie suffisante pour permettre à la densité d'états à deux phonons d'exister et d'être non négligeable.

Concernant la polarisation transverse rapide, le processus $Tf + Ts \longrightarrow Ts$ est interdit dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et anisotrope, mais les effets de la dispersion permettent à ce processus de contribuer légèrement aux abords des axes de dégénérescence.

10. Comme indiqué en page 135, ce processus ne contribue que si les effets de la dispersion sont faibles, c'est à dire au centre de zone.



4 Atténuation pour un phonon polarisé transversalement

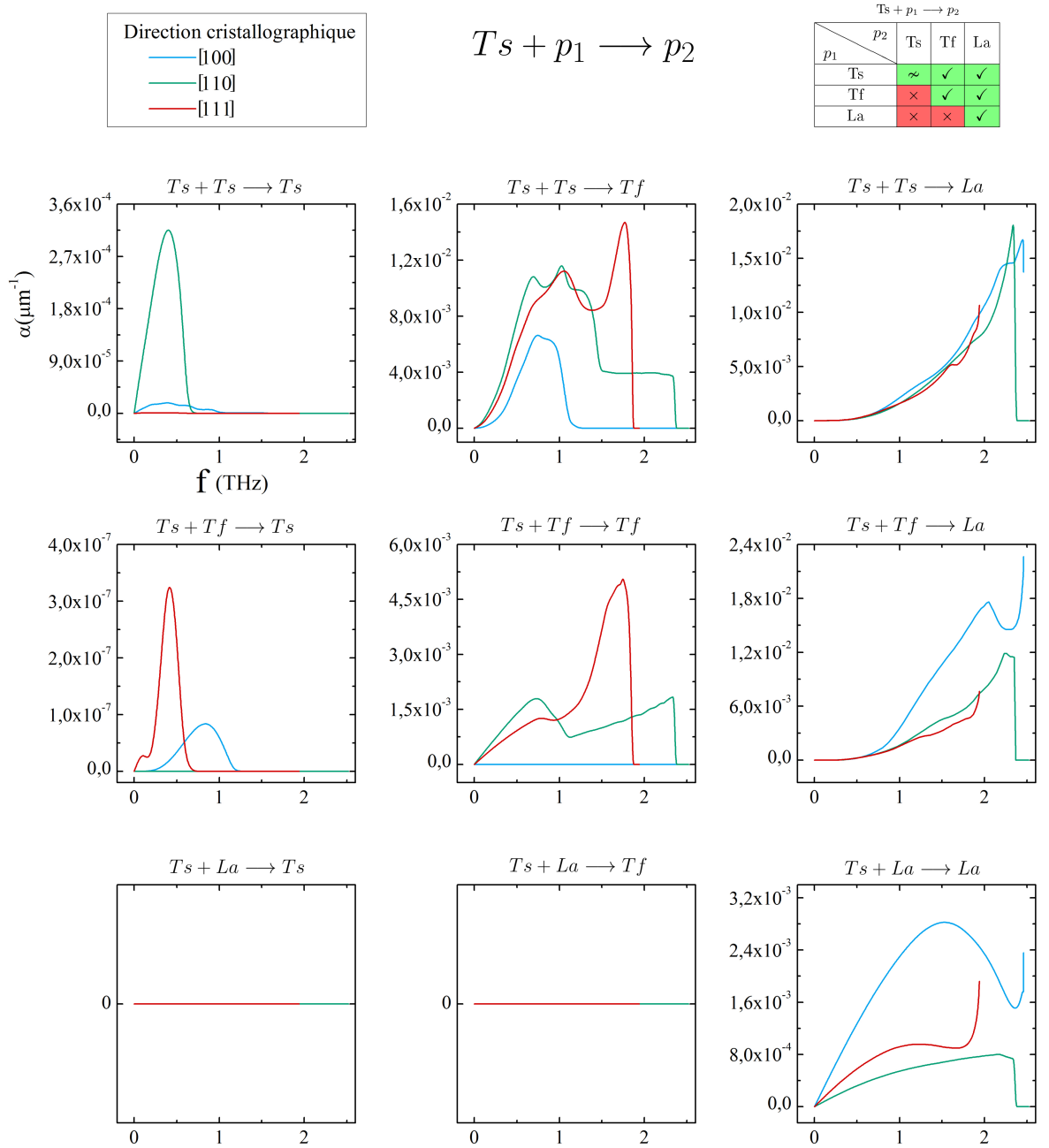


FIGURE 8.17 – Atténuation pour les processus de collision $Ts + p_1 \longrightarrow p_2$ pour une température $T = 50$ K.

CHAPITRE 8. PROCÉDURE NUMÉRIQUE

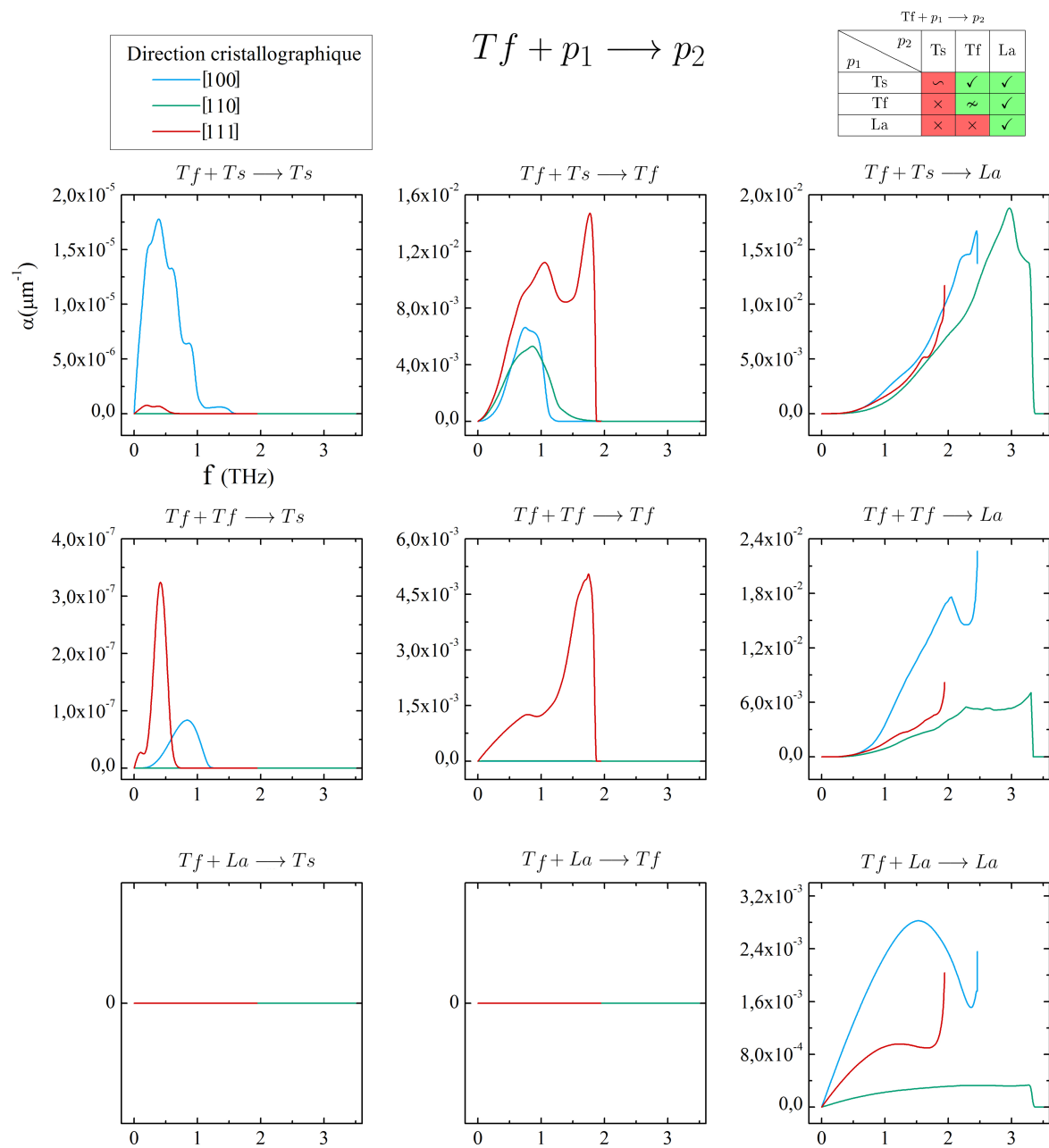
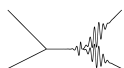


FIGURE 8.18 – Atténuation pour les processus de collision $Tf + p_1 \longrightarrow p_2$.



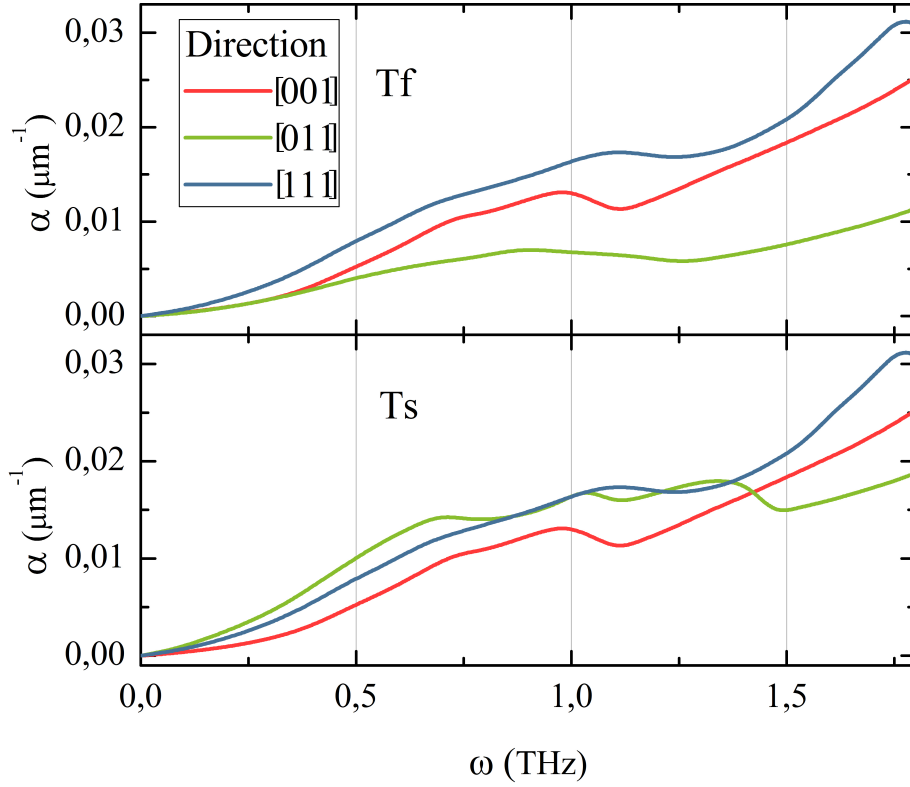


FIGURE 8.19 – Atténuation totale pour les polarisations transverses rapides (en haut) et lentes (en bas) pour les trois directions principales et pour une température de 50 K.

4.3 Processus d'Herring pour la polarisation transverse

Au sens strict, le processus décrit par Herring concerne uniquement les phonons de polarisation longitudinale : $La + Ts \rightarrow Tf$. Cependant, le raisonnement qu'il mène peut être étendu aux processus de type : $X + Ts \rightarrow Tf$. En effet, il s'agit moins de trouver un moyen de faire interagir un phonon acoustique longitudinal avec le bain thermique que de trouver un phonon de basse énergie permettant de coupler un phonon de la branche transverse lente à un autre phonon de la branche transverse rapide. De ce fait, les trois processus $X + Ts \rightarrow Tf$ ont un comportement similaire au processus d'Herring :

- grande efficacité dès les basses fréquences
- limités en fréquence par les écarts inter-branches $Ts \rightarrow Tf$

De ce fait, l'ensemble des polarisations acoustiques présentent un plateau en atténuation entre 0,7 THz et 1 THz (figure 8.19 et 8.20).

4.4 Conclusion

Les résultats concernant les polarisations transverses lentes et rapides sont largement compatibles avec les analyses menées sur la polarisation longitudinale. La différence majeure concerne les processus de fission : les branches transverses étant celles de plus basse

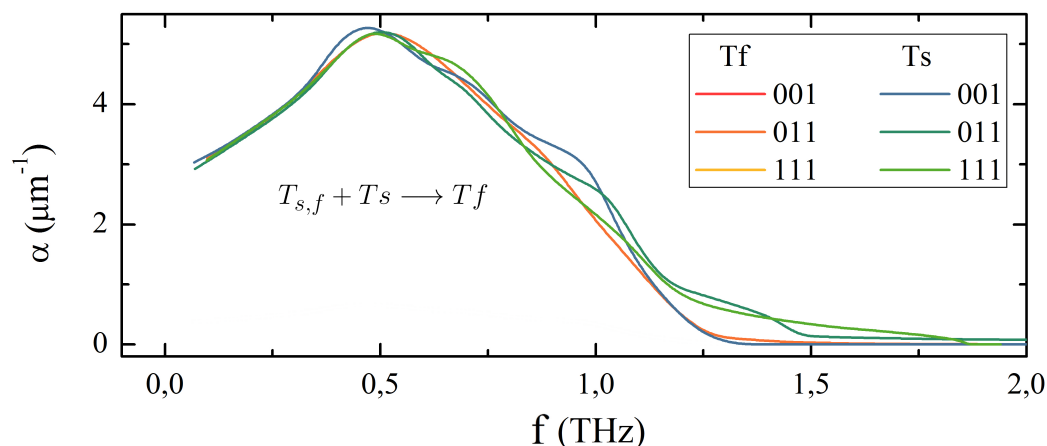


FIGURE 8.20 – Densité d'état à deux phonons pour les processus de Herring de polarisation transverse lente et rapide. Tout comme pour les phonons longitudinaux, ces processus de Herring présentent un maximum à 0,5 THz.

énergie, elles se décomposent difficilement en des phonons de plus basse énergie.

À plus haute température, une anomalie prenant la forme d'un plateau d'atténuation en fréquence est aussi présente pour les polarisations transverses. Un tel comportement sur toutes les branches acoustiques à des énergies similaires devrait se répercuter sur d'autres grandeurs dérivant des temps de vie de phonon tel que la conductivité thermique à basse température.

5 Application au cristal de silicium

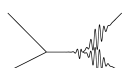
Quelques calculs concernant l'atténuation dans le silicium sont présentés dans cette partie. Ils ont pour but de montrer l'absence de plateau d'atténuation aux mêmes énergies que l'arséniure de gallium.

Les calculs présentés ici sont réalisés à partir de données issues de calculs *ab initio* [120] donnant les relations de dispersion pour un cristal de silicium.

5.1 Relation de dispersion et densité d'états du silicium

La relation de dispersion et la densité d'états pour le silicium sont données en figures 8.21 et 8.22. Le premier constat concerne les vitesses des ondes acoustiques en centre de zone. Elles sont bien plus élevées dans le silicium ($v_l = 8,13$ nm/ps) comparées à l'arséniure de gallium ($v_l = 4,72$ nm/ps). Les branches acoustiques sont donc beaucoup plus élevées en fréquence, les phénomènes observés aux abords du terahertz dans l'arséniure de gallium vont donc se produire à plus haute fréquence dans le silicium.

La figure 8.22 représente la densité d'état de chacune des branches acoustiques dans le silicium. Les écarts médians inter-branches sont reportés dans le tableau attaché à la figure 8.22.



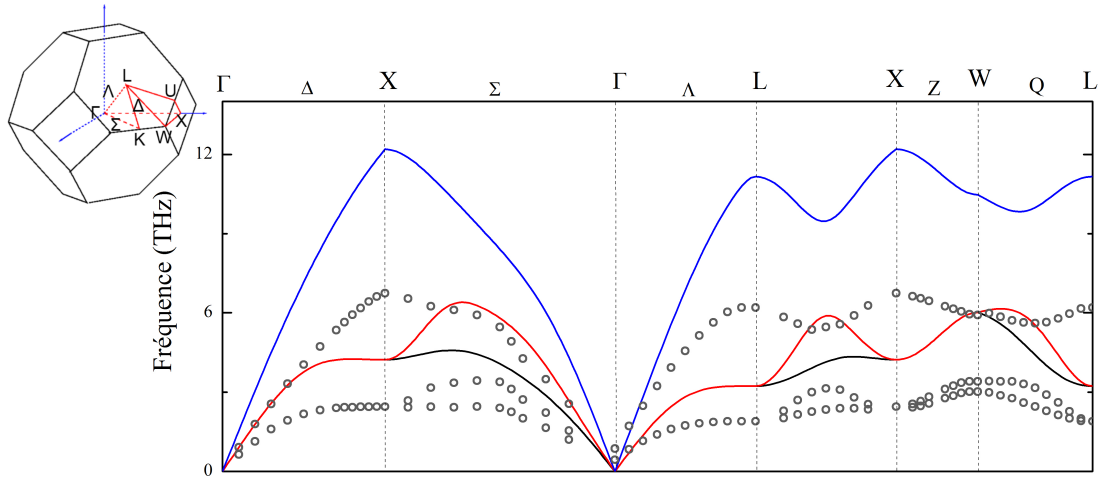


FIGURE 8.21 – Relation de dispersion calculée pour le silicium (Si) avec une procédure de calcul *ab initio*. Les points sont des données expérimentales relatives à l'arséniure de gallium [109] rappelées pour comparaison.

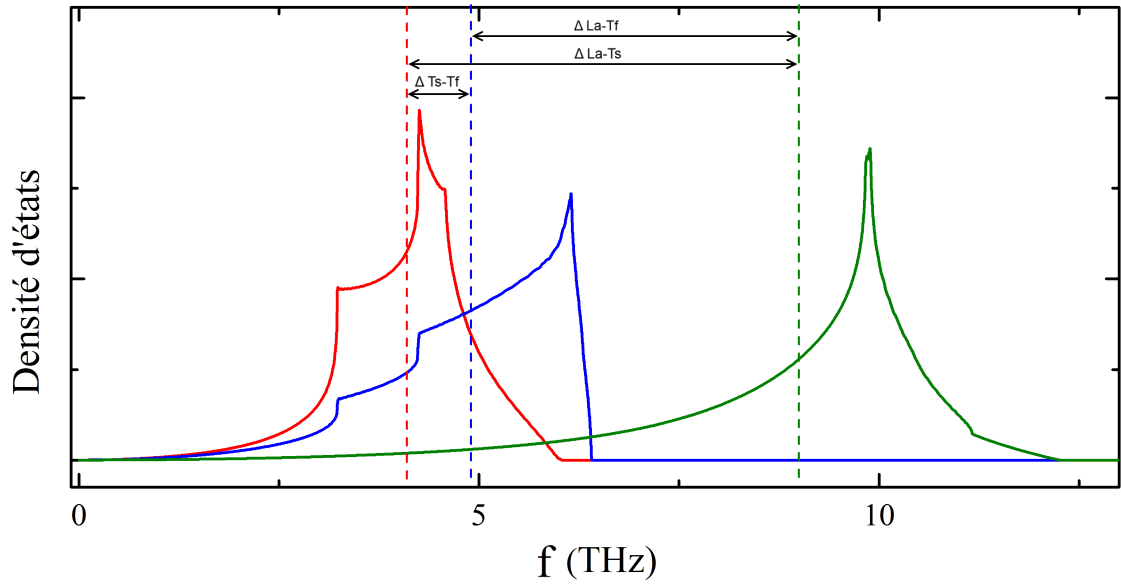


FIGURE 8.22 – Densité d'états pour chacune des branches acoustiques. Rouge : transverse lente ; bleue : transverse rapide ; verte : longitudinale. Les lignes verticales en tiret représentent les valeurs médianes de chaque courbe. Les écarts $\Delta P_x - P_y$ sont relevés dans le tableau suivant.

$\Delta T_s - T_f$	$\Delta L_a - T_f$	$\Delta L_a - T_s$
0,85 THz	4,06 THz	4,91 THz

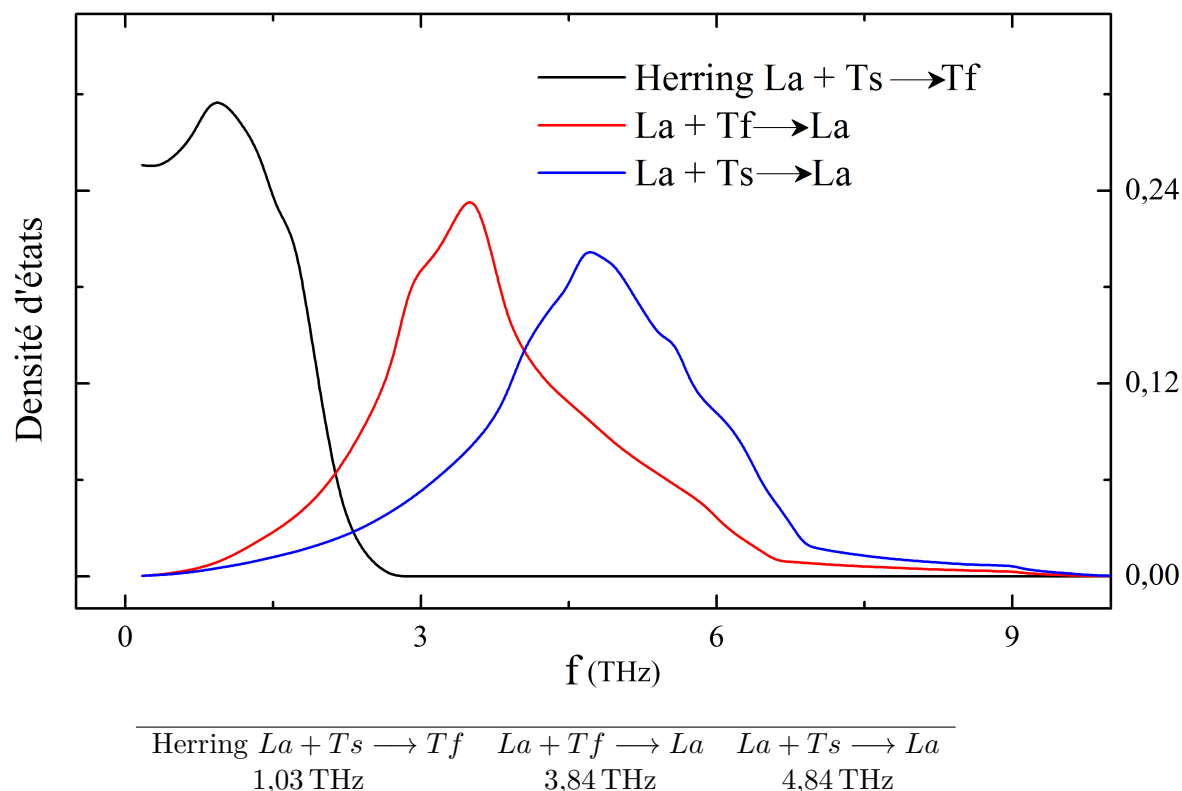


FIGURE 8.23 – Densité d'états à deux phonons pour les trois processus de collision autorisés pour un phonon acoustique polarisé longitudinalement. En noir : processus de Herring $La + Ts \rightarrow Tf$; en rouge : $La + Tf \rightarrow La$; en bleu : $La + Ts \rightarrow La$. Calculs réalisés pour le silicium avec une relation de dispersion réaliste (AB). Le tableau ci-contre donne les valeurs médianes de chacune des densités d'état.

Les écarts inter-branches sont corrélés au maximum de densité d'états à deux phonons (figure 8.23).

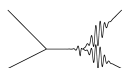
5.2 Densité d'états à deux phonons

Les densités d'états pour les processus de collision majoritaires possèdent des maxima à des fréquences bien plus élevées comparées à celles calculées dans l'arséniure de gallium.

Le plateau en atténuation sera donc à plus haute fréquence dans le silicium que dans l'arséniure de gallium.

5.3 Processus de Herring et plateau haute fréquence

La courbe donnant la variation de l'atténuation présente un plateau vers 1,5 THz (figure 8.24). Comme pour l'arséniure de gallium, la compétition entre les processus de Herring et les autres processus sont à l'origine de cette anomalie dans l'atténuation. Les branches de dispersion acoustiques sont bien plus hautes dans le silicium comparé à l'ar-



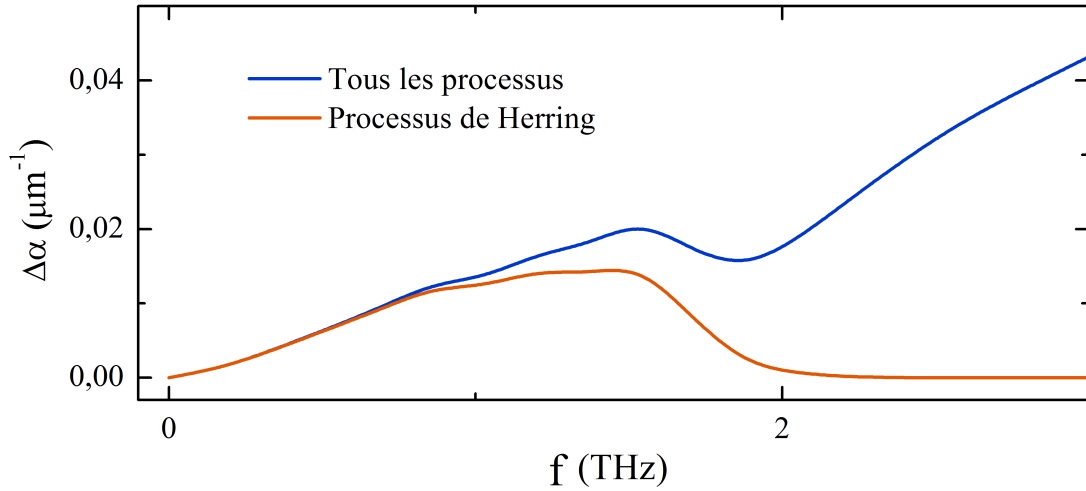


FIGURE 8.24 – En bleu : variation de l’atténuation en fonction de la fréquence pour le silicium dans la direction [100]. En rouge : contribution du processus de Herring pour l’atténuation.

séniure de gallium ; le plateau en atténuation est donc à plus haute fréquence.

5.4 Conclusion

Expérimentalement, un plateau en atténuation devrait être observé dans les cristaux de silicium à plus haute fréquence.

Les conclusions obtenues dans l’arséniure de gallium sont aussi valables dans le silicium. Seules les fréquences auxquelles les plateaux d’atténuation apparaissent sont plus élevées dans le silicium.

L’observation des densités d’états à un ou deux phonons permet de prévoir les fréquences où les processus de collision seront d’une grande efficacité et feront apparaître un plateau en atténuation.

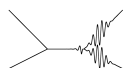
6 Conclusion générale

Nous avons montré dans ce chapitre l’accord de l’approche de Landau-Rumer dans les calculs d’atténuation ultra-sonore avec les mesures réalisées jusqu’au terahertz. La prise en compte de la dispersion devient une nécessité à ces fréquences.

La compétition entre le processus de Herring et les autres processus d’interaction à trois phonons explique le plateau en atténuation.

Le processus de Herring est particulièrement efficace dès les basses fréquences, mais décroît au delà de 650 GHz alors que les autres processus d’interaction ne font que croître jusqu’au terahertz. La contribution totale conduit donc à un plateau de l’atténuation entre 700 GHz et 1 THz.

Un comportement similaire est observé dans le silicium, mais à plus haute fréquence.



CHAPITRE 9

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

We know a place where no planes go

We know a place where no ships go

...

Between the click of the light and the start of the dream

*L*es phonons, ces quanta de vibrations mécaniques créés par pure analogie aux quanta de vibrations électromagnétiques que sont les photons, possèdent encore de larges zones d'ombre en dépit d'un siècle de recherche au service des structures cristallines.

La complexité des phénomènes en jeu associée aux progrès du calcul numérique nous autorisent ¹ à reprendre de vieilles problématiques telles que les temps de vie et poussent une approche ² datant de plusieurs décennies dans ses derniers retranchements.

Les progrès récents réalisés principalement à l'INSP dans la transduction opto-acoustique d'ondes longitudinales cohérentes monochromatiques et parfaitement collima-

1. enfin !

2. Ici, l'approche de Landau et Rumer.

CHAPITRE 9. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

tés dans le domaine du terahertz ont permis de conduire les premières mesures de la variation relative de l'atténuation ultrasonore, en fonction de la température, dans ce domaine de fréquence inédit. Une anomalie prenant la forme d'un plateau en atténuation est la preuve que les régimes d'approximation usuellement utilisés dans les calculs de temps de vie atteignent largement leurs limites.

Les processus de Herring $La + Ts \rightarrow Tf$ se trouvent être la clef de ce phénomène. La grande efficacité de ce processus de collision à basse fréquence est renforcée par la non-linéarité des courbes de dispersions de l'arséniure de gallium. Cependant, cette efficacité est fortement limitée par les écarts d'énergie des branches transverses lentes d'une part et rapides d'autre part de la relation de dispersion. Cette borne dans les écarts d'énergie conduit à une chute et à une annulation de la contribution des processus de Herring à l'atténuation totale.

Les autres processus d'interaction à trois phonons qu'ils soient de collision ou de fission ne sont pas soumis à cette limitation et continuent leur croissance. Entre un processus de Herring possédant un maximum vers 700 GHz et l'ensemble des autres processus ne faisant que croître à ces fréquences, il en surgit un plateau au régime de fréquences nous intéressant.

À l'image de l'anomalie de Kohn, les processus d'interaction multi-phonons se heurtent aux limites de la zone de Brillouin.

Les effets de la dispersion ne s'arrêtent pas au processus de Herring, deux autres processus similaires $La + Tf \rightarrow La$ et $La + Ts \rightarrow La$ suivent un comportement similaire à plus haute fréquence. Il en vient une série de résonances dans la dépendance des temps de vie phononiques en fonction de la fréquence.

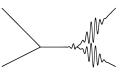
Les temps de vie jouent un rôle prépondérant dans la conductivité thermique. Bien que moyennées sur une plage d'énergie et de direction très grande, ces résonances pourraient avoir un impact sur l'expression de la conductivité thermique.

Comme indiqué plus haut, le mécanisme intrinsèque principal responsable de l'atténuation ultra-sonore à basse température et dans le régime terahertz et sub-terahertz sont les processus d'interaction à trois phonons. Ce mécanisme est fortement conditionné par la densité d'états à deux phonons. Il est possible de restreindre cette dernière en limitant le nombre de modes accessibles (en restreignant une ou deux dimensions du cristal : nano-fil ou film mince). Ainsi la dynamique des temps de vie s'en trouverait modifiée.

Les calculs menés dans ce manuscrit peuvent s'appliquer à toutes les structures cristallines de type cubique à faces centrées. Dans un premier temps, il s'agissait de confronter les mesures menées jusqu'au terahertz ; dans un second temps les calculs montrèrent un comportement anormal à plus haute fréquence (vers 2 THz) qui à l'heure actuelle n'a pu être expérimentalement vérifié.

Enfin, les quelques calculs menés dans le silicium montrent un comportement similaire à plus haute fréquence qu'il serait tout aussi intéressant de vérifier.

L'approche numérique décrite dans ce manuscrit comporte une approximation de taille : le coefficient de couplage utilisé est issu d'un développement grande longueur d'onde auquel est ajouté une fréquence de coupure *ad hoc* pour les courtes longueurs d'onde. Bien que donnant de bons résultats pour l'arséniure de gallium, il serait d'un



intérêt majeur de le confronter à des coefficients de couplage obtenus par des calculs *ab initio*. Par l'intermédiaire des processus d'interaction à trois phonons, les mesures d'atténuation serviraient de sonde pour explorer ces coefficients de couplage et par conséquent les potentiels inter-atomiques.

Concernant la poursuite des calculs numériques, d'autres structures cristallines présentant une plus forte anisotropie pourraient être envisagée. L'arséniure de gallium et le silicium sont des structures peu anisotropes et pourtant les surprises expérimentales s'expliquent en grande partie par cette anisotropie.

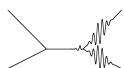
Enfin, pour terminer cette conclusion sur les mesures d'atténuation, le grand défi sera de prolonger les techniques permettant la transduction de phonons au delà du terahertz de façon à explorer toute la zone de Brillouin et vérifier la fin de ce plateau.

Concernant les super-réseaux acoustiques, ils constituent un maillon essentiel de la transduction opto-acoustique très haute fréquence. Ces derniers permettent d'explorer un domaine fréquentiel hors d'atteinte des dispositifs classiques tels que les transducteurs piezo-électriques ou la diffusion Brillouin.

L'optimisation de ces dispositifs à base de super-réseau passe par l'utilisation de structures permettant d'améliorer le couplage lumière-matière telles que les cavités optiques. Cependant, les dépendances en longueur d'onde des super-réseaux nus sont complexes, et l'utilisation d'une cavité optique complique encore la réponse du système en fonction de la longueur d'onde.

Les pics de réponse acoustique des super-réseaux sont corrélés aux niveaux d'énergie électronique des puits quantiques que constituent ces structures. Cependant le mécanisme assurant la génération d'une contrainte mécanique via le potentiel de déformation a été peu étudié dans les super-réseaux. Une étude poussée en longueur d'onde que ces travaux de thèse ne font qu'effleurer comblerait certaines lacunes.

Pour terminer, ces dispositifs, couplés aux techniques d'acoustique picoseconde, sont un outil de choix pour l'étude de structures et d'objets de dimensions très réduites. Les fréquences atteintes par ces dispositifs sont inédites, et ouvrent de nouvelles perspectives en terme de spectroscopie phononique.



ANNEXE A

EXPRESSION DU CHANGEMENT RELATIF DE RÉFLECTIVITÉ

Solution en l'absence de déformation acoustique

Prenons une structure multicouche (figure A.1) dont les indices sont définis ci-dessous :

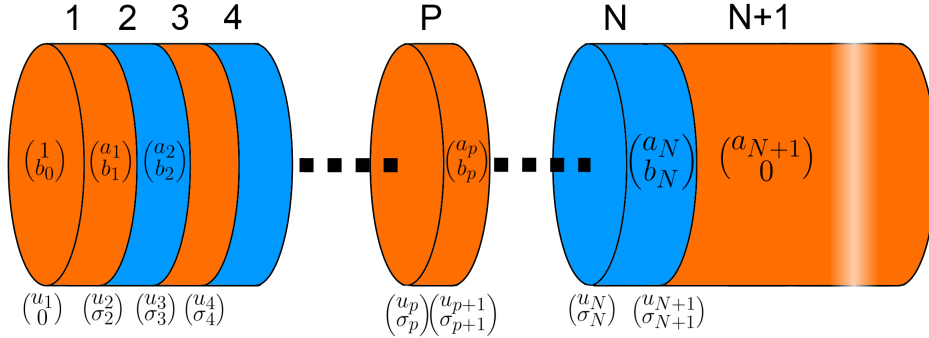


FIGURE A.1 – Représentation schématique d'un super-réseau. Les coefficients (a_m, b_m) sont les coefficients électromagnétiques à l'entrée de chaque couche (sauf la couche 0 qui est le milieu extérieur). Les coefficients (u_i, σ_m) sont les déplacements et contraintes à la surface de chaque interface. La couche $N + 1$ est par convention le substrat.

Le champ électromagnétique $\vec{E}$ au sein de chaque couche est donné par la relation suivante :

$$\vec{E}(\vec{z}) = \vec{E}_m(z) = a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} \vec{e}_{\perp, \parallel} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z} \vec{e}_{\perp, \parallel}$$

CHAPITRE A. EXPRESSION DU CHANGEMENT RELATIF DE RÉFLECTIVITÉ

- a_m et b_m sont les amplitudes du champ électromagnétique en entrée de chaque couche
- z est la coordonnée de la distance dont l'origine est prise au début de chaque couche de coordonnée $\tilde{z}_m$ tandis que $\tilde{z}$ est une coordonnée relative à l'ensemble de la structure : $z = \tilde{z} - \tilde{z}_m$
- $\vec{e}_{\perp, \parallel}$ est un vecteur unitaire perpendiculaire à la direction de propagation
- $k_m = \sqrt{\varepsilon_m} k_0 = n_m k_0$ avec n_m l'indice complexe de la couche m et k_0 le vecteur d'onde électromagnétique dans le vide
- θ_m est l'angle entre la normale aux plans du multicouches et la direction de propagation de l'onde électromagnétique dans la couche m
- d_m est l'épaisseur de la couche m

Les amplitudes a_m et b_m du champ électromagnétique dans chaque couche m sont reliées entre elles à l'aide de matrices de transfert.

Matrice de transfert électromagnétique

Le passage d'une couche à l'autre se fait en deux étapes. D'une part la propagation au sein d'une couche, et d'autre part le passage de l'interface séparant deux couches.

Matrice de propagation

La matrice de propagation de la couche m , de la couche $m + 1$ vers la couche $m - 1$ s'exprime :

$$P_m = \begin{pmatrix} e^{-k_m \cos \theta_m d_m} & 0 \\ 0 & e^{+k_m \cos \theta_m d_m} \end{pmatrix}$$

Matrice de passage électromagnétique

La matrice de passage de l'interface $m \rightarrow m + 1$:

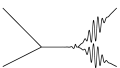
$$\tau_{m,m+1} = \frac{1}{t_{m,m+1}} \begin{pmatrix} 1 & r_{m,m+1} \\ r_{m,m+1} & 1 \end{pmatrix}$$

où r et t sont les coefficients réflexion et transmission de Fresnel des ondes électromagnétiques polarisées parallèlement ou perpendiculairement au plan de propagation.

Le passage de la couche m vers la couche $m + 1$ s'exprime :

$$\begin{pmatrix} a_m \\ b_m \end{pmatrix} = P_m \tau_{m,m+1} \begin{pmatrix} a_{m+1} \\ b_{m+1} \end{pmatrix}$$

De proche en proche, l'amplitude du champ électromagnétique à la surface est reliée



au champ dans le substrat :

$$\begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} = \tau_{0,1} P_1 \dots P_m \tau_{m,m+1} \dots P_N \tau_{N,N+1} \begin{pmatrix} a_s \\ 0 \end{pmatrix}$$

b_s correspond à l'onde électromagnétique réfléchi à l'arrière du substrat, ce dernier étant pris comme semi-infini, rien ne se réfléchit : $b_s = 0$.

Le coefficient de réflexion de la structure complète est donné par :

$$r_0 = \frac{b_0}{a_0} = \frac{T_{0;21}}{T_{0;11}}$$

où T_0 est la matrice :

$$T_0 = \begin{pmatrix} T_{0;11} & T_{0;12} \\ T_{0;21} & T_{0;22} \end{pmatrix}$$

Le champ acoustique présent dans le milieu va modifier la réflectivité totale de la structure via deux processus distincts. D'une part la déformation élastique va modifier les propriétés optiques de chaque couche, d'autre part le champ acoustique va induire un déplacement de chaque interface.

Ces deux perturbations vont provoquer des modifications du coefficient de réflectivité r . L'expression de ces termes perturbatifs est obtenue en effectuant un développement limité au premier ordre de la matrice de transfert en présence du champ acoustique. A cet ordre de développement, les processus sont seulement additifs et les contributions pour les différentes couches sont simplement additionnées.

Variation relative de réflectivité due aux changement de la constante diélectrique au sein d'une couche

La constante diélectrique au sein d'une couche m est localement modifiée par le champ de déformation acoustique η_m suivant :

$$\Delta\epsilon_m = \frac{\partial\epsilon_m}{\partial\eta} \eta_m$$

L'équation de propagation électromagnétique doit être résolue à l'intérieur de chaque couche m pour obtenir la matrice de transfert :

$$\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2} + k_0^2 \cos^2 \theta_m (\epsilon_m + \Delta\epsilon_m) E(z) = 0$$

Dans un premier temps, nous allons résoudre l'équation pour une perturbation d'épaisseur infinitésimale en z' : $\Delta\epsilon_m = F\delta(z - z')$

CHAPITRE A. EXPRESSION DU CHANGEMENT RELATIF DE RÉFLECTIVITÉ

$$\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2} + k_0^2 \cos^2 \theta_m \varepsilon_m E(z) = -k_0^2 \cos^2 \theta_m F \delta(z - z') E(z) \quad (\text{A.1})$$

avec F une constante. La solution nous fournit la matrice de passage d'interface τ_ξ située en z' due à la déformation acoustique.

Cette équation se résout par l'intermédiaire d'une transformée de Fourier $\tilde{E}(\zeta) = \int_{-\infty}^{+\infty} dz E(z) e^{-2i\pi\zeta z}$.

L'équation A.1 se réécrit :

$$-4\pi\zeta^2 \tilde{E}_p(\zeta) + k_0^2 \varepsilon_m \cos^2 \theta_m \tilde{E}_p(\zeta) = k_0 \cos^2 \theta_m F e^{-2i\pi\zeta z'} \tilde{E}(z')$$

Et donc,

$$\tilde{E}_p(\zeta) = \frac{k_0^2 \cos^2 \theta_m F \tilde{E}(z')}{4\pi^2 \zeta^2 - k_0^2 \cos^2 \theta_m \varepsilon_m} e^{-2i\pi\zeta z'}$$

La solution particulière de l'équation A.1 est obtenue par transformée de Fourier inverse :

$$E_p(z) = -i \frac{k_0 \cos \theta_m F \tilde{E}(z')}{2\sqrt{\varepsilon_m}} e^{-ik_0 \cos \theta_m \sqrt{\varepsilon_m} |z - z'|}$$

La solution de l'équation homogène associée à l'équation A.1 est :

$$E_h(z) = A_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + B_m e^{-ik_m \cos \theta_m z}$$

avec $k_m = k_0 \sqrt{\varepsilon_m}$.

La solution générale de l'équation A.1 a pour expression :

$$\begin{aligned} E(z) &= E_p(z) + E_h(z) \\ &= -i \frac{k_0 \cos \theta_m F \tilde{E}(z')}{2\sqrt{\varepsilon_m}} e^{-ik_0 \cos \theta_m \sqrt{\varepsilon_m} |z - z'|} + A_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + B_m e^{-ik_m \cos \theta_m z} \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Au niveau de l'interface, en $z = z'$:

$$E(z') = \frac{A}{1 + i \frac{F k_m \cos \theta_m}{2\varepsilon_m}} e^{ik_m \cos \theta_m z'} + \frac{B}{1 + i \frac{F k_m \cos \theta_m}{2\varepsilon_m}} e^{-ik_m \cos \theta_m z'}$$

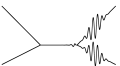
Un développement limité au second ordre¹ permet d'obtenir :

$$E(z') = A(1 - \xi) e^{ik_m \cos \theta_m z'} + B(1 - \xi) e^{-ik_m \cos \theta_m z'} + o(\xi^2)$$

Avec $\xi = \frac{ik_0^2 F \cos \theta_m}{2k_m}$, le coefficient de réflexion au passage de l'interface acoustique.

Le schéma A.2 donne l'amplitude des champs électromagnétiques au passage d'une interface infiniment fine de coefficient de réflexion ξ .

1. $\frac{ik_0^2 F \cos \theta_m}{2k_m} \ll 1$



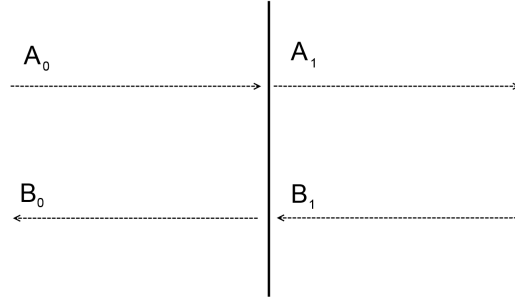


FIGURE A.2 – Amplitude des champs électromagnétiques de part et d'autre de la déformation.

Les amplitudes des champs sont reliées par la relation suivante :

$$\begin{cases} A_0 &= (1 - \xi)A_1 - \xi B_1 \\ B_0 &= \xi A_1 + (1 + \xi)B_1 \end{cases}$$

Donnant en expression matricielle,

$$\begin{pmatrix} A_0 \\ B_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 - \xi & -\xi \\ \xi & 1 + \xi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ B_1 \end{pmatrix}$$

Avec τ_ξ la matrice de passage acoustique,

$$\tau_\xi = \begin{pmatrix} 1 - \xi & -\xi \\ \xi & 1 + \xi \end{pmatrix} = I_d - \xi \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & -1 \end{pmatrix}$$

Avec I_d la matrice identité. La matrice de propagation au sein de la couche m se trouve donc modifiée par l'interface située en z' :

$$\begin{aligned} P_m^{(1)}(z') &= \begin{pmatrix} e^{-k_m \cos \theta_m z'} & 0 \\ 0 & e^{+k_m \cos \theta_m z'} \end{pmatrix} \tau_\xi \begin{pmatrix} e^{-k_m \cos \theta_m (d_m - z')} & 0 \\ 0 & e^{+k_m \cos \theta_m (d_m - z')} \end{pmatrix} \\ &= P_m + \xi P(z') P_m + o(\xi^2) \end{aligned}$$

avec

$$P(z') = \begin{pmatrix} -1 & -e^{-2ik_m \cos \theta z'} \\ e^{2ik_m \cos \theta_m z'} & 1 \end{pmatrix}$$

La prise en compte de la déformation acoustique dans la couche m conduit à une expression intégrale de la matrice de propagation :

$$\begin{aligned} P_m^{(1)} &= P_m + \xi' \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} P(z) P_m \eta_m(z) dz + o(\xi'^2) \\ &= P_m + \Delta_m^{(1)} P_m + o(\xi'^2) \end{aligned} \tag{A.3}$$

CHAPITRE A. EXPRESSION DU CHANGEMENT RELATIF DE RÉFLECTIVITÉ

avec $\Delta_m^{(1)} = \frac{ik_0^2 \cos \theta_m}{2k_m} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} P(z) \eta_m(z) dz$

Variation relative de réflectivité due aux déplacements d'interfaces

La présence d'un champ acoustique provoque un déplacement de chaque interface entre les couches m et $m+1$ d'une quantité $u(\tilde{z}) = u_m$. La matrice de propagation de la couche $P_m^{(2)}$ est alors exprimée en tenant compte des nouvelles positions des interfaces localisées en $(\tilde{z}_{m-1} + u_{m-1})$ et $(\tilde{z}_m + u_m)$:

$$P_m^{(2)} = \begin{pmatrix} e^{-k_m \cos \theta_m (d_m + u_m + u_{m-1})} & 0 \\ 0 & e^{+k_m \cos \theta_m (d_m + u_m + u_{m-1})} \end{pmatrix}$$

Un développement limité en u^2 donne :

$$\begin{aligned} P_m^{(2)} &= P_m - ik_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) R P_m + o(u^2) \\ &= P_m + \Delta_m^{(2)} P_m + o(u^2) \end{aligned}$$

avec $R = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$ et $\Delta_m^{(2)} = -ik_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) R$

Avec $u_{-1} = 0$, ce qui revient à définir une origine des amplitudes de déplacement acoustique des interfaces. De plus $u_{N+2} = 0$, le substrat est suffisamment épais pour que les déplacements acoustiques à l'arrière de ce dernier soient négligés.

Somme des deux contributions pour la variation relative de réflectivité

Les développements limités au premier ordre permettent de définir la matrice suivante :

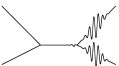
$$\Delta m = \Delta^{(1)} m + \Delta^{(2)} m$$

Les modifications induites sur la matrice de transfert totale T_0 par la présence d'un champ acoustique dans la couche m s'écrit :

$$\begin{aligned} T'_0 &= \tau_{0,1} P_1 \tau_{1,2} \dots \tau_{m-1,m} [P_m + \Delta_m P_m + o(\eta^2)] \tau_{m,m+1} \dots P_N \tau_{N,N+1} \\ &= T_0 + T_0 T_m^{-1} \Delta_m T_m \\ &= T_0 [Id + \tilde{\Delta}_m] \end{aligned}$$

où,

$$\tilde{\Delta}_m = iT_m^{-1} \left(\frac{k_0^2 \cos \theta_m}{2k_m} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) P(z) - k_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) R dz \right) T_m$$



Par conséquent, le coefficient de réflexion modifié s'écrit :

$$\begin{aligned} r &= \frac{T'_{0,21}}{T'_{0,11}} \\ &= \frac{T_{0,21} + [T_{0,21}\tilde{\Delta}_{m,11} + T_{0,22}\tilde{\Delta}_{m,21}]}{T_{0,11} + [T_{0,11}\tilde{\Delta}_{m,11} + T_{0,12}\tilde{\Delta}_{m,21}]} \end{aligned}$$

Avec un développement limité en $\tilde{\Delta}_m$ au premier ordre :

$$r = r_0 \left(1 + \frac{\det(T_0)\tilde{\Delta}_{m,21}}{T_{0,11}T_{0,21}} \right) + o(\tilde{\Delta}_m^2)$$

Et donc, la variation de réflectivité s'exprime :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \frac{\det(T_0)\tilde{\Delta}_{m,21}}{T_{0,11}T_{0,21}}$$

où

$$\det(T_m) = \frac{n_{N+1}}{n_m}$$

et

$$\tilde{\Delta}_{m,21} = \frac{1}{a_s^2} \frac{in_m}{n_{N+1}} \left(\frac{k_0^2 \cos \theta_m}{2k_m} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) \left[a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z} \right]^2 dz \right) + 2k_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m$$

La contribution des $N + 1$ couches au changement de réflectivité s'écrit donc :

$$\frac{\Delta r}{r_0} = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left[\frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) \left[a_m e^{ik_m \cos \theta_m z} + b_m e^{-ik_m \cos \theta_m z} \right]^2 dz \right] + 2\varepsilon_m \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m$$

avec par convention : $\frac{\partial \varepsilon_0}{\partial \eta} = 0$, $d_{N+1} \rightarrow +\infty$ et $u_{-1} = 0$.

Et par conséquent :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta r}{r_0} &= \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \sum_{m=0}^{N+1} \left[\frac{\cos \theta_m}{2} \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} \eta_m(z) \left[a_m^2 e^{2ik_m \cos \theta_m z} + b_m^2 e^{-2ik_m \cos \theta_m z} \right] dz \right] \\ &\quad + (2\varepsilon_m + \frac{\partial \varepsilon_m}{\partial \eta}) \cos \theta_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m \end{aligned} \tag{A.4}$$



ANNEXE B

DÉTAILS DE LA PROCÉDURE NUMÉRIQUE

Relation de dispersion

Le comportement en fréquence de l'atténuation est fortement dépendant de la relation de dispersion. La figure B.1 représente l'atténuation totale dans l'arséniure de gallium calculée avec les relations de dispersion présentées précédemment. La fréquence de coupure dont il est question au paragraphe suivant ne joue pas de rôle majeur dans la forme de la courbe. Il est donc possible dans un premier temps de comparer les courbes d'atténuation en gardant la fréquence de coupure constante afin d'estimer quel modèle reproduit le mieux l'atténuation mesurée.

Les relations de dispersion calculées par des méthodes *ab initio* reproduisent le mieux le plateau observé expérimentalement.

Parmi les relations de dispersion (DEB), (RIM), (AB) et (ABc), seuls les calculs *ab initio* corrigés (ABc) s'accordent le mieux aux valeurs expérimentales de dispersion [109] et fournissent les résultats d'atténuation les plus proches de la réalité expérimentale (figure B.1).

Parmi ce jeu de courbes, seuls les modèles de dispersion *ab initio* donne un plateau dans la bonne gamme de fréquences. Le rigid ion model (RIM) fournit un maximum pour le processus de Herring à bien trop haute fréquence, alors qu'il s'agit d'un modèle à 11 paramètres supposé ajuster les données expérimentales. Il ne faut pas oublier que la position du maximum en fréquence est lié aux écarts d'énergie des branches transverses acoustiques lente et rapide pour les phonons de *bord de zone*. Or le rigid ion model reproduit très mal les courbes de dispersion dans les directions $[X \rightarrow W \rightarrow L]$ de la zone de Brillouin. Les écarts d'énergie pour le rigid ion model sont bien trop grands.

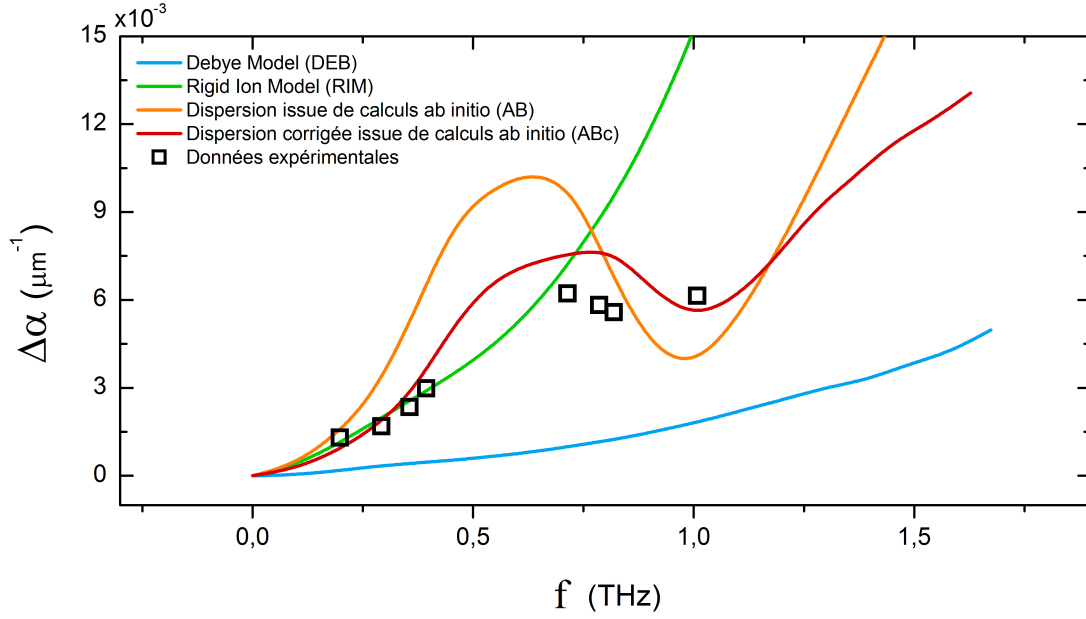


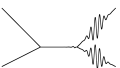
FIGURE B.1 – Atténuation calculée avec différents modèles de dispersion à $T = 50$ K pour $N = 90$ et $q_c = 0,4 \frac{2\pi}{a} \text{ nm}^{-1}$. Les carrés correspondent aux données expérimentales.

Fréquence de coupure

q_c est la seule variable d'ajustement des calculs d'atténuation et vient d'une construction *ad hoc* des coefficients de couplage pour les phonons de bord de zone de Brillouin. Ce paramètre influe peu sur les caractéristiques générales de la courbe en dehors de son amplitude, l'existence du plateau ne dépend pas de ce paramètre.

q_c permet donc d'ajuster au mieux les valeurs expérimentales. La figure B.2 représente l'atténuation pour différentes valeurs de q_c . La valeur optimale du paramètre q_c est comprise entre $0,36 \frac{2\pi}{a} \text{ nm}^{-1}$ et $0,38 \frac{2\pi}{a} \text{ nm}^{-1}$.

Par la suite, nous prendrons $q_c = 0,37 \frac{2\pi}{a} \text{ nm}^{-1}$.



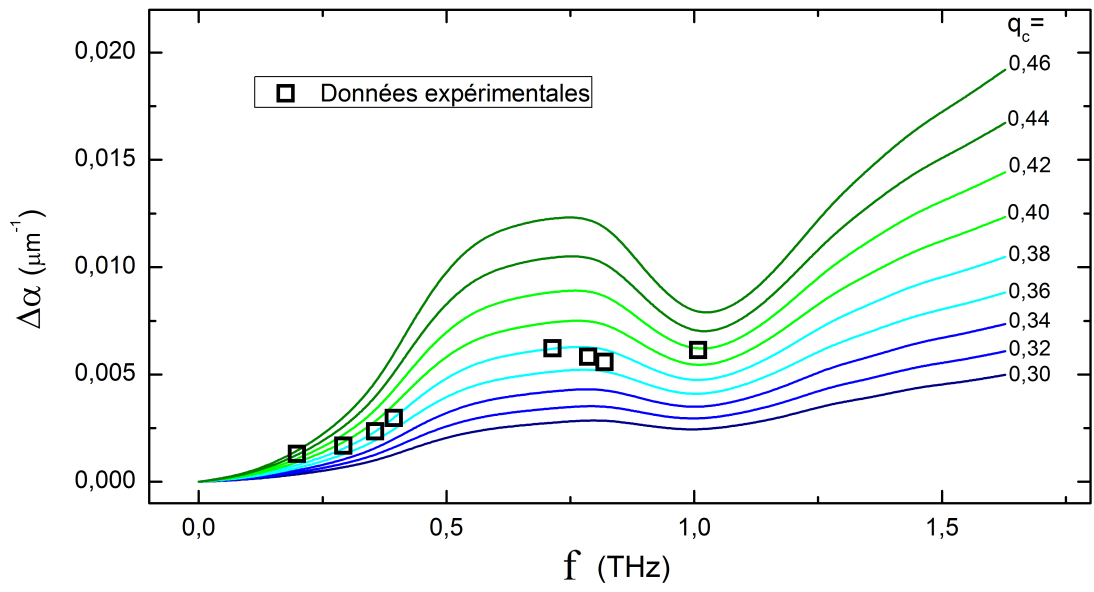
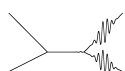


FIGURE B.2 – Atténuation calculée pour différents vecteurs d’onde de coupure q_c pour une dispersion réaliste (ABc) à $T=50$ K.



ANNEXE C

PARAMÈTRES POUR LE CALCUL NUMÉRIQUE

Arséniure de gallium [121]

Constantes élastiques à température ambiante :

	C_{11}	C_{12}	C_{44}	C_{111}	C_{112}	C_{123}	C_{144}	C_{155}	C_{456}
Anisotrope (GPa)	118,8	53,8	59,4	-622	-387	-57	2	-269	-39

- Paramètre de maille : 0,565 nm
- Masse atomique de l'arséniure : $M(As) = 69,723$ UMA
- Masse atomique du gallium : $M(Ga) = 74,9216$ UMA
- Masse volumique : $\rho = 5,315 \cdot 10^3$ kg/m³

Silicium [122]

Constantes élastiques à 50 K :

	C_{11}	C_{12}	C_{44}	C_{111}	C_{112}	C_{123}	C_{144}	C_{155}	C_{456}
Anisotrope (GPa)	165,6	63,9	79,5	-869	-597	-120	2	-346	-35

- Paramètre de maille : 0,543 nm
- Masse atomique du silicium : $M(Si) = 28,085$ UMA
- Masse volumique : $\rho = 2,33 \cdot 10^3$ kg/m³

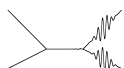
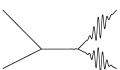


TABLE DES FIGURES

1.1	Domaine fréquentiel des différentes techniques d'étude des phonons	20
2.1	Schéma d'une mesure d'acoustique pico-seconde en transmission	29
2.2	temps caractéristiques de dépôt et de diffusion de l'énergie dans un cristal	30
2.3	profils de déformation en milieu semi-infini	32
2.4	Déplacement de surface	33
2.5	Diagramme énergétique de N_2	34
2.6	Schéma des niveaux d'énergie d'un semi-conducteur de gap E_g	35
2.7	Interaction d'un champ électromagnétique avec une perturbation acous- tique située en z	39
2.8	Partie réelle et imaginaire de la variation de réflectivité	41
3.1	Schéma de principe d'une expérience pompe-sonde	46
3.2	Tâche focale d'un faisceau gaussien	47
3.3	Schéma de principe du modulateur acousto-optique	48
3.4	Schéma du train d'impulsions en sortie du modulateur acousto-optique. .	49
3.5	Schéma de principe de la ligne à retard	50
3.6	Schéma de montage pompe-sonde synchrone.	52
3.7	Échos acoustique dans un film mince de Mo/Ni . <i>B. Perrin</i>	54
3.8	Schéma de principe d'un interféromètre de Sagnac.	55
3.9	Principe de fonctionnement d'un montage asynchrone	57
3.10	Schéma de principe d'un montage asynchrone	58
3.11	Abaque pour le montage asynchrone	59
4.1	Propriétés physiques des cristaux de $GaAs$ et d' $AlAs$	66
4.2	Représentation schématique d'un super-réseau	66
4.3	Schéma de la structure de bande d'un puits quantique	67
4.4	Photoluminescence en excitation d'un super-réseau $GaAs/AlAs$	68
4.5	Courbe de dispersion pour un empilement périodique $GaAs/AlAs$	70

TABLE DES FIGURES

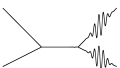
4.6	Spectre acoustique : génération sur super-réseau, détection sur couche d'aluminium	72
4.7	Amplitude de la composante spectrale d'un signal acoustique en fonction de la longueur d'onde pompe	73
4.8	Spectre acoustique : génération sur couche métallique, détection sur super-réseau	76
4.9	Réponse acoustique d'un super-réseau en fonction de la longueur d'onde sonde	77
4.10	Efficacité de transduction d'un super-réseau simple et double	79
4.11	Simulation du spectre acoustique détecté sur un super-réseau	80
4.12	Spectre acoustique large bande généré sur un film d'aluminium et détecté sur un super-réseau	81
5.1	Schéma de la structure de l'échantillon B1R112	87
5.2	Relation de dispersion du super-réseau acoustique inclus dans la micro-cavité optique	88
5.3	Module et phase de la réflectivité du miroir de Bragg	89
5.4	Réflectivité de la cavité Fabry-Pérot contenant un super-réseau acoustique.	91
5.5	Champ et énergie électromagnétique dans B1R112	92
5.6	Mode de cavité calculé et mesuré à l'ambiante et à basse température.	93
5.7	Photoluminescence du super-réseau acoustique de l'échantillon à micro-cavité optique	94
5.8	Spectre acoustique large bande détecté par le super-réseau inséré dans la cavité optique	96
5.9	Spectre de l'écho acoustique généré et détecté par le super-réseau	97
5.10	Filtre fréquentiel d'une trace détectée sur B1R112	98
5.11	Écho acoustique traversant le super-réseau	99
5.12	Amplitude des pics de transformée de Fourier du signal acoustique en fonction de la longueur d'onde pompe	101
5.13	Amplitude des pics de transformée de Fourier du signal acoustique en fonction de la longueur d'onde sonde	102
5.14	Partie imaginaire de la fonction de détection	103
5.15	Partie imaginaire de la fonction de détection	104
5.16	Transformée de Fourier glissante du premier écho généré et détecté par le super-réseau B1R112	105
6.1	Couplage de mode dans le cas de potentiel anharmonique. <i>Fermi, Pasta et Ulam</i>	113
6.2	Exemple de processus mettant en jeu trois phonons.	115
6.3	Coordonnées sphériques pour le processus de collision à trois phonons.	128
6.4	Courbes de dispersion linéaire du modèle de Debye	129
6.5	Représentation simplifiée de $I.S(0, \infty, r_1, r_2)$	131
6.6	Fonction $I.S$ tracée pour deux plages distinctes de x	132
6.7	Courbes de dispersion d'un cristal d'arséniure de gallium	134



7.1	Configuration expérimentale utilisée par Kent pour les mesures d'atténuation haute fréquence	145
7.2	Schéma de la configuration d'une expérience pompe-sonde en transmission avec un double super-réseau.	146
7.3	Mesure en transmission sur un super-réseau	147
7.4	Atténuation en fonction de la température pour une onde acoustique à 0.395THz.	147
7.5	Atténuation en fonction de la température pour l'ensemble des échantillons.	149
7.6	Atténuation ultra-sonore en fonction de la température pour différentes épaisseurs	150
7.7	Atténuation en fonction de la fréquence pour une température allant de 30 K à 65 K. Les mesures ont été réalisées avec double super-réseau en transmission mais aussi avec le super-réseau à cavité optique. Un plateau apparaît avec l'augmentation de la température à partir de 0,7 THz.	151
8.1	Première zone de Brillouin pour un cristal à symétrie cubique face centrée	160
8.2	Fonction $S(w)$	163
8.3	Relations de dispersion calculées pour l'arséniure de gallium	165
8.4	Tests de convergence de la méthode de Gilat-Raubenheimer	167
8.5	Atténuation en fonction de la fréquence pour un milieu non dispersif.	169
8.6	Processus de Herring $La + Ts \longrightarrow Tf : \tilde{\mathfrak{S}}(\omega_0, \omega_1)$ et $\mathfrak{S}(\omega_0) = \int \tilde{\mathfrak{S}} d\omega_1$	172
8.7	Densité d'états pour chacune des branches acoustiques	173
8.8	Contribution du processus de Herring à l'atténuation : comparaison d'une relation de dispersion linéaire et réaliste	174
8.9	$\mathfrak{s}_{Tf}^{La, Ts}(\mathbf{q})$: comparaison d'une relation de dispersion linéaire et réaliste	176
8.10	Densité d'états à deux phonons et coefficient d'atténuation α pour l'ensemble des trois processus de collision autorisés	177
8.11	Atténuation pour les processus de fission en fonction de la fréquence du phonon acoustique initial	178
8.12	Variation relative de l'atténuation dans l'arséniure de gallium en fonction de la fréquence	179
8.13	Variation relative de l'atténuation totale dans l'arséniure de gallium calculé avec une relation de dispersion réaliste	180
8.14	Atténuation en fonction de la température et pour différentes fréquences	182
8.15	Rapport de l'atténuation α sur l'atténuation totale	183
8.16	Atténuation relative pour les directions $[110]$	185
8.17	Atténuation pour les processus de collision $Ts + p_1 \longrightarrow p_2$ pour une température $T = 50$ K.	187
8.18	Atténuation pour les processus de collision $Tf + p_1 \longrightarrow p_2$	188
8.19	Atténuation totale pour les polarisations transverses rapides et lentes	189
8.20	Densité d'état à deux phonons pour les processus de Herring de polarisation transverse lente et rapide	190
8.21	Relation de dispersion calculée pour le silicium	191
8.22	Densité d'états pour chacune des branches acoustiques	191

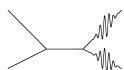
TABLE DES FIGURES

8.23	Densité d'états à deux phonons pour les trois processus de collision autorisés pour un phonon acoustique polarisé longitudinalement	192
8.24	Variation de l'atténuation en fonction de la fréquence pour le silicium. . .	193
A.1	Représentation schématique d'un super-réseau	199
A.2	Amplitude des champs électromagnétiques de part et d'autre de la déformation.	203
B.1	Atténuation calculée avec différents modèles de dispersion	208
B.2	Atténuation calculée pour différents vecteurs d'onde de coupure q_c	209



LISTE DES TABLEAUX

2.1	propriétés thermodynamiques de l'aluminium	31
4.1	Énergie de transition pour un super-réseau $GaAs(7,5 \text{ nm})/AlAs(17,1 \text{ nm})$	67
6.1	Collision : règles de sélection dans le cas d'une relation de dispersion linéaire et isotrope	128
6.2	Collision : règles de sélection en tenant compte de l'anisotropie uniquement	130
6.3	Collisions : règle de sélection dans le cas d'une relation de dispersion anisotrope non linéaire	135
6.4	Fission : Règles de sélection	136
6.5	Densité d'états et limites d'intégration de la densité d'états	138
8.1	Degrés de symétrie de la zone de Brillouin d'un cristal cubique face centrée composés avec les directions privilégiées du cube.	159
8.2	Expression littérale de la surface $S(w)$	162
8.3	Préfacteur $A \times 10^{-2}$ de l'expression de la densité d'état $\mathfrak{S} = A\omega^2$ pour le processus $L \rightarrow T + L$ dans le cas d'une dispersion linéaire et isotrope.	167
8.4	$\mathfrak{S} = A\omega^2$ calculé analytiquement et numériquement pour différents processus de fission dans le cadre d'une relation de dispersion linéaire et isotrope	168
8.5	$I.\mathfrak{S}$ calculé pour différents processus de collision	170
8.6	Pré-facteur A pour $T = 50 \text{ K}$ de la loi de puissance pour l'atténuation $\alpha = A\nu^3 T^2$ pour différents modèles de dispersion.	175
8.7	Loi de puissance des processus de fission du type $La \rightarrow X + Y$. Conditions de calcul : voir figure 8.11.	178
8.8	Comparaison de l'atténuation calculée par Tamura et Kent avec les calculs réalisés avec une relation de dispersion réaliste	184

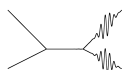


BIBLIOGRAPHIE

- [1] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, and H. Maris. Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Physical review B*, 53(10) :3–6, 1984. (Cité en pages 13, 16, 17 et 46.)
- [2] P. Curie and J. Curie. Contractions et dilatations produites par des tensions électriques dans les cristaux hémicédres à faces inclinées. *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, 93 :1137, 1881. (Cité en page 15.)
- [3] Warren P. Masson. Piezoelectricity, its history and applications. *Journal of the Acoustical Society of America*, 70 :1561, 1981. (Cité en page 15.)
- [4] A. Bell. Upon the production of sound by radiant energy. 1881. (Cité en page 15.)
- [5] L. Brillouin. *Annals of Physics*, 17(103), 1921. (Cité en page 15.)
- [6] L. Brillouin. *Annals of Physics*, 17(88), 1922. (Cité en page 15.)
- [7] R. Biquard and P. Lucas. *J. Phys. Rad.*, 3 :464, 1932. (Cité en page 15.)
- [8] P. Debye and F. W. Sears. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 18 :409, 1932. (Cité en page 15.)
- [9] C. Raman and N. Nath. *Proc. indian Acad. Sci.*, 2 :406, 1935. (Cité en page 15.)
- [10] T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, 187 :493–494, 1960. (Cité en page 15.)
- [11] F. J. McClung and R. W. Hellwarth. Giant optical pulsations from ruby. *Physical Optics*, 828 :103–105, 1962. (Cité en page 15.)
- [12] R. M. White. Generation of elastic waves by transient surface heating. *Journal of Applied Physics*, 34(12) :3559, 1963. (Cité en page 15.)
- [13] G. Askaryan. The effect of a laser beam in a liquid. *JETP*, 17(6) :1463–1465, 1963. (Cité en page 15.)
- [14] D. A. Hutchins. Laser generation as a standard acoustic source in metals. *Applied Physics Letters*, 38(9) :677, 1981. (Cité en page 16.)
- [15] J. H. Bechtel. Heating of solid targets with laser pulses. *Journal of Applied Physics*, 46(4) :1585–1593, 1975. (Cité en page 16.)

BIBLIOGRAPHIE

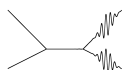
- [16] C. B. Scruby, R. J. Dewhurst, D. A. Hutchins, and S. B. Palmer. Quantitative studies of thermally generated elastic waves in laser-irradiated metals. *Journal of Applied Physics*, 51(12) :6210, 1980. (Cité en page 16.)
- [17] C. B. Scruby and L. E. Drain. *Laser Ultrasonics : techniques and applications*. Adam Hilger, 1990. (Cité en page 16.)
- [18] L. Hargrove and R. Fork. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation. *Applied Physics Letters*, Vol. 5, p.4-5, 1964. (Cité en page 16.)
- [19] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Physical Review B*, 34(6) :4129–4138, 1986. (Cité en pages 16, 18, 29, 35 et 46.)
- [20] Jan Tauc, Humphrey J. Maris, and Christian Thomsen. Optical generator and detector of stress pulses (n°4710030), 1987. (Cité en page 16.)
- [21] O. B. Wright and K. Kawashima. Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations. *Physical Review Letters*, 69(11) :1668–1671, 1992. (Cité en page 17.)
- [22] B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet, and E. Romanet. Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures. *Progress in Natural Science*, 6 :444–448, 1996. (Cité en pages 17 et 46.)
- [23] B. Bonello, B. Perrin, E. Romatet, and J. C. Jeannet. Application of the picosecond ultrasonic technique to the study of elastic and time-resolved thermal properties of materials. *Ultrasonics*, 35 :223–231, 1997. (Cité en page 17.)
- [24] J.-Y. Duquesne and B. Perrin. Ultrasonic attenuation in a quasicrystal studied by picosecond acoustics as a function of temperature and frequency. *Phys. Rev. B*, 68 :134205, Oct 2003. (Cité en pages 17 et 54.)
- [25] Mehrdad Nikoonahad, Shing Lee, and Haiming Wang. Picosecond photoacoustics using common-path interferometry. *Applied Physics Letters*, 76(4) :514, 2000. (Cité en page 17.)
- [26] D. H. Hurley and O. B. Wright. Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer. *Optics Letters*, 24(18) :1305–1307, 1999. (Cité en page 17.)
- [27] C. J. K. Richardson, J. Ehrlich, and J. W. Wagner. Interferometric detection of ultrafast thermoelastic transients in thin films : theory with supporting experiment. *Journal of the optical society of America - optical physics*, 16(6) :1007–1015, 1999. (Cité en page 17.)
- [28] A. Vertikov, M. Kuball, A. V. Nurmikko, and H. J. Maris. Time-resolved pump-probe experiments with subwavelength lateral resolution. *Applied Physics Letters*, 69(17) :2465, 1996. (Cité en page 17.)
- [29] P. Siry, L. Belliard, and B. Perrin. Picosecond acoustics with very high lateral resolution. *Acta Acustica united with Acustica*, 89(6) :925–929, 2003. (Cité en page 17.)
- [30] R. M. White. Generation of elastic waves by transient surface heating. *Journal of Applied Physics*, 34(12) :3559, 1963. (Cité en page 18.)



-
- [31] H. J. Maris, and G. Tas. Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 49(21) :15046–15054, 1994. (Cité en page 18.)
- [32] H. N. Lin, H. J. Maris, L. B. Freund, K. Y. Lee, H. Luhn, and D. P. Kern. Study of vibrational modes of gold nanostructures by picosecond ultrasonics. *Journal of Applied Physics*, 73(1) :37–45, 1993. (Cité en page 18.)
- [33] V. Gusev, and O. B. Wright. Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals. *Phys. Rev. B*, 57(5) :2878–2888, 1998. (Cité en page 18.)
- [34] O. B. Wright. Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Phys. Rev. B*, 49(14) :9985–9988, 1994. (Cité en page 18.)
- [35] O. B. Wright, and V. Gusev. Ultrafast acoustic phonon generation in gold. *Physica B-Condensed Matter*, 219(20) :770–778, 1996. (Cité en page 18.)
- [36] T. Saito, O. Matsuda, and O. B. Wright. Ultrafast acoustic phonon pulse generation in chromium. *Physica B-Condensed Matter*, 2002. (Cité en page 18.)
- [37] Bernard Bonello, Bernard Perrin, and Clément Rossignol. Photothermal properties of bulk and layered materials by the picosecond acoustics technique. *Journal of Applied Physics*, 83(6) :3081–3088, 1998. (Cité en page 18.)
- [38] G. Andrew Antonelli, Humphrey J. Maris, Sandra G. Malhotra, and James M. E. Harper. Picosecond ultrasonics study of the vibrational modes of a nanostructure. *Journal of Applied Physics*, 91(5) :3261–3267, 2002. (Cité en page 18.)
- [39] O. Matsuda, T. Tachizaki, T. Fukui, J. Baumberg, and O. Wright. Acoustic phonon generation and detection in GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As quantum wells with picosecond laser pulses. *Physical Review B*, 71(11) :1–13, March 2005. (Cité en page 18.)
- [40] A. Devos, F. Poinsotte, J. Groenen, O. Dehaese, N. Bertru, and A. Ponchet. Strong generation of coherent acoustic phonons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :207402, May 2007. (Cité en page 18.)
- [41] H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc, and B. Abeles. Time-resolved study of vibrations of a-Ge :h/a-Si :H multilayers. *Phys. Rev. B*, 38 :6066–6074, Sep 1988. (Cité en page 18.)
- [42] Wei Chen, Yu Lu, Humphrey J. Maris, and Gang Xiao. Picosecond ultrasonic study of localized phonon surface modes in Al/Ag superlattices. *Phys. Rev. B*, 50 :14506–14515, Nov 1994. (Cité en page 18.)
- [43] B. Perrin, B. Bonello, J.-C. Jeannet, and E. Romatet. Picosecond ultrasonics study of metallic multilayers. *Physica B : Condensed Matter*, 219-220 :681–683, April 1996. (Cité en pages 18 et 63.)
- [44] E. Romatet and B. Bonello. Étude des propriétés élastiques de multicouches métalliques par une méthode d’acoustique picoseconde. *Le Journal de physique*, 6 :143, 1996. (Cité en pages 18 et 63.)
- [45] R. N. Kini, A. J. Kent, N. M. Stanton, and M. Henini. Generation and detection of terahertz coherent transverse-polarized acoustic phonons by ultrafast optical excitation of GaAs/AlAs superlattices. *Applied Physics Letters*, 88(13) :134112, 2006. (Cité en page 18.)

BIBLIOGRAPHIE

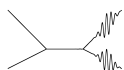
- [46] A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti, B. Jusserand, and A. Lemaître. Optical excitation and detection of terahertz acoustic waves with semiconductor superlattices. *Journal of Physics : Conference Series*, 214 :012047, March 2010. (Cité en pages 18 et 19.)
- [47] H.-Y. Hao and H. J. Maris. Study of phonon dispersion in silicon and germanium at long wavelengths using picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :5556–5559, Jun 2000. (Cité en page 19.)
- [48] H.-Y. Hao and H. J. Maris. Dispersion of the long-wavelength phonons in *Ge*, *Si*, *GaAs*, quartz, and sapphire. *Phys. Rev. B*, 63 :224301, May 2001. (Cité en page 19.)
- [49] Wisit Singhsomroje and Humphrey J. Maris. Generating and detecting phonon solitons in MgO using picosecond ultrasonics. *Phys. Rev. B*, 69 :174303, May 2004. (Cité en page 19.)
- [50] M.G. Holland. Analysis of lattice thermal conductivity. *Physical Review*, 132(6), 1963. (Cité en page 19.)
- [51] P. G. Klemens. The Thermal Conductivity of Dielectric Solids at Low Temperatures (Theoretical). *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 208(1092) :108–133, August 1951. (Cité en page 19.)
- [52] J. M. Ziman. *Electrons and Phonons*. 1960. (Cité en pages 19, 112, 115 et 116.)
- [53] R.I. Cottam and G.A. Saunders. Ultrasonic attenuation in GaAs from 2K to 300K. *Journal of Physics C : Solid State ...*, 2447, 1974. (Cité en page 19.)
- [54] A. J. Kent, N. M. Stanton, L. J. Challis, and M. Henini. Generation and propagation of monochromatic acoustic phonons in gallium arsenide. *Applied Physics Letters*, 81(18) :3497, 2002. (Cité en pages 19, 143, 144, 145 et 184.)
- [55] J. Sapriel, J. C. Michel, J. C. Tolédano, R. Vacher, J. Kervarec, and A. Regreny. Light scattering from vibrational modes in GaAs – Ga_{1-x}Al_xAs superlattices and related alloys. *Phys. Rev. B*, 28 :2007–2016, Aug 1983. (Cité en page 19.)
- [56] Jose Menendez and Manuel Cardona. Temperature dependence of the first-order Raman scattering by phonons in Si, Ge, and $\alpha - \text{Sn}$: Anharmonic effects. *Phys. Rev. B*, 29 :2051–2059, Feb 1984. (Cité en page 19.)
- [57] Wei Chen and HJ Maris. Attenuation and velocity of 56 GHz longitudinal phonons in gallium arsenide from 50 to 300 K. *Philosophical Magazine Part B*, 70(3) :37–41, 1994. (Cité en page 19.)
- [58] C. Thomsen, H. Grahn, H. Maris, and J. Tauc. Picosecond interferometric technique for study of phonons in the Brillouin frequency range. *Optics communications*, 60(1-2) :55–58, 1986. (Cité en page 31.)
- [59] Neil. W Ashcroft and David N. Mermin. *Solid State Physics*. 1976. (Cité en pages 32 et 117.)
- [60] Stéphane Laborde. *Acoustique picoseconde dans les multicouches métalliques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2006. (Cité en page 32.)



-
- [61] S. Babilotte. *Génération et détection par impulsion optique femtoseconde de phonons acoustiques cohérents dans le semi-conducteur piézo-électrique d'arséniure de gallium*. PhD thesis, Université du Maine, 2010. (Cité en pages 34 et 36.)
 - [62] O. Wright, B. Perrin, O. Matsuda, and V. Gusev. Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond acoustic pulses. *Physical Review B*, 64(8) :081202, August 2001. (Cité en pages 34 et 36.)
 - [63] H. J. Maris. *Physical Acoustics*. Academic Press, New York, 1971. (Cité en pages 35, 112, 116 et 129.)
 - [64] D. F. Nelson and M. Lax. Theory of photoelastic interaction. *Journal of the optical society of America*, 60(11) :1542, 1970. (Cité en page 37.)
 - [65] P. Babilotte, P. Ruello, D. Mounier, T. Pezeril, G. Vaudel, M. Edely, J-M. Breteau, V. Gusev, and K. Blary. Femtosecond laser generation and detection of high-frequency acoustic phonons in GaAs semiconductors. *Phys. Rev. B*, 81 :245207, Jun 2010. (Cité en page 41.)
 - [66] Emil Wolf and Max Born. *Principles of optics*. 1959. (Cité en pages 48 et 88.)
 - [67] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, and J.-C. Jeannet. Interferometric detection in picosecond ultrasonics. *Physica B : Condensed Matter*, 263(0) :571 – 573, 1999. (Cité en page 54.)
 - [68] Thomas Hochrein, Rafal Wilk, Michael Mei, Ronald Holzwarth, Norman Krumbholz, and Martin Koch. Optical sampling by laser cavity tuning. *Opt. Express*, 18(2) :1613–1617, Jan 2010. (Cité en page 56.)
 - [69] K. Takasago K. Kobayashi A. Endo K. Torizuka M. Washio F. Kannari T. Miura, and H. Nagaoka. Active synchronization of two mode-locked lasers with optical cross correlation. *Applied Physics B*, 75 :19–23, 2002. (Cité en page 56.)
 - [70] Takashi Aono, Yukihiro Tanaka, and Shin-ichiro Tamura. Surface phonons in one-dimensional periodic superlattices. *Physica B : Condensed Matter*, 263-264 :98–101, March 1999. (Cité en page 63.)
 - [71] B. M. Clemens and G. L. Eesley. Relationship between interfacial strain and the elastic response of multilayer metal films. *Physical Review Letters*, 61(20) :2356–2359, 1988. (Cité en page 63.)
 - [72] W. Chen, Yu Lu, H. Maris, and G. Xiao. Picosecond ultrasonic study of localized phonon surface modes in Al/Ag superlattices. *Physical Review B*, 50(19) :506–515, 1994. (Cité en page 63.)
 - [73] Nen-Wen Pu and Jeffrey Bokor. Study of Surface and Bulk Acoustic Phonon Excitations in Superlattices using Picosecond Ultrasonics. *Physical Review Letters*, 91(7) :076101, August 2003. (Cité en page 63.)
 - [74] H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc, and B. Abeles. Time-resolved study of vibrations of a-Ge : H/a-Si : H multilayers. *Physical Review B*, 38(9), 1988. (Cité en page 63.)
 - [75] P. Basseras, S. M. Gracewski, G. W. Wicks, and R. J. D. Miller. Optical generation of high-frequency acoustic waves in $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ periodic multilayer structures. *Journal of Applied Physics*, 75(6) :2761, 1994. (Cité en page 63.)

BIBLIOGRAPHIE

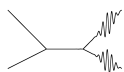
- [76] Y. A. Goldberg. *Handbook on Semiconductor Parameters* Volume 2, Chapitre 1 Aluminium Gallium Arsenide. (Cité en page 67.)
- [77] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Wiley-Interscience. 1988. (Cité en page 67.)
- [78] A. Devos and C. Lerouge. Evidence of laser-wavelength effect in picosecond ultrasonics : Possible connection with interband transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :2669–2672, Mar 2001. (Cité en page 71.)
- [79] A. Devos and A. Le Louarn. Strong effect of interband transitions in the picosecond ultrasonics response of metallic thin films. *Phys. Rev. B*, 68 :045405, Jul 2003. (Cité en page 71.)
- [80] D. S. Chemla. Two-dimensional semiconductors : recent development. *Journal of Luminescence*, 30 :502–519, 1985. (Cité en page 73.)
- [81] P. Hawker, A. J. Kent, L. J. Challis, A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Koehler. Observation of coherent zone-folded acoustic phonons generated by Raman scattering in a superlattice. *Applied Physics Letters*, 77(20) :3209, 2000. (Cité en page 74.)
- [82] J. S. Blakemore. Semiconducting and other major properties of gallium arsenide. *Journal of Applied Physics*, 53(10) :R123, 1982. (Cité en page 74.)
- [83] F. Reveret. *Etude du couplage fort par spectroscopie optique dans des microcavités GaN élaborées sur silicium*. PhD thesis, Laboratoire des Sciences et Matériaux pour l'Electronique, et d'Automatique, 2008. (Cité en page 89.)
- [84] A. Fainstein, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, and B. Perrin. Strong Optical-Mechanical Coupling in a Vertical GaAs/AlAs Microcavity for Subterahertz Phonons and Near-Infrared Light. *Physical Review Letters*, 110(3) :037403, January 2013. (Cité en pages 99 et 100.)
- [85] N. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Perrin, B. Jusserand, L. Largeau, O. Mauguin, and A. Lemaitre. Enhanced optical generation and detection of acoustic nanowaves in microcavities. *Physical Review B*, 83(20) :1–4, May 2011. (Cité en pages 99 et 100.)
- [86] P. G. Klemens. *Solid State Physics : Advances in Research and Applications*, 7, 1958. (Cité en page 112.)
- [87] R. E. Peierls. *Quantum Theory of Solids*. 1955. (Cité en page 112.)
- [88] M. Lax, V. Narayanamurti, P. Hu, and W. Weber. Lifetimes of high frequency phonons. *J. Phys. Colloques*, 42 :C6–161–C6–163, 1981. (Cité en page 112.)
- [89] Shin-ichiro Tamura. Isotope scattering of large-wave-vector phonons in GaAs and InSb : Deformation-dipole and overlap-shell models. *Physical Review B*, 30(2) :849–854, 1984. (Cité en page 112.)
- [90] H. J. Maris. Attenuation of Ultra-high-frequency Acoustic Waves in Quartz at Low Temperatures. *Nature*, 1963. (Cité en page 112.)
- [91] G. P. DeVault and R. J. Hardy. Lowest-Order Contributions to the Lattice Viscosity. *Physical Review*, 155(3) :869–874, 1967. (Cité en page 112.)



-
- [92] E. Fermi, J. Pasta, and S. Ulam. Studies of nonlinear problems. 1955. (Cité en page 112.)
- [93] L. D. Landau and G. Rumer. Absorption of sound in solids. 1937. (Cité en pages 112 et 120.)
- [94] A. Akheiser. *J. phys. (URSS)*, 1 :277, 1939. (Cité en page 112.)
- [95] C. Herring. Role of low-energy phonons in thermal conduction. *Physical Review*, 95(4), 1954. (Cité en pages 113, 127, 171 et 175.)
- [96] S. Simons. The absorption of very high frequency sound in dielectric solids. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 53(03) :702–716, 1957. (Cité en pages 113, 133, 171 et 174.)
- [97] S. Tamura and H. J. Maris. Temperature dependence of phonon lifetimes in dielectric crystals. *Physical Review B*, 51(5), 1995. (Cité en pages 113 et 159.)
- [98] A. Akhiezer. On the Absorption of Sound in Solids. *J. Phys. (URSS)*, 1 :277, 1939. (Cité en page 114.)
- [99] T. O. Woodruff and H. Ehrenreich. Absorption of sound in insulators. *Physical Review*, 566(5), 1961. (Cité en page 114.)
- [100] B. Perrin. Two contributions of the temperature Green’s function approach in the study of linewidth broadening in molecular crystals. *Studies in Physical and Theoretical Chemistry*, 46(105), 1987. (Cité en page 114.)
- [101] B. Perrin. *Interactions phonon-phonon dans les cristaux moléculaires. Etude théorique et analyse expérimentale au moyen de techniques ultrasonores*. PhD thesis, Paris, 1987. (Cité en page 114.)
- [102] B. Perrin. Anharmonic processes in molecular crystals. *Phonon Physics*, S. Hunklinger, W. Ludwig and, G. Weiss eds., *World Scientific*, 1(17), 1989. (Cité en page 114.)
- [103] A. A. Maradudin and A. E. Fein. Scattering of neutrons by an anharmonic crystal. *Physical Review*, 128(6) :2589–2608, 1962. (Cité en page 116.)
- [104] Lev Landau and Evguéni Lifchitz. *Physique théorique*. 1975. (Cité en page 117.)
- [105] Charles Kittel. *Introduction to solid state physics*. Wiley : New York, 1953. (Cité en page 117.)
- [106] J. W. Tucker and V. W. Rampton. *Microwave Ultrasonics in Solid State Physics*. North-Holland, Amsterdam, 1972. (Cité en page 120.)
- [107] E. W. Kellermann. Theory of the Vibrations of the Sodium Chloride Lattice. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 238(798) :513–548, May 1940. (Cité en page 121.)
- [108] K. Kunc. Lattice dynamics of zincblende structure compounds using deformation-dipole model and rigid ion model. *Computer Physics Communications* 16(02) :181–197, 1979. (Cité en pages 121 et 164.)
- [109] D. Strauch and B. Dorner. Phonon dispersion in GaAs. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 2(06) :1457–1474, 1989. (Cité en pages 121, 129, 134, 165, 168, 191 et 207.)

BIBLIOGRAPHIE

- [110] Stefano Baroni and Stefano De Gironcoli. Phonons and related crystal properties from density-functional perturbation theory. *Reviews of Modern Physics*, 73(02) :515–562, 2001. (Cité en pages 121 et 164.)
- [111] K. Jakata and A. Every. Determination of the dispersive elastic constants of the cubic crystals Ge, Si, GaAs, and InSb. *Physical Review B*, 77 :174301, 2008. (Cité en page 121.)
- [112] D. P. DiVincenzo. Dispersive corrections to continuum elastic theory in cubic crystals. *Physical Review B*, 34(8) :5450–5465, 1986. (Cité en page 121.)
- [113] Bernard Perrin. *Etude des manifestations de l'acoustique non linéaire et de ses relations avec les propriétés anharmoniques dans les cristaux isolants*. 1978. (Cité en page 123.)
- [114] R. Orbach. On the scattering of phonons by spins at low temperatures theoretical. *Philosophical Magazine*, 5(60) :1303–1307, 1960. (Cité en page 129.)
- [115] Giorgia Fugallo, Michele Lazzeri, Lorenzo Paulatto, and Francesco Mauri. *Ab initio* variational approach for evaluating lattice thermal conductivity. *Phys. Rev. B*, 88 :045430, Jul 2013. (Cité en page 159.)
- [116] Lorenzo Paulatto, Francesco Mauri, and Michele Lazzeri. Anharmonic properties from a generalized third-order *ab initio* approach : Theory and applications to graphite and graphene. *Phys. Rev. B*, 87 :214303, Jun 2013. (Cité en page 159.)
- [117] G. Gilat and L. J. Raubenheimer. Accurate numerical method for calculating frequency-distribution functions in solids. *Physical Review*, 144(2) :390–395, 1966. (Cité en page 162.)
- [118] Jelena Sjakste, Valeriy Tyuterev, and Nathalie Vast. *Ab initio* study of Γ X intervalley scattering in GaAs under pressure. *Physical Review B*, 74(23) :235216, December 2006. (Cité en page 164.)
- [119] Shin-ichiro Tamura. Anomalously long lifetimes of high-energy surface acoustic phonons. *Physical Review B*, 30(2) :610–617, 1984. (Cité en page 184.)
- [120] Zhao Wang, Shidong Wang, Sergey Obukhov, Nathalie Vast, Jelena Sjakste, Valery Tyuterev, and Natalio Mingo. Thermoelectric transport properties of silicon : Toward an *ab initio* approach. *Phys. Rev. B*, 83 :205208, May 2011. (Cité en page 190.)
- [121] Third order elastic constants of gallium arsenide. *Solid State Communications*, 4(9) :467 – 468, 1966. (Cité en page 211.)
- [122] Jacob Philip and M. A. Breazeale. Third-order elastic constants and Gruneisen parameters of silicon and germanium between 3K and 300K. *Journal of Applied Physics*, 54(2) :752–757, 1983. (Cité en page 211.)



Résumé

Ce manuscrit porte sur l'étude de transducteur acoustique couvrant la plage de fréquence allant de 100 GHz à 1 THz. Un laser impulsif picoseconde est à l'origine de ces hautes fréquences. Les structures utilisées pour la génération sont un empilement bicouche *GaAs/AlAs*. La sensibilité de génération et de détection d'onde acoustique en fonction de la longueur d'onde est étudiée expérimentalement. Afin d'améliorer l'efficacité de transduction, une micro-cavité optique est utilisée pour augmenter l'interaction entre le rayonnement laser et le super-réseau. Ces transducteurs opto-acoustiques sont utilisés pour mesurer les temps de vie des phonons subterahertz et terahertz. Une anomalie dans le comportement en fréquence des temps de vie a été mise en évidence dans l'arséniure de gallium. L'utilisation de courbes de dispersion issues de calculs *ab initio* associée à l'approche de Landau-Rumer pour les temps de vie ultra-sonores permet d'expliquer ce comportement inattendu.

Mots-clefs : Transducteur - opto-acoustique - phonon - terahertz - gigahertz - super-réseau - puits quantiques - cavité optique - photo-luminescence - Landau-Rumer - temps de vie - *ab initio* - méthode numérique - arséniure de gallium.

Abstract

This study focuses on acoustic transduction in frequencies ranging from 100 GHz to 1 THz. A picosecond pulsed laser was used to generate and detect high frequency phonons. These transducers are a two-layers pileup of *GaAs/AlAs* gathered in one superlattice. The optical wave-length sensitivity was experimentally studied. To improve the transduction efficiency, an optical micro cavity was used to increase the interaction between radiation and superlattice. These light-to-sound transducers were used to measure subterahertz and terahertz phonons' lifetime. An anomaly in lifetime frequency dependence was observed in gallium arsenide. Dispersion relation from *ab initio* calculation coupled with Landau-Rumer phonon lifetime theory fully explain this unexpected anomaly.

Key words : Transducer - light-to-sound - phonon - terahertz - gigahertz - superlattice - quantum well - optical cavity - photoluminescence - Landau-Rumer - lifetime - *ab initio* - computational method - gallium arsenide.
