



HAL
open science

Quelques aspects de l'acoustique aux fréquences sub-terahertz : transduction opto-acoustique et atténuation sonore

Agnès Huynh

► **To cite this version:**

Agnès Huynh. Quelques aspects de l'acoustique aux fréquences sub-terahertz : transduction opto-acoustique et atténuation sonore. Acoustique [physics.class-ph]. Sorbonne Université, 2022. tel-03940189

HAL Id: tel-03940189

<https://hal.science/tel-03940189v1>

Submitted on 16 Jan 2023

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.

Habilitation à diriger des recherches

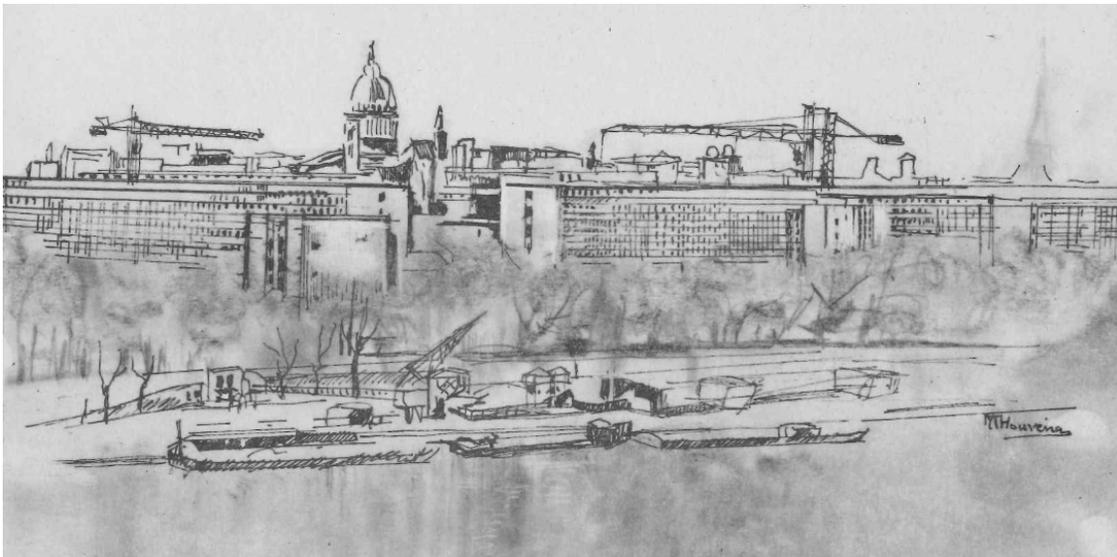
Sorbonne Université

Agnès Huÿnh

**Quelques aspects de l'acoustique aux fréquences sub-terahertz :
transduction opto-acoustique et atténuation sonore**

Soutenue le 26 octobre 2022 devant le jury composé de :

Mme Sarah BENCHABANE	Directrice de recherche, Institut FEMTO, Besançon	rapporteure
M. Frédéric DECREMPS	Professeur, IMPMC, Sorbonne Université	
Mme Natalia DEL FATTI	Professeure, UCBL, Université de Lyon	rapporteure
Mme Marie FORÊT	Professeure, LCC, Université de Montpellier	
M. Anaël LEMAÎTRE	Chercheur ENPC, Laboratoire Navier, Champ/Marne	
M. Pascal RUELLO	Professeur, IMMM, Université du Mans	rapporteur



Enseignement

192h annuels d'enseignement à l'université Pierre et Marie Curie (et un an à l'université Paris 7) hormis les années de congé maternité (décharge partielle puis totale), et l'année 2016-17 à 80% (153h)

- 1^{ère} année de médecine (TD, correction du concours de 1^{ère} année) (80h - 4 ans)
- Travaux dirigés, travaux pratiques et interrogations orales en L1 (36 à 96h).
Énergie et entropie (40 à 54h - 6 ans) / Matière et énergie (36 à 96h - 4 ans) / Mécanique physique (64 à 104h - 3 ans)

- Participation aux groupes de travail pour l'élaboration des TDs et des TPs des UE Mécanique physique 1 et 2

- Physique expérimentale (TD cours 20h / TP 60h) en L2 (1 an)
- Physique pour la préparation au concours B ENSA en L2 (cours 12h/ TD 18h) et L3 (5h) (3 ans)
- Encadrement de projets expérimentaux et formation expérimentale en optique en L3 et L3 du magistère interuniversitaire (MIP puis FIP) (32 à 56h - 6 ans)

- Encadrement de projets expérimentaux en optique en M1 au magistère Phytem (38h - 5 ans)
- Travaux Dirigés en M1 électrons dans les solides (20h - 7 ans)
- Cours et TDs en M1 électrons dans les solides à distance (20h - 2 ans)
- Travaux pratiques en M1 Physique expérimentale des lasers (12h - 2 ans)

- Préparation à l'agrégation de sciences physiques (96h - 8 ans) :
Travaux dirigés, travaux pratiques
Correction de l'épreuve de « montages », correction d'agrégations blanches (épreuve A « question de cours » et C « problème »)
Responsable de la bibliothèque du centre de préparation de l'agrégation à Montrouge
- Cours d'option en M2 ACPHY (16h - 3 ans)
- Travaux pratiques au master professionnel M2 LMMB puis MIO (20 à 28h - 4 ans) et au master M2 recherche LUMMEX) (8h - 2 ans)
- Tutorat de stage en M2 LMMB/MIO (2 ans)
- Soutenances de stages M2 SMNO

Encadrement

- Maha Maghrebi (Thèse Tunisie, 1 mois en 2000)
- Sorin Tanaze-Nicola (co-encadrement, maîtrise MIP en 2000)
- Sanae Boulay (Maîtrise Paris 6, stage d'1 mois en juillet 2001)
- Olof Larsson (dernière année d'université, Suède, stage de 6 mois, en 2001-2002)
- Yannick Guillet (Co-encadrement, DEA de physique des solides, stage de 6 semaines 2004)
- Daniel Lanzillotti Kimura 25% (Co-encadrement avec B. Perrin, thèse en cotutelle avec l'Argentine 2005-2009) directeur de thèse en France : B. Perrin, et en Argentine : A. Fainstein.

- Mohamed Boukhicha (M2 Sciences des Matériaux et Nano-objets (SMNO), stage de 6 mois en 2009)
- Romain Legrand 50% (Co-encadrement avec B. Perrin, thèse 2010-2013).
- Clémence Gringeau (Co-encadrement, Post-doc de 1 an, 2013)
- Pierre Gehanne (Co-encadrement, Stage de L3 Phytem, juin/juillet 2013)
- Naila Bétatache (Stage de M1, avril/juin 2022)

Autres activités de formation et de vulgarisation scientifique

- Participation à la fête de la Science (Accueil des visiteurs le weekend, stand, encadrement d'ateliers pour les écoles primaires), participation à un film sur la physique quantique à l'INSP (2021 : <https://www.sorbonne-universite.fr/mysteres-quantiques-dans-les-nanosciences>)
- Accueil des collégiens et lycéens en stage de 3e et 2nde
- Participation à une table ronde sur les métiers de la recherche (2012-2013) (Magistère de physique, université Paris XI)
- Participation au comité de thèse de Adil Ayouch (2009-2012), effectuée au laboratoire de Physique de l'état condensé (Le Mans - directeur de thèse P. Ruello).
- Participation au comité de suivi de thèse de Charles Vernier (2021-), effectuée au laboratoire Monaris (Sorbonne Université - directeur de thèse H. Portalès).
- Participation au jury de thèse de Rhuize Gu (27 juin 2022), effectuée à l'institut des molécules et matériaux du Mans (Le Mans - directeur de thèse P. Ruello)
- Participation au comité de thèse de Aurélie Poirier (2022-), effectuée à l'institut des molécules et matériaux du Mans (Le Mans - directeur de thèse P. Ruello).
- Participation au jury de thèse de Amira Guédiche (décembre 2022), effectuée au CEA Le Ripault

Responsabilités

- Membre du conseil de l'UFR de physique de Sorbonne Université
- Membre de la commission IATSS de l'UFR de Sorbonne Université
- Porteur de l'ANR 2I2D2T (Ion intercalation in 2D materials for enhanced thermoelectric transport) (demande en cours)
- Responsable au niveau de l'INSP de l'ANR SONORE (2009-2012, coordinateur : S. Sauvage, IEF, Université Paris-sud, Orsay).
- Participation au comité local d'organisation du colloque international "12th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter" **PHONONS 2007**, (15-20/07/2007, Paris), ayant réuni 350 personnes.
- Participation à l'élaboration des actes de conférences de ce colloque.
- Membre du comité d'organisation (physical acoustics group), IEEE International Ultraso-

nics Symposium Board, (2021-...)

— Participation à des comités de sélection de maîtres de conférences (2021 : poste à l'IMMM, Le Mans)

Publications

1. C. Jordan, D. T. Fewer, J. F. Donegan, F. P. Logue, E. M. McCaben, A. Huynh, S Taniguchi, T. Hino, K. Nakano, A. Ishibashi, *Defect annealing in a II-VI laser diode structure under intense optical excitation*, Applied Physics Letters **72**, 194-196 (1998).
2. A. Huynh, J. Tignon, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Experimental determination of intrinsic non-linearities in semiconductor microcavities*, Physical Review B, **66** 113301 (2002).
3. A. Huynh, J. Tignon, O. Larsson, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Polariton parametric amplifier pump dynamics in the coherent regime*, Physical Review Letters **90**, 106401 (2003).
4. M. Müller, R. André, J. Bleuse, R. Romestain, Le Si Dang, A. Huynh, J. Tignon, Ph. Roussignol, C. Delalande, *Non-linear polariton dynamics in II-VI microcavities*, Semiconductor Science and Technology **18**, S319-24 (2003), Topical Issue « Microcavity Structures », J. Baumberg and L. Viña, éditeurs invités, Sarah Quin Publisher (Bristol, UK).
5. A. Huynh, J. Tignon, G. Keller, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Collision broadening in II-VI semiconductor microcavities*, Physical Review B, **68**, 165340 (2003).
6. A. Huynh, C. Diederichs, K. M. Dani, R. André, Le Si Dang, J. Tignon, *Parametric scattering in semiconductor microcavities probed by four-wave-mixing*, Chemical Physics **318**, 147 (2005).
7. L. Gendron, M. Carras, A. Huynh, V. Ortiz, C. Koeniguer, V. Berger, *Quantum Cascade Photodetector*, Applied Physics Letters **85**, 2824 (2004).
8. A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual-Winter, E. Peronne, A. Lemaître, *Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities*, Physical Review Letters **97**, 115502 (2006).
9. M. F. Pascual-Winter, G. Rozas, A Fainstein, B. Jusserand, B. Perrin, A. Huynh, P. O. Vaccaro S. Saravanan, *Selective optical generation of coherent acoustic nanocavity modes*, Physical Review Letters **98**, 265501 (2007).
10. N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard, A. Lemaître, *Coherent Generation of Acoustic Phonons in an Optical Microcavity*, Physical Review Letters **99**, 217405 (2007).
11. A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, A. Lemaître, *Sub-TeraHertz Monochromatic Acoustic Wave Propagation using Semiconductor Superlattices as transducers*, Physical Review B **78**, 233302 (2008).
12. L. Belliard, A. Huynh, B. Perrin, A. Michel, G. Abadias, C. Jaouen, *Elastic properties and phonon generation in Mo/Si superlattices*, Physical Review B **80**, 155424 (2009).

13. A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Lemaître, *TeraHertz coherent acoustic experiments with semiconductor superlattices*, Applied Physics Letters **99**, 191908 (2011).
14. A. Huynh, B. Perrin, A. Lemaître, *Semiconductor superlattices : a tool for terahertz acoustics*, Ultrasonics **56**, 66-79 (2015).
15. R. Legrand, A. Huynh, B. Jusserand, B. Perrin, A. Lemaître, *Direct measurement of coherent subterahertz acoustic phonons mean free path in GaAs*, Physical Review B **93**, 184304 (2016).
16. R. Legrand, A. Huynh, S. Vincent, B. Perrin, A. Lemaître, *Device for acoustic pulse echo experiments in the subterahertz range*, Physical Review B, **95** 014304 (2017).
17. A. Huynh, E. Péronne, C. Gingreau, X. Lafosse, A. Lemaître, B. Perrin, R. Vacher, B. Rufflé, M. Foret, *Temperature dependence of hypersound attenuation in silica films via picosecond acoustics*, Physical Review B, **96** 174206 (2017).

Actes de Conférence (avec comité de lecture)

1. C. Jordan, D. T. Fewer, J. F. Donegan, F. P. Logue, E. M. McCaben, A. Huynh, S Taniguchi, T. Hino, K. Nakano, A. Ishibashi, *Defect annealing in a II-VI laser diode structure under intense optical excitation*, Journal of Crystal Growth **184**, 585-586 (1998).
2. A. Huynh, J. Tignon, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Coherent dynamics of microcavity polaritons in the non-linear regime*, Physica E **13/2-4**, 427-431 (2002).
3. A. Huynh, J. Tignon, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Experimental determination of intrinsic non-linearities in semiconductor microcavities in the coherent regime*, Physica Status Solidi (a) **190**, 345-350 (2002).
4. A. Huynh, J. Tignon, O. Larsson, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Angle-dependant polariton collisional broadening in semiconductor microcavities*, Physica E. **17**, 459-60 (2003).
5. A. Huynh, J. Tignon, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *II-VI semiconductor microcavities angle-resolved coherent dynamics*, Physica Status solidi C **5**, 1401-4 (2003).
6. J. Tignon, A. Huynh, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Polariton parametric amplifier : pump dynamics in the coherent regime*, Physica Status Solidi A **201**, 633-40 (2004).
7. J. Tignon, A. Huynh, Ph. Roussignol, C. Delalande, R. Ferreira, R. André, R. Romestain, D. Le Si Dang, *Polariton parametric amplifier coherent dynamics*, Physica E **21**, 820-4 (2004).
8. N. D. Lanzillotti Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard and A. Lemaître, *Coherent generation of acoustic phonons in an optical microcavity*, Journal of Physics : Conference series **92**, 012016 (2007).
9. N. D. Lanzillotti Kimura, A. Huynh, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M.F. Pascual Winter, E. Peronne, A. Lemaître, *Sub-terahertz phonon dynamics in acoustic nanocavities*, Physics of Semiconductors : 28th International Conference on the Physics of Semiconductors-ICPS 2006 **893**, 131-1132 (2007).

10. A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, A. Lemaître, *Optical excitation and detection of terahertz acoustic waves with semiconductor superlattices*, Journal of physics : Conference Series **214**, 012047 (2010).
11. R. Legrand, A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Lemaître, *Photoelastic terahertz phonon detection by a semiconductor superlattice embedded in an optical microcavity*, International Journal of Thermophysics **34**, 1727 (2013)

Communications

Communications orales régulières à des colloques internationaux et nationaux (Phonons, International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, Acoustics, JMC, GDR Mephy ...) dont une conférence invitée en septembre 2020 ("Acoustic attenuation in crystalline and amorphous solids in the sub-THz frequency range via ultrafast optical techniques", IEEE International Ultrasonics Symposium)

Introduction

Confiner la lumière

J'ai abordé lors de ma thèse la thématique de l'interaction lumière matière dans des systèmes de basse dimensionnalité, à travers l'étude de l'émission lumineuse de nanostructures de semiconducteurs comme les boîtes quantiques, et celle de la dynamique de polaritons de microcavité. Dans ce dernier cas, l'état lié électron-trou d'un puits quantique inséré dans une cavité optique, l'exciton, se couple à un mode optique de la cavité et peut se trouver en régime de couplage fort : le couplage matière rayonnement n'est plus perturbatif mais l'émission d'un photon est réversible ; de nouveaux états propres apparaissent, les polaritons. La cavité optique permet ainsi de modifier fortement l'interaction entre la lumière et un exciton. Sans aller jusqu'au couplage fort, elle rend possible le contrôle de l'émission spontanée d'un émetteur. En effet, celle-ci n'est pas un phénomène intrinsèque mais dépend de l'environnement électromagnétique. Intervenant dans le fonctionnement de nombreux composants (diodes électroluminescentes, lasers à semi-conducteurs...), on a cherché à en améliorer l'efficacité en modifiant l'environnement électromagnétique par la présence d'un miroir ou d'une cavité, comme le proposait Purcel dès 1946 [1].

Avec les progrès effectués dans le domaine de la croissance et notamment de l'épitaxie par jet moléculaire (MBE) ou de l'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (MOCVD), on a pu fabriquer des miroirs de Bragg à base de semiconducteurs pour former des microcavités, puis des cristaux photoniques unidimensionnels (superréseaux). Une microcavité est donc un objet monolithique, miniature et monomode. L'étude de tels systèmes de basse dimensionnalité, avec un seul mode électromagnétique confiné, a mis en évidence des phénomènes variés comme le renforcement ou la localisation du champ électromagnétique, des résonateurs sans perte... Les premières études de microcavités de semiconducteurs contenant des hétérostructures qui possèdent une résonance excitonique datent de la fin des années 1990 [2]. On couple ainsi la lumière confinée avec des systèmes confinant les électrons (puits ou boîtes quantiques). L'intérêt de ces systèmes, outre le fait que la microcavité était considérée comme une brique indispensable pour de nouveaux émetteurs de lumière, était d'aider à comprendre la physique des hétérostructures pour des énergies voisines du gap. En effet, des phénomènes d'optique quantique ont pu être démontrés : la génération de photons uniques, la lumière comprimée, l'intrication d'états quantiques qui ont ouvert la voie à l'information quantique. Le couplage fort exciton - photon a permis des investigations de la physique des gaz de bosons dans un environnement à l'état solide. De plus, sont apparues quantités de dispositifs pour les télécommunications et l'affichage basés sur ces concepts (LEDs à microcavité, vertical cavity surface emitting lasers (VCSEL), des cristaux photoniques intégrés...).

Confiner les phonons ?

Des correspondances évidentes relient l'optique et l'acoustique : radar et sonar, microscopie optique et acoustique, impédance électrique et acoustique... Cette similitude vient du fait que la même équation d'onde régit le mouvement de d'atomes ou de molécules dans une onde acoustique ou l'oscillation des champs électrique et magnétique dans une onde lumineuse. D'un point de vue quantique, le quantum de lumière, le photon et celui de vibration, le phonon, obéissent tous deux aux règles qui régissent le comportement des bosons.

L'idée d'élaborer des matériaux composites périodiques qui agiraient sur le son, à l'instar des cristaux photoniques, a émergé dès les années 60 (1D [3]) et les cristaux phononiques ont été développés quelques années seulement après l'introduction des cristaux photoniques [4]. Ce sont des objets artificiels présentant une modulation périodique de leurs propriétés élastiques et leur interaction avec une onde acoustique est donc tout à fait similaire à celle que les cristaux photoniques ont avec une onde électromagnétique. On observe de même des bandes interdites, et si on insère des défauts dans la structure, il est possible de générer des modes de vibration dont la fréquence se situe dans une bande interdite. Les cristaux phononiques sont généralement étudiés à des fréquences acoustiques basses. En effet, leurs dimensions caractéristiques sont en général de l'ordre du millimètre et le fonctionnement se situe dans la gamme du kHz, jusqu'au MHz. La gamme du GHz est atteinte avec les ondes élastiques de surface : les oscillations de la surface d'un cristal phononique 1D, constitué de rangées de période $4\ \mu\text{m}$ ont pu être imagées jusqu'à la fréquence de 1 GHz [5].

Les multicouches, de périodicité spatiale 1D, constituent un système phononique modèle. Les superréseaux en particulier, dont la période est constituée d'une bicouche, bénéficient d'une compréhension profonde de leurs vibrations [6]. Il y a apparition d'une zone de Brillouin réduite associée à la nouvelle périodicité, et repliement de la dispersion acoustique avec une ouverture de bandes interdites en centre de zone et en bord de zone. L'amplitude des bandes interdites est gouvernée par le contraste d'impédance acoustique, paramètre qui joue le même rôle que le contraste d'indice pour les photons. Pour les phonons de fréquences situées dans ces bandes interdites, les superréseaux constituent des miroirs de Bragg. Tous les ingrédients sont là pour former des cavités Fabry-Pérot et étudier le confinement des phonons. L'idée est concevoir une « nanocavité » afin de manipuler le son à l'échelle nanométrique, c'est-à-dire à des fréquences approchant le THz.

Pourquoi les phonons hautes fréquences

Les ondes acoustiques de fréquence dans la gamme de la centaine de GHz jusqu'au THz, c'est-à-dire de longueur d'onde de la dizaine de nanomètres, jouent un rôle central dans les phénomènes de transport d'énergie et les processus de recombinaison dans les nanostructures de semiconducteurs. Le maximum de la distribution relative d'énergie acoustique à l'équilibre thermodynamique correspond à plusieurs térahertz à la température ambiante. Un grand nombre de dispositifs électroniques et optoélectroniques sont basés sur des hétérostructures de semiconducteurs (diode laser, diode à effet tunnel résonnant, transistors MOSFET contenant un gaz d'électrons 2D...) et les phonons acoustiques interviennent dans la relaxation des porteurs et donc sur l'efficacité des dispositifs. Comprendre le transport de phonons à l'échelle nanométrique et contrôler l'interaction des phonons avec les électrons et les photons permettraient d'améliorer leur fonctionnement, ainsi que d'explorer des phénomènes quantiques avec des microrésonateurs.

Ces phonons, d'énergie de quelques meV et de longueur d'onde du même ordre de grandeur que les états des porteurs, peuvent aussi sonder la structure électronique de dispositifs de semiconducteur de basse dimension. Par exemple, les phonons ballistiques se sont révélés être un outil très puissant pour sonder les systèmes bidimensionnels d'électrons dans le régime d'effet Hall quantique fractionnaire [7], pour sonder les états électroniques dans les fils quantiques [8] ou assister le courant tunnel dans des superréseaux de semiconducteurs [9].

Ainsi le domaine des vibrations avait été peu abordé dans le champ des nanosciences, en partie dû à la faible dimension caractéristique typique pour un effet sur les vibrations THz, autour du nanomètre. D'où l'idée de transposer la microcavité optique à une nanocavité confinant des phonons haute fréquence.

La plupart des travaux de simulation du comportement dynamique des dispositifs traitent l'interaction avec les phonons comme si ceux-ci n'étaient pas affectés par la structuration. Il a été finalement démontré [10] que, même en tenant compte de la forte modification du spectre de phonons acoustiques, les taux de couplage ne sont pas modifiés de manière significative. Les taux de diffusion dans des puits quantiques GaAs/AlAs sont en fait compris entre les taux de diffusion des électrons confinés par les phonons du GaAs massif et du AlAs massif. Il est vrai que dans les semiconducteurs usuels, les propriétés acoustiques ne sont pas très différentes. Cependant des effets photoniques importants sont obtenus avec des matériaux d'indices de réfraction proches, comme c'est le cas de GaAs et AlAs, avec l'exemple du miroir de Bragg GaAs/AlAs et des cavités Fabry-Pérot façonnées avec de tels miroirs. En s'inspirant du concept de la microcavité en optique, il avait été suggéré que le confinement des phonons sub-THz dans une structure spécifiquement résonnante, la nanocavité acoustique [11], pourrait engendrer des renforcements comparables à ceux qui ont été démontrés dans le cas des microcavités photoniques pour l'interaction lumière-matière, mais qui affecteraient dans ce cas les interactions photon-phonon et électron-phonon.

Ce fut le point de départ de l'étude des multicouches à base de bicouches, principalement GaAs/AlAs, pour essayer d'étudier des phonons dans la fenêtre difficile de la gamme subTHz. Le chapitre 1 présente comment des phonons acoustiques ont pu être confinés dans des structures de cavité et de superréseaux. Cette étude a de plus mis en lumière le manque de transducteurs acoustiques haute fréquence disponibles.

En effet, les techniques d'impulsions de chaleur évoquées précédemment (phonons ballistiques), produisant des phonons hors d'équilibre ont permis d'explorer le domaine du THz. Mais ces sources sont incohérentes et large bande, équivalentes à des lampes à incandescence. Disposer de sources de phonons hautes fréquences, monochromatiques et cohérentes serait très utile pour la spectroscopie des vibrations, pour étudier l'atténuation acoustique à des fréquences proches du THz, peu accessibles autrement, et pour l'imagerie acoustique avec une haute résolution. En effet, des paquets d'ondes acoustiques très localisés pourraient constituer des sondes idéales pour l'inspection en profondeur des propriétés élastiques, avec une résolution pouvant atteindre quelques nanomètres dans les meilleurs cas [12]; focaliser de tels paquets d'onde permettraient aussi de concentrer une grande quantité d'énergie. Les sources conventionnelles de phonons cohérents, comme les transducteurs piézoélectriques, introduits pour la première fois en 1916 par Paul Langevin, sont efficaces jusqu'à quelques dizaines de gigahertz et seules des géométries spéciales permettent d'atteindre 100 GHz [13]. Le développement des lasers impulsionsnels s'est accéléré dans les années 80-90, avec notamment l'apparition du Ti :Saphir et a permis le développement des techniques pompe sonde. Disposer d'impulsions lumineuses pouvant être aussi courtes que quelques dizaines de fs a rendu possible l'étude de phénomènes ultra-brefs, de dynamique de relaxations électroniques et de phéno-

mènes non-linéaires. La photo-génération de modes de vibration de hautes fréquences, à la fois des modes acoustiques [14, 15] mais aussi des modes optiques (dans GaAs [16]) a donné naissance à un domaine de recherche nommé par la suite acoustique picoseconde. Cette technique a été introduite il y a 20 ans au Département de Recherches Physiques à l'université Pierre et Marie Curie [17]. Il s'agit de créer une impulsion de phonons cohérents d'une durée de quelques picosecondes grâce à une impulsion laser (ps ou fs). L'interaction de cette impulsion « pompe » avec un film métallique déposé à la surface de l'échantillon crée une variation instantanée de contraintes, responsable de l'émission d'ondes acoustiques longitudinales. Une seconde impulsion laser « sonde » dont le temps d'arrivée est contrôlé par une ligne à retard, permet de détecter la modulation de la réflectivité par la présence ou non de l'onde acoustique précédemment créée [14], ou encore la déflexion du faisceau sonde [18, 19], ou le déplacement de la surface [17, 20]. Il s'est constitué un domaine de recherche autour de cette technique, consacré à l'étude de la génération (photogénération et diffusion thermique et électronique [21, 22, 23]), propagation (dispersion, solitons [24, 25, 26, 27], atténuation du son [28, 29]) et détection de ces ondes acoustiques et des propriétés élastiques de nanostructures [30]. Les fréquences atteintes par ces transducteurs opto-acoustiques que constituent ces films métalliques peuvent aller jusqu'à quelques centaines de GHz. C'est cette technique expérimentale que j'ai utilisée et adaptée depuis 2004.

Les structures de nanocavité et de superréseaux de phonons se sont révélées être d'excellents transducteurs pouvant atteindre le THz et l'étude de ces propriétés est présentée au chapitre 2. La connaissance acquise au fil de ces recherches a permis d'utiliser ces structures pour étudier l'atténuation des phonons dans cette gamme de fréquence, dans des matériaux massifs ou en couches minces. Le chapitre 3 est consacré à l'atténuation des ondes acoustiques dans GaAs, et le chapitre 4 détaille l'étude des phonons dans des couches de silice. Enfin le dernier chapitre présente quelques perspectives.

Chapitre 1

Confinement des phonons

L'équivalence formelle des équations décrivant la propagation de la lumière et du son a inspiré la conception de cristaux phononiques à 1D [31], 2D [32] et 3D [33], dans lesquels l'impédance acoustique est modulée artificiellement comme l'est l'indice optique dans les cristaux photoniques. Les démonstrations pratiques de ce concept ont été obtenues dans des structures macroscopiques avec une modification spectrale des ultrasons dans la plage du kilohertz et du megahertz. Cependant il est nécessaire d'aller à plus haute fréquence pour envisager une modification de l'interaction entre les ultrasons et la lumière ou les électrons. En effet, les phonons se propageant à une vitesse d'environ 5 ordres de grandeur plus faible que la lumière, leur longueur d'onde est d'autant plus faible et leur fréquence dans la gamme du GHz THz.

L'idée de l'équivalent du laser pour les phonons a émergé également très rapidement, au vu de la similitude entre les photons et les phonons, sans réalisation réelle (en 2004). Une des raisons est justement la faible valeur de la longueur d'onde du son, qui rend l'émission spontanée dominante sur l'émission stimulée, à moins de modifier la densité d'état de phonons grâce à des résonateurs acoustiques de très grande qualité [34]. Une amplification par émission stimulée a été démontrée dans une cavité acoustique formée par un cristal de rubis [35]. C'est pourquoi on s'est intéressé à la possibilité de confiner des phonons de haute fréquence avec une cavité Fabry-pérot de structure similaire à celles qui confinent les photons.

Grâce à l'épitaxie par jets moléculaires, qui permet le dépôt de matériaux avec une précision supérieure à la monocouche atomique, des empilements complexes 1D peuvent être réalisés avec des épaisseurs typiques de quelques dizaines de nanomètres, permettant d'atteindre les fréquences sub-THz. On a ainsi pu concevoir une nanocavité de phonons à base de miroirs de Bragg GaAs/AlAs. Le concept a été validé par Trigo *et al.* [11] avec l'observation du mode de cavité dans le spectre Raman. Cela a été rendu possible grâce à une géométrie particulière où la nanocavité est enserrée dans une microcavité optique. Cette mesure était indirecte, dans une structure complexe. Je présente ici la mesure directe de la transmission acoustique spectrale large bande par une nanocavité dans cette bande spectrale.

Je rappelle dans un premier temps le principe des miroirs de Bragg et justifie le choix des structures. J'évoque ensuite le principe de l'expérience d'acoustique picoseconde, développée dans une configuration originale pour effectuer la mesure de la transmission acoustique, avant de décrire les résultats dans les systèmes GaAs/AlAs et Mo/Si.

1.1 Miroir de Bragg acoustique (super-réseaux) et nanocavité

Pour parvenir à confiner des phonons acoustiques, on a recours à un confinement interférentiel, obtenu avec des miroirs de Bragg, qui sont des empilements périodiques de deux matériaux de paramètres acoustiques différents. Comme le rappelle l'annexe 6.1, ces empilements, de la même manière que les miroirs de Bragg optiques, conduisent à des interférences destructives en transmission à certaines fréquences, et se comportent donc comme des miroirs dont la réflectivité augmente avec le nombre de périodes de ce multicouche. Avec une vitesse de propagation des ondes acoustiques v de l'ordre de 5000 m s^{-1} , la longueur d'onde acoustique vaut environ 5 nm à 1 THz et les épaisseurs de couches nécessaires à la réalisation de tels miroirs acoustiques sont de quelques nanomètres.

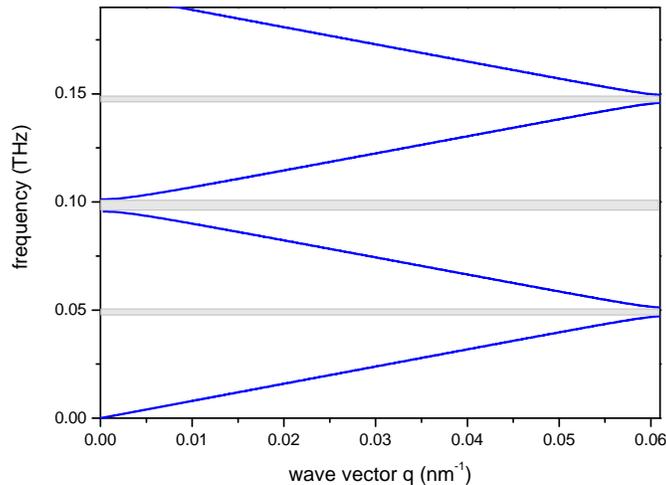


Figure 1.1 – Courbe de dispersion pour un superréseau de période 51 nm (échantillon SL100). Les bandes grisées montrent les bandes interdites situées autour de 50 , 100 et 150 GHz

La différence relative d'impédance (Z_1 et Z_2) des deux matériaux est responsable de l'apparition de bandes interdites dans la courbe de dispersion repliée des phonons (voir figure 1.1), correspondant à ces plages de fréquences où l'empilement est réfléchissant. Le paramètre de contraste $\epsilon = \frac{Z_1 - Z_2}{\sqrt{Z_1 Z_2}}$ caractérise cette différence. Des valeurs très diverses peuvent être obtenues suivant le choix des matériaux. Pour le couple GaAs/AlAs, que nous avons utilisé en raison de la qualité exceptionnelle des échantillons disponibles, le contraste n'est que de 18% , et de bons miroirs nécessitent des empilements comprenant 10 à 20 périodes. On appelle alors souvent ces miroirs des super-réseaux (SL). Pour le couple Mo/Si, quelques périodes suffisent avec un paramètre $\epsilon = 1,36$ élevé.

En combinant deux miroirs, on réalise une cavité résonante que l'on appelle nanocavité en raison de la dimension de la cavité (quelques dizaines de nanomètres¹). Le principe est le même que celui d'un résonateur Fabry-Pérot avec un seul mode confiné. Celui-ci se traduit par un pic de transmission dans la bande de réflectivité acoustique, au centre pour la bande interdite optimisée. Dans les bandes interdites peuvent aussi exister des modes localisés de surface, lorsque le SL débute (côté air) par la couche de plus grande impédance (voir annexe 6.1). Notons que ce cas ne se

1. pour l'échantillon C1 : 23 nm pour la cavité $\lambda/2$ de fréquence 100 GHz , pour l'échantillon C2 : 36 nm pour la cavité $3\lambda/2$ de fréquence 200 GHz

rencontre pas pour les SLs GaAs/AlAs.

La transmission acoustique peut être calculée à l'aide de matrices de transfert, où l'on évalue de proche en proche le déplacement de l'interface et la contrainte à l'aide des relations de continuité. Un exemple est donné figure 1.2 pour un super-réseau de 10 ou de 20 périodes (correspondant à l'échantillon référencé SL100) et pour la nanocavité C1. La transmission résiduelle passe de 11% à 0.3% quand le nombre de couches du miroir est doublé de 10 à 20. On s'attend à une largeur d'environ 1 GHz pour le mode de cavité.

Les échantillons ont été épitaxiés au LPN (Laboratoire de photonique et de nanostructures, maintenant C2N - Paris Saclay) par épitaxie par jets moléculaires (molecular beam epitaxy MBE) par Aristide Lemaître et caractérisés notamment par Olivia Mauguin.

Les premières structures étudiées sont une nanocavité constituée de 2 miroirs de 10 périodes chacun (C1), et un simple miroir de 20 périodes (SL100). La période est formée par les couches ($3\lambda_1/2, \lambda_2/2$) de GaAs et AlAs avec $\lambda_1 = 47,3$ nm et $\lambda_2 = 56,5$ nm, correspondant aux longueurs d'onde dans GaAs et AlAs pour une onde acoustique de 100 GHz. Ce rapport d'épaisseurs optimise la seconde bande interdite (voir annexe 6.1) qui se situe autour de cette fréquence. Le choix de cette fréquence, assez basse, est motivée par l'absence de transducteurs de phonons sub-THz. Nous utilisons des transducteurs constitués par un film métallique, dont le fonctionnement est optimal pour une plage de fréquences autour de 100 GHz.

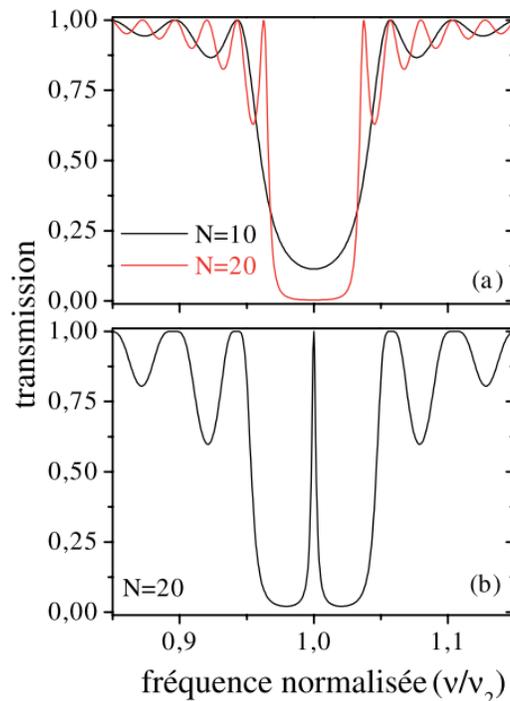
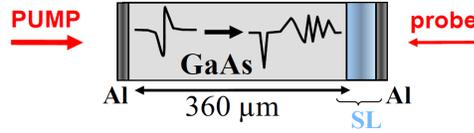


Figure 1.2 – Transmission acoustique (en terme de déplacement d'interface) calculée au voisinage de la première bande interdite en centre de zone pour des miroirs (a) et une cavité (b) (le cas $N=20$ correspond au miroir SL100 et la cavité, à la cavité C1 avec $\nu_2 = 100$ GHz) [36]

Figure 1.3 – Principe de la mesure de la transmission acoustique sur un échantillon comportant un SL ou une cavité sur son substrat, et où ont été déposés deux films d'aluminium de part et d'autre.



1.2 Transmission acoustique

1.2.1 Principe de l'expérience

L'expérience décrite ici est destinée à mesurer le spectre de transmission acoustique d'un miroir et d'une cavité acoustique. Elle a constitué la première démonstration directe de l'existence du pic de transmission associé à un mode de phonon de cavité. Cette mesure permet de souligner les spécificités et difficultés des expériences d'acoustique au delà de quelques GHz.

En effet, la similitude des ondes acoustiques avec la lumière ne doit pas faire oublier quelques différences notables, outre l'ordre de grandeur des vitesses. Le son a besoin d'un milieu pour se propager contrairement à la lumière. La rupture d'impédance entre l'air et le solide constitué par l'échantillon empêche presque toute transmission, et il est donc nécessaire de disposer d'un ensemble monolithique comprenant la source de phonons, l'objet à étudier, et le détecteur. Dans notre cas, la génération et la détection des phonons acoustiques sont basées sur la transduction de l'énergie lumineuse provenant d'impulsions laser, en énergie mécanique via des films métalliques déposés sur l'échantillon (voir le schéma 1.3).

L'impulsion laser « pompe » absorbée par le film métallique sur une faible épaisseur, est responsable d'un échauffement rapide suivi de la dilatation d'une épaisseur de métal correspondant en première approximation à la longueur de pénétration optique α^{-1} . Une impulsion acoustique cohérente est alors générée, de durée $(\alpha v)^{-1}$ où v est la vitesse du son dans le film métallique. De tels générateurs créent des impulsions de durée de quelques picosecondes, donc large bande avec, dans le cas d'un film d'aluminium de 30 nm, une fréquence maximale allant jusqu'à environ 300 GHz.

L'impulsion acoustique créée se propage à travers le substrat de GaAs, de 350 μm d'épaisseur typiquement, avec une variation de quelques dizaines de microns ($\pm 20 \mu\text{m}$) selon les échantillons (voir le tableau 3.1).

La détection de l'onde acoustique se fait grâce au film métallique déposé à l'arrière du substrat. Elle repose pour une part sur l'effet photo-élastique, c'est-à-dire la modulation de la constante diélectrique par la déformation due à l'onde acoustique. Le moyen le plus courant pour détecter cette modulation est de mesurer la réflectivité d'une impulsion « sonde » focalisée sur la surface de l'échantillon. La réflectivité est alors affectée par la modification des propriétés optiques. D'autre part, le déplacement de la surface induit par l'arrivée de l'onde acoustique change le chemin optique de l'onde lumineuse et introduit un déphasage. Finalement, ces deux mécanismes se traduisent par une variation de la réflexion du champ électrique $r = E_r/E_i$, à la fois en amplitude et en phase. Le substrat a été préalablement poli double face afin que la rugosité de surface ne soit pas un facteur limitant pour mesurer la réflexion de la lumière sur la face arrière de l'échantillon.

L'expérience pompe sonde dont le principe est schématisé figure 1.4 utilise un laser femtoseconde de taux de répétition de l'ordre de 80 MHz. La première impulsion, la pompe, focalisée sur l'échantillon est responsable de l'émission d'un signal acoustique. La seconde impulsion, la sonde, analyse l'échantillon à différents instants avant ou après l'impulsion pompe. Notons qu'en général,

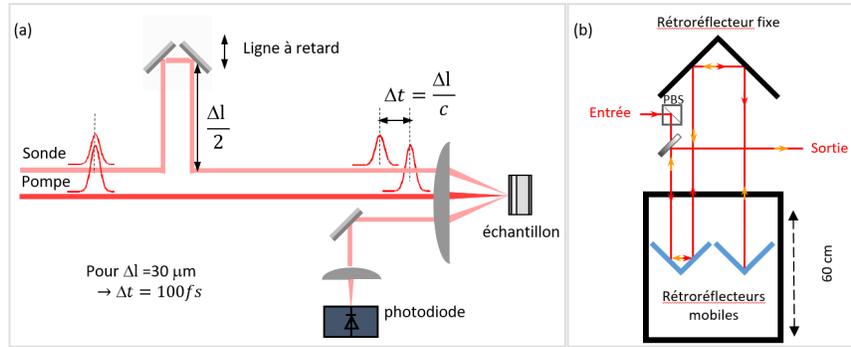


Figure 1.4 – (a) Principe d’une expérience pompe sonde, où l’on mesure le changement de réflectivité. (b) Schéma de principe de la ligne à retard, ayant une course de 60 cm. La lumière effectue trois allers-retours entre les rétroreflecteurs fixe et mobiles pour être retardée au maximum de 11,5 ns (3,45 m)

les deux faisceaux sont focalisés sur le même point comme sur ce schéma, mais que notre configuration est assez originale : la sonde est focalisée à l’arrière du substrat (relativement épais). Le temps d’arrivée de la sonde sur l’échantillon est contrôlé en variant le chemin optique grâce à « une ligne à retard » composée d’un rétroreflecteur placé sur une platine de translation micrométrique. Cette ligne à retard avec 3 allers retours de la lumière (voir figure 1.4b) permet de retarder l’impulsion sonde de 11,5 ns au maximum et d’avoir une résolution de 100 fs environ. La sonde mesure les changements temporels des propriétés optiques induites par le passage de l’onde acoustique (réflexion, transmission, changement de polarisation, déflexion...). Dans notre cas, nous utilisons un interféromètre pour mesurer les variations relatives de réflectivité $\Delta r/r$. Enfin, comme celles-ci sont faibles, en général de l’ordre de 10^{-7} à 10^{-3} , il est nécessaire de moduler le faisceau excitateur à une fréquence choisie afin d’extraire le signal utile du fond continu en le démodulant grâce à une détection synchrone. La pompe est modulée avec un modulateur acousto-optique fonctionnant autour de 1 MHz.

L’expérience ainsi que les mécanismes de génération et de détection par des couches minces sont décrits de manière plus complète en annexe (6.2), notamment l’interféromètre de Sagnac qui est bien adapté à l’utilisation d’un cryostat. La figure 1.5 montre le dispositif expérimental de transmission acoustique : la différence des signaux détectés par les deux diodes A et B donnent accès à la partie imaginaire ϕ de la variation relative de réflectivité via $\phi(t + \tau) - \phi(t)$, τ étant la différence de temps d’arrivée sur l’échantillon d’une sonde par rapport à l’autre ; la partie réelle est le plus souvent mesurée avec la réflectivité d’une seule des deux sondes. En principe, la mesure de $\Delta r/r(t)$ permet d’accéder au spectre de transmission acoustique en effectuant sa transformée de Fourier.

1.2.2 Spécificités liées à la propagation dans le substrat

Détection après un délai long

L’impulsion acoustique générée d’un côté de l’échantillon se propage dans toute l’épaisseur du substrat (notons que l’échantillon a une épaisseur d’un micron environ, négligeable devant celle

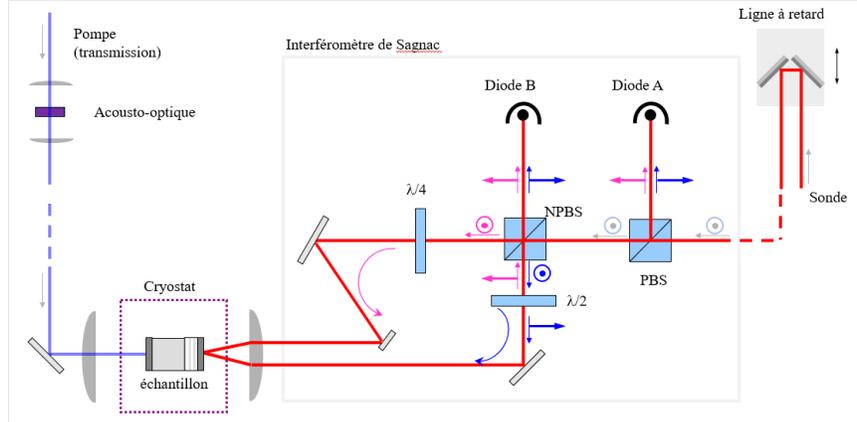


Figure 1.5 – Représentation schématique de l'expérience de transmission acoustique sur un échantillon.

du substrat). La réflexion sur l'interface avec l'air étant totale, elle peut effectuer plusieurs allers-retours, donnant lieu à une série d'échos dans le signal de sonde réfléchi. À basse température, la vitesse dans GaAs est de 4,78 nm/ps, ce qui donne une durée de l'ordre de $T = 75$ ns pour effectuer une traversée. Cette durée est bien supérieure à la période T_l entre deux impulsions laser ($T_l \sim 12,5$ ns) et les échos sont détectés modulo T_l . Les signaux sont donc détectés avec une autre impulsion que l'impulsion jumelle de la pompe qui a créé le transitoire acoustique et sont repliés dans une fenêtre de durée T_l . Le délai expérimental auquel est mesuré le $p^{\text{ième}}$ écho (en transmission) est donc $(2p-1)T - n_p T_l$ avec n_p un certain entier. Parallèlement, la phase du signal dépend aussi du temps de traversée, ce qui permet d'identifier aussi l'écho. En effet, un déphasage de 2π correspond à une durée après excitation de l'inverse de la fréquence de modulation, qui vaut en général 1 MHz. Il peut être utile aussi, en modifiant la fréquence de modulation, de jouer sur la phase relative des échos et mettre en opposition de phase des échos lointains qui gêneraient le signal.

Une fois que deux échos sont bien identifiés, il est possible d'en déduire l'épaisseur du substrat à l'aide de la fréquence de modulation de la détection synchrone et de la fréquence de répétition du laser, mesurée avec un fréquencemètre.

Effets de la propagation : dispersion et effets non-linéaires

L'épaisseur de substrat traversée est suffisamment grande pour que des effets dus à la dispersion apparaissent, ainsi que des effets non linéaires si l'amplitude de la déformation initiale est assez grande. En effet, la dispersion du réseau cristallin provoque un ralentissement des ondes de haute fréquence, et l'anharmonicité du réseau est responsable d'un élargissement du spectre acoustique. De plus les ondes subissent aussi une atténuation. Notons que la compétition entre non linéarité et dispersion du réseau engendre des trains de solitons ultracourts qui ont été mis en évidence dans plusieurs systèmes (saphir, MgO, GaAs, Si...)[26, 37, 38, 39].

L'équation qui gouverne la propagation dans GaAs est celle de Korteweg-De Vries, tenant compte de la dispersion et de la non-linéarité acoustique, et négligeant la diffraction (modèle unidimensionnel) [26, 37] :

$$\partial_t \eta = \epsilon \partial_z^2 \eta - \gamma \partial_z^3 \eta - \frac{C_{nl}}{2v_0 \rho_{GaAs}} \eta \partial_z \eta \quad (1.1)$$

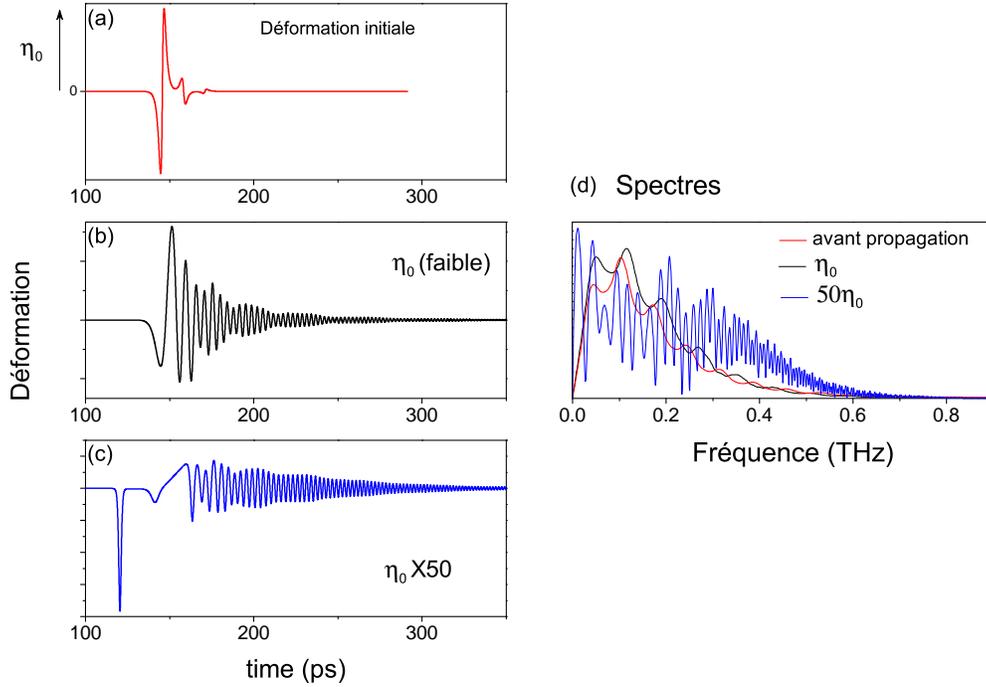


Figure 1.6 – Illustration de l’effet de la propagation dans $365 \mu\text{m}$ de GaAs sur l’impulsion acoustique générée par une couche d’aluminium de 30 nm (a), quand la déformation initiale est de faible amplitude (η_0) (b) ou de grande amplitude ($50\eta_0$) (c). Le graphique (d) montre les spectres correspondants (amplitude de la transformée de Fourier).

où ϵ , γ et C_{nl} sont l’atténuation acoustique, la dispersion, et la nonlinéarité ; v_0 et ρ_{GaAs} , la vitesse du son et la densité de GaAs. Le second terme tient compte de la dispersion au plus bas ordre : $\omega = v_0 k - \gamma k^3$, ce qui donne une vitesse décroissant avec la fréquence :

$$v = v_0 \left(1 - \frac{4\pi^2 \gamma f^2}{v_0^3} \right) \quad (1.2)$$

La déformation d’une impulsion acoustique après propagation dans $365 \mu\text{m}$ de GaAs peut être simulée, en négligeant l’atténuation, en résolvant numériquement cette équation à l’aide d’un algorithme de Runge-Kutta [40]. Les valeurs de la dispersion acoustique ($\gamma = 7,4 \times 10^{-3} \text{ nm}^3 \text{ ps}^{-1}$) et celle de la nonlinéarité acoustique ($C_{\text{nl}} = -2,66 \times 10^{-4} \text{ fg nm}^{-1} \text{ ps}^{-2}$) proviennent de la littérature [25]. La déformation initiale utilisée, générée par une couche de 30 nm d’aluminium (partie propagative de l’équation 6.4 avec réflexions partielles), est montrée sur la figure 1.6(a). Si elle est faible, seule la dispersion a un effet important, figure (b) : une queue dispersive apparaît. Le contenu fréquentiel est semblable (courbes rouges et noires de la figure (d)). Si la déformation est plus importante, des effets non linéaires apparaissent, le front d’onde prend la forme d’un V, puis plusieurs solitons apparaissent à l’avant du front d’onde (figure (c) avec 2 solitons). Le spectre est très modifié et s’enrichit en hautes fréquences. Les spectres de transmission ont ainsi été mesurés avec une intensité de la pompe assez importante (entre 2 et 7 nJ/impulsion) pour obtenir après propagation dans le substrat un spectre acoustique incident sur la structure enrichi en hautes fréquences.

D’autre part, le dernier phénomène évoqué ci-dessus qui intervient pendant la propagation est l’atténuation qui affecte de manière plus importante les hautes fréquences (voir chapitre 3). Il faut

s'assurer que le libre parcours moyen des phonons est supérieur à l'épaisseur totale de la structure qu'ils auront traversée. C'est pourquoi l'expérience a été conduite à basse température ($T \sim 15$ K) où l'absorption à ces fréquences est négligeable.

1.3 Transmission du miroir et de la cavité

La première étude concerne la cavité $\lambda/2$ C1², ainsi que le miroir SL S100. Cela revient à comparer une cavité $\lambda/2$ à une « cavité » $3\lambda/2$ que constitue le miroir (SL de 20 périodes).

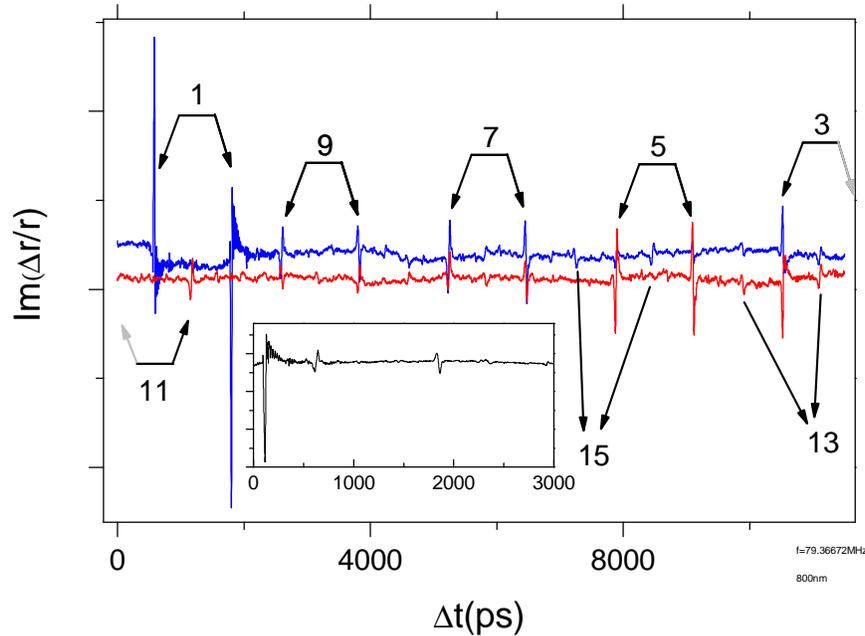


Figure 1.7 – Cavité C1. Changement de réflectivité mesurée en interférométrie, ce qui explique que le signal est dupliqué (on mesure $\phi(t + \tau) - \phi(t)$ avec $\tau \sim 1200$ ps entre les deux sondes). La courbe bleue (rouge) est le signal de la voie X (Y) de la détection synchrone. Les flèches indiquent les paires d'échos ayant effectué n traversées de l'échantillon. L'insert montre le signal utilisé pour les spectres, mesuré sur 3 ns.

La figure 1.7 montre le changement de réflectivité mesurée en interférométrie sur la cavité C1 sur presque toute l'étendue possible du délai pompe sonde (11,5 ns). L'avantage de cette configuration est que seuls les phénomènes acoustiques sont observés, après le long temps de traversée (~ 75 ns), ce qui explique le signal de moyenne presque nulle avec des pics. Ceux-ci correspondent à des échos ayant traversé n fois l'échantillon. La phase de la détection synchrone a été réglée pour que soit projeté sur la voie X le premier écho, qui se traduit par les deux plus grands pics opposés. L'inconvénient de cette mesure est la difficulté de localiser ces variations de réflectivité de 10^{-4} à 10^{-6} tant spatialement (positionner la sonde en face de la pompe, dont la tache focale est d'une trentaine de microns), que temporellement, puisque le délai correspondant à l'écho est inconnu à cause du manque de précision de l'épaisseur totale.

Afin d'avoir une bonne résolution fréquentielle sans avoir d'échos trop proches, la mesure est faite sur une largeur temporelle de 3 ns à partir de ~ 1700 ps (insert de la figure 1.7), et la transformée de

2. couche de GaAs de 23 nm enserrée par des miroirs de 10 périodes

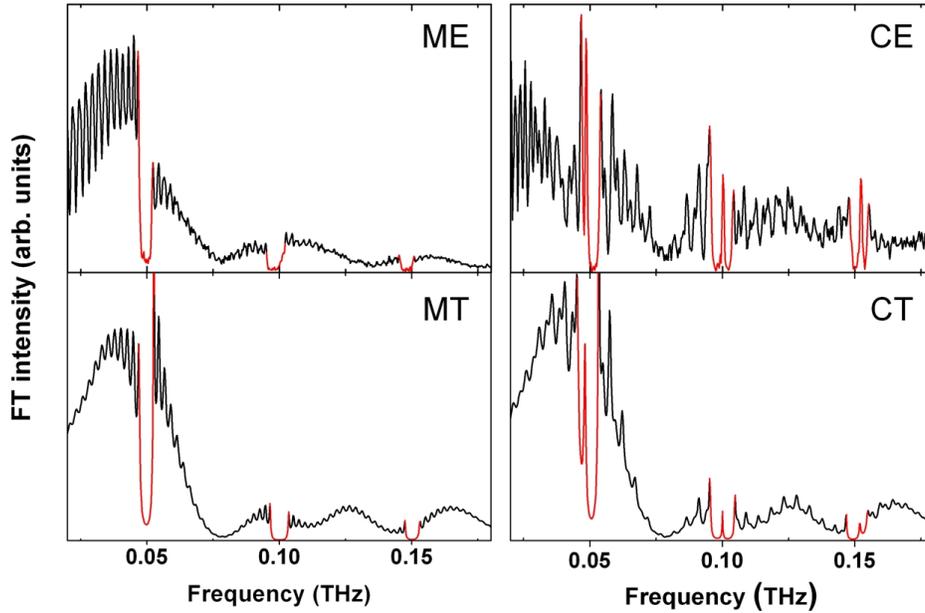


Figure 1.8 – Amplitude des transformées de Fourier de la dérivée des changements de réflectivité mesurés en transmission sur le miroir SL100 (ME), sur la cavité C1 (CE) et pour comparaison, le spectre de la déformation de la surface du miroir SL100 (MT), ou de la cavité C1 (CT) en tenant compte d’un spectre incident sur la structure déformé par les non-linéarités pendant la propagation.

Fourier correspondante est montrée sur la figure 1.8(CE). Nous montrons aussi dans cette figure le spectre déduit des mesures de transmission acoustique sur le miroir (SL100) (figure 1.8(ME)). Ces spectres contiennent des régions de transmission nulle aux fréquences multiples de $v/2d = 50$ GHz (où v est la vitesse de propagation et $d = 49$ nm la période du SL) et des oscillations de transmission ailleurs, qui reflètent les interférences multiples dans la structure. Le spectre obtenu dans la cavité est très semblable, mais un pic de transmission très mince apparaît dans chaque bande interdite. La position des pics dans les bandes interdites, au centre pour la bande à 100 GHz, et décalée pour les bandes à 50 et 150 GHz, correspond parfaitement au dessin de la structure. La largeur mesurée de ces pics est de 0,43 GHz, supérieure à la résolution instrumentale, et en bon accord avec une finesse de l’ordre de 300 attendue pour cette cavité.

La partie imaginaire du changement de réflectivité est dominée par le déplacement de surface [38] que l’on peut calculer facilement avec la méthode des matrices de transfert, en tenant compte de la structure exacte de l’échantillon. Le spectre incident pour le calcul correspond à un spectre de phonons générés par la couche d’aluminium et qui s’est propagé à travers le substrat. Il est simulé à partir de l’équation 1.2 [38] comme dans le § 1.2.2 . Modifier l’intensité de l’excitation modifie l’enveloppe lentement variable du spectre incident et donc du spectre de transmission mais les gaps sont toujours présents. Un bon accord est trouvé entre les calculs et la mesure.

Le stockage de l’énergie acoustique dans la cavité est illustré figure 1.9), où l’on suit les spectres

en fonction du délai grâce à des transformées de Fourier glissantes. En effet le signal est important à toutes les fréquences pendant que l'impulsion acoustique traverse la structure dans une sens puis dans l'autre après réflexion sur l'interface avec l'air, ce qui dure environ 200 ps. Ensuite, seuls les modes de bords de zone et de cavité persistent. En particulier le mode de cavité à 100 GHz décroît avec un temps caractéristique de 1,38 ns, en bon accord avec la valeur déduite de la largeur du mode. Les modes de bord de zone décroissent plus vite, et ne sont plus visibles après 1,5 ns, ce qui est notable dans le cas du simple miroir (en bas). Enfin, on vérifie que les échos lointains n'affectent pas la décroissance temporelle du signal. Ce sont les bandes à basse fréquence qui sont détectées à des délais autour de 800 et 1800 ps pour la cavité (flèches bleues), qui n'ont plus de haut contenu fréquentiel, par atténuation et diffraction durant les allers retours dans le substrat.

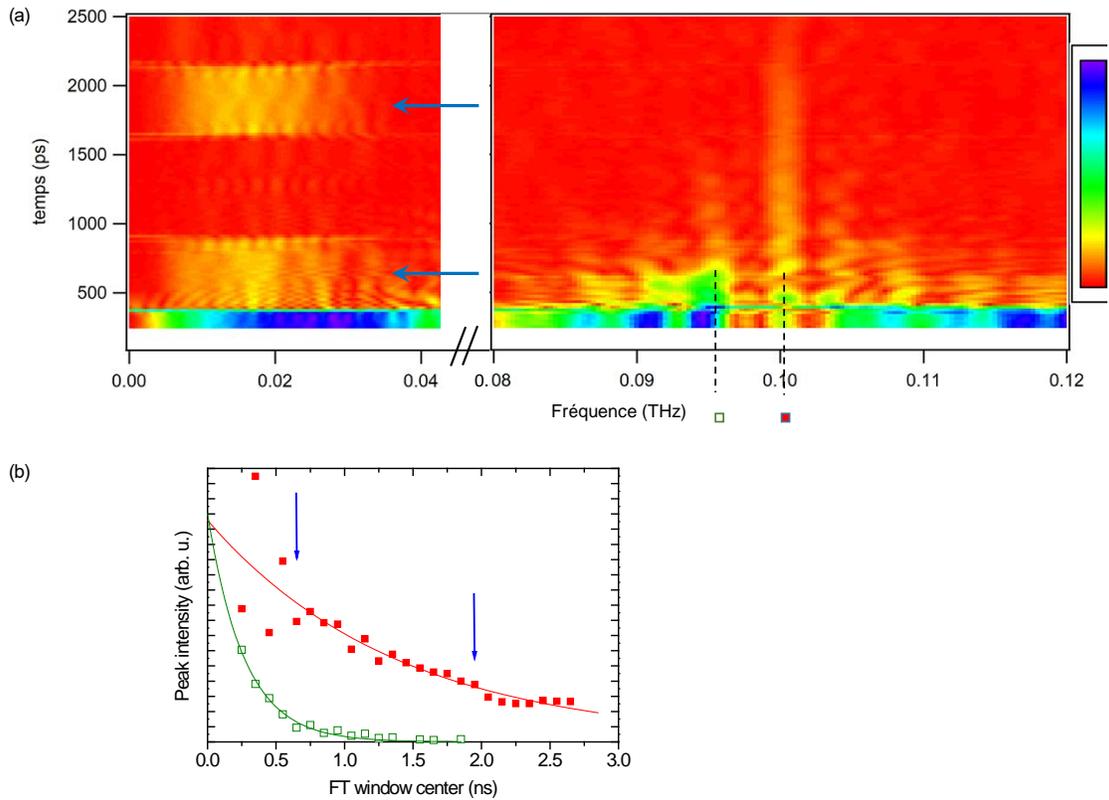


Figure 1.9 – (a) Transformée de Fourier glissante de 500 ps du signal de transmission de la cavité. Le premier écho de large contenu fréquentiel dure environ 200 ps. Les flèches bleues indiquent des échos lointains, qui n'ont qu'un contenu fréquentiel de fréquence inférieure à 40 GHz. Les modes de cavité (carré rouge) et de bord de zone (carré ouvert) autour du gap en centre de zone (≈ 100 GHz) sont visibles plus longtemps. L'amplitude de leur maximum est reporté (b) où l'on voit leur décroissance.

1.4 Dans le système Mo/Si

1.4.1 Introduction

Un autre couple de matériaux a également fait l'objet d'une investigation similaire : le couple molybdène/silicium. Outre l'intérêt technologique que revêtent les empilements Mo-Si comme réflecteurs optiques dans le domaine des rayons X mous ou de l'extrême UV pour des applications potentielles dans les techniques de nano-lithographie, de microscopie ou d'éléments constitutifs de lasers, ces systèmes présentent bien d'autres propriétés, qui du point de vue de l'acoustique, en font une alternative aux systèmes semi-conducteurs. En effet, ils possèdent des courbes de dispersion entaillées de larges gaps résultant de la très forte rupture d'impédance acoustique entre les deux constituants. L'existence de gaps larges, contrairement au couple GaAs/AlAs rend ces matériaux fort intéressants pour des fonctions de filtrage par exemple. Par ailleurs, l'intégration de ces structures préparées par pulvérisation magnétron, est infiniment plus facile que celle des systèmes à base de semi-conducteurs qui nécessitent des conditions sévères d'épitaxie lors de leur croissance. Les échantillons ont été réalisés au Laboratoire de Physique des Matériaux (PHYMAT), maintenant l'Institut PPrime à Poitiers.

Des travaux antérieurs sur les modes de surface avaient initié l'étude de ces systèmes métal-semiconducteur mais n'avaient qu'effleuré le domaine. En particulier, la position en fréquence des modes localisés n'était pas expliquée à mieux de 20% pour la gamme de fréquence au delà de 400 GHz. Un travail important de mesures par acoustique picoseconde sur de nombreux échantillons et la comparaison avec un modèle effectif ou avec une simulation par matrice de transfert ont permis une meilleure connaissance des paramètres acoustiques et microstructuraux, fondamentaux en ce qui concerne ces modes vibratoires. Je ne détaillerai pas ce travail fait en collaboration avec L. Belliard (INSP) et avec A. Michel, G. Abadias, et C. Jaouen (institut PPrime), qui ont mené l'étude des propriétés structurales [41].

Je ne montrerai les résultats que pour deux échantillons. Le premier est un miroir (M36), constitué de 3 périodes de 25 nm Si/Mo d'épaisseur égales ($d_{Si} = d_{Mo}$); le second est une cavité de silice de 21,6 nm, avec un miroir avant (respectivement arrière) d'une période Si/Mo (respectivement de 1,5 période) de 16 nm ($d_{Si} = d_{Mo} = 8$ nm) (M7). Le substrat de silicium est d'une épaisseur de 260 μ m avec un film d'aluminium de 30 nm déposé sur la face arrière. Ces échantillons ont été plutôt optimisés pour une grande ouverture de gap en bord de zone (autour de 150 à 200 GHz).

1.4.2 Spectres de transmission

Le même type d'expériences de transmission acoustique a été mené sur ces échantillons. La figure 1.10 montre l'amplitude de la transformée de Fourier de $Re(\Delta r/r)$ obtenue en transmission sur le miroir m36 ou la cavité m7. Dans les deux cas, la dispersion calculée dans le cas d'un super-réseau infini de même période est comparée au spectre. Le signal est nul pour les fréquences correspondant au premier gap (de bord de zone), qui s'étend de 90 à 180 GHz pour le miroir et de 135 à 290 GHz pour la cavité ayant des miroirs de plus faible période. Au-delà de 350 GHz, le spectre généré par l'aluminium, et qui s'est propagé dans le substrat de silicium s'annule. À l'intérieur de cette première bande interdite, un ou deux pics fins apparaissent. En effet dans ces échantillons où la couche de dessus est du silicium, un mode localisé de surface existe. Dans la cavité, un second pic apparaît correspondant au mode de cavité. Compte-tenu du fort contraste d'impédance, une multicouche de seulement 3 périodes permet un filtrage efficace.

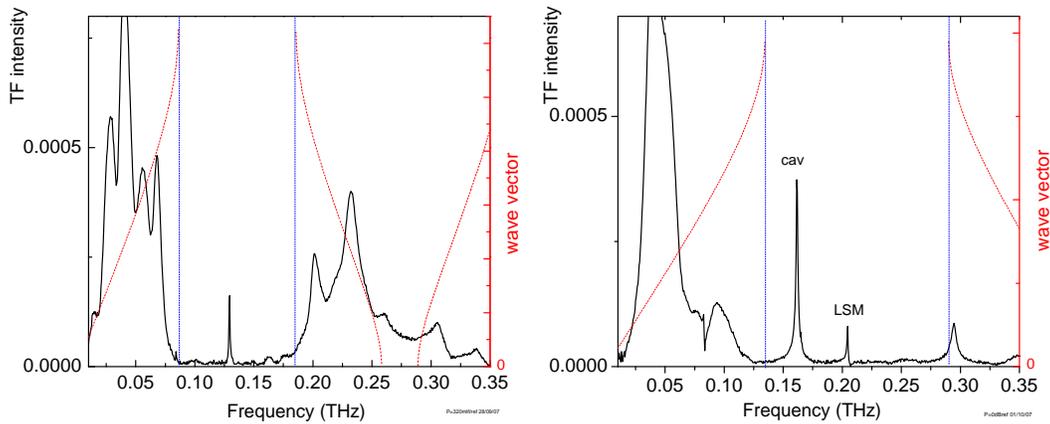


Figure 1.10 – Amplitude des transformée de Fourier des changements de réflectivité mesurés en transmission sur le miroir M36 (à gauche) et la cavité M7 (à droite). En pointillés rouges sont tracées les courbes de dispersion calculées pour des structures infinie de même période. Pour le graphique de droite, « cav » dénote le mode de cavité et « LSM » dénote le mode localisé de surface.

1.5 Conclusion

La mesure directe du spectre de transmission acoustique a permis de démontrer le confinement de phonons sub-THz à la fréquence du mode de la nanocavité. Cela valide pleinement le concept de nanocavité à phonons et ouvre de nouvelles voies pour la manipulation des phonons acoustiques dans la gamme d'énergie subterahertz, technologiquement difficile, allant du filtrage à haute résolution à la génération de faisceaux de phonons cohérents ou incohérents, monochromatiques et directionnels. La maîtrise acquise lors du développement de cette expérience « d'acoustique picoseconde » dans une configuration originale m'a permis de mener à bien les études suivantes sur les cavités et les autres structures à base de super-réseaux comme transducteurs opto-acoustiques.

Des phénomènes obtenus en optique peuvent être de même transposés dans le domaine phononique au moyen de ces nanocavités. Daniel Lanzillotti Kimura qui a participé à ce travail a continué en thèse dans cette voie. Il a pu étudier l'inhibition ou l'augmentation de l'émission de phonons cohérents par un film métallique de Ni, selon qu'il soit déposé directement sur un substrat ou sur un superréseau BaTiO₃/SrTiO₃ ; la conception de filtres de couleur ou de miroirs large bande pour les phonons avec des multicouches non périodiques de GaAs/AlAs ; la mise en évidence d'oscillations de Bloch (pour les phonons) dans des nanocavités couplées dont les énergies des modes varient linéairement le long de la structure [42]. Cette dernière est directement inspirée des microcavités couplées (10 à 30) utilisées pour observer des oscillations de Bloch pour les photons [43, 44].

Les avantages offerts par ces systèmes multicouches que constitue une microcavité monolithique, composée de miroirs de Bragg enserrant une hétérostructure dans l'espace de la cavité, un puits quantique par exemple, sont essentiellement liés au confinement 2D des électrons et des trous dans le puits quantique, à une plus grande mobilité, et une meilleure efficacité des transitions radiatives intéressantes pour des applications d'émission laser. De même, piéger des phonons ouvre des perspectives pour contrôler l'interaction des phonons avec des excitations électroniques. Il est envisagé, comme avec les photons, de créer une interaction forte entre un système électronique à deux niveaux et des phonons (l'équivalent du polariton de cavité), le phoniton [45][46, 47].

D'autre part, le domaine de l'optomécanique, qui étudie l'interaction d'une cavité optique avec un résonateur mécanique est en pleine expansion due à son potentiel en optique non linéaire mais aussi pour des démonstrations d'effets macroscopiques quantiques. Ce sujet relance l'intérêt de la cavité de phonons pour étudier le couplage optomécanique entre ces phonons sub-THz de cavité avec des photons confinés dans des micropiliers type VCSELS [48, 49].

Chapitre 2

Génération et détection

2.1 Introduction

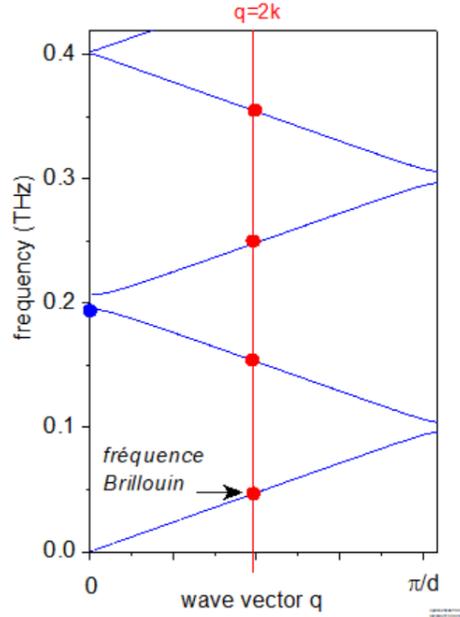
L'expérience décrite au chapitre précédent a permis de démontrer que les super-réseaux se comportaient bien comme des miroirs (d'où l'existence de bandes d'arrêt dans le spectre de transmission) et que les nanocavités acoustiques avaient bien les propriétés de confiner les phonons à des fréquences incluses dans les bandes d'arrêt des superréseaux qui la constituent. L'étude de leurs fréquences caractéristiques reste cependant limitée à environ 200 GHz par celles des transducteurs métalliques utilisés dans les mesures. Pour étudier des structures similaires à plus haute fréquence, il est nécessaire de trouver des transducteurs fonctionnant vers le THz. Nous avons utilisé les mêmes multicouches, non plus comme des composants acoustiques passifs, mais comme des générateurs et détecteurs de phonons cohérents à haute fréquence.

Une expérience typique d'écho consiste à disposer d'un échantillon macroscopique où sont disposés de chaque côté un émetteur et un détecteur (le plus souvent piezoélectriques), afin de faire se propager un signal acoustique à travers tout l'échantillon. C'est exactement le schéma de l'expérience pompe sonde en transmission développée pour l'étude de la transmission acoustique des cavités. Dans ce cadre, nous avons étudié le multicouche comme générateur ou détecteur de phonons associé à une couche métallique déposée à l'arrière du substrat sur lequel a eu lieu la croissance du multicouche, qui sera utilisé comme le milieu de propagation. Les films métalliques permettent d'étudier les SLs en jouant le rôle complémentaire de transducteur, mais pour les mêmes raisons que précédemment, s'avèrent être un facteur limitant en fréquence. L'association de deux SLs nous permet alors de nous affranchir de cette limite.

2.2 Génération

Comme évoqué dans l'introduction, l'acoustique picoseconde a été une étape dans la recherche de sources de phonons acoustiques de hautes fréquences. De nombreux films métalliques ou non (SiO_2 , semiconducteurs) ont été étudiés ainsi que des SLs (GaAs/AlAs en particulier [50, 51]). Dans ces deux dernières études, des phonons de fréquence allant jusqu'à 950 GHz étaient excités grâce à l'impulsion pompe focalisée sur le SL, mais la détection est faite sur la surface du SL, en transmission ou en réflexion, ce qui ne prouve pas que les phonons excités puissent se propager en-dehors de la structure. Un unique puits quantique de GaAs a été étudié comme source enterrée et des phonons ballistiques ont pu être produits et être détectés à la surface (par déflexion du faisceau sonde)

Figure 2.1 – Courbe de dispersion d’un SL (ici l’échantillon SL200 ayant la première bande interdite en centre de zone à 200 GHz). Les bandes sont repliées dans la mini zone de Brillouin de limite π/d , d étant la période du SL. Les points bleus correspondent aux modes en centre de zone qui peuvent être générés après absorption de l’impulsion lumineuse. Les points rouges correspondent aux modes qui peuvent être détectés par la sonde de vecteur d’onde k et qui vérifie la condition $q = 2k$.



[52]. Une expérience similaire a été menée avec plusieurs puits quantiques en pompe sonde [53]. Ici les phonons produits par les puits quantiques sont détectés à la surface après une propagation de 300 nm. Le signal $\delta r/r$ est faible ($< 10^{-6}$). Dans les études décrites dans ce chapitre, nous avons tiré parti du grand nombre de puits quantiques que contient un SL pour essayer d’obtenir un signal plus important. De plus, nous considérons une distance de propagation grande devant la largeur du SL (plusieurs centaines de microns à comparer à la largeur du SL de $\sim 1 \mu\text{m}$).

2.2.1 Rappels sur la courbe de dispersion d’un super-réseau

L’empilement que forme un super-réseau est périodique avec pour période, les deux couches des deux matériaux qui le constituent. C’est pourquoi la courbe de dispersion est repliée dans une mini-zone de Brillouin liée à cette périodicité. Le cas d’un super-réseau infini est rappelé dans l’annexe 6.1 (formule de Rytov 6.3). La figure 2.1 illustre une courbe de dispersion d’un SL (c’est-à-dire la fréquence (proportionnelle à l’énergie) d’un phonon qui se propage à travers le SL en fonction de son vecteur d’onde). On note l’existence de bandes interdites en centre de zone et en bords de zone, due au contraste acoustique des deux matériaux. Les SLs qui sont étudiés sont optimisés pour que la première bande interdite en centre de zone soit maximale, ce qui annule la seconde bande interdite. Enfin, lorsque le SL débute par la couche d’impédance la plus grande, il existe des modes localisés de surface à l’intérieur des bandes interdites. Ce n’est pas le cas des SLs GaAs/AlAs ni des SLs Mo/Si mais des SLs Si/Mo (Si en contact avec l’air).

2.2.2 Processus de génération

Dans un SL constitué de puits quantiques, l’énergie lumineuse de l’impulsion pompe est absorbée si l’énergie des photons est supérieur à celle du gap et conduit à l’existence d’une population d’électrons et de trous à l’origine d’une contrainte électronique. Ce processus dit de potentiel de déformation est dominant. La relaxation rapide de ces excitations conduit aussi à une élévation de

température qui rajoute une contrainte thermique. Comme l'absorption de l'énergie est modulée par la périodicité du SL, les couches de AlAs n'absorbant pratiquement pas la lumière ($\lambda \sim 750$ nm, le gap indirect de AlAs étant vers 550 nm), elle conduit à la naissance d'une contrainte qui possède une périodicité spatiale identique à celle du SL. Le train d'onde de phonons longitudinaux (LA) résultant aura alors la même période, donc une fréquence de v/d et ses multiples, ce qui correspond à un vecteur d'onde acoustique $q = 0^1$ (voir fig. 2.3). En ce qui concerne le premier gap en centre de zone, seul le mode de bord de zone, de plus basse énergie est excité pour des raisons de symétrie [6]. Les modes de cavité ou les modes localisés de surface sont également excités.

2.2.3 Principe de l'expérience et résultats expérimentaux

La configuration expérimentale est schématisée sur l'insert de la figure 2.2 : l'impulsion pompe excite directement le SL, et l'impulsion sonde est focalisée à l'arrière du substrat afin de détecter le train d'onde de phonons émis qui se sera propagé à travers tout l'échantillon. Le film métallique déposé à l'arrière sert de détecteur de phonons, ce qui impose d'étudier des SLs optimisés pour des fréquences pas trop élevées (inférieures à 250 GHz) ; ce seront les échantillons SL100 (déjà décrit au chapitre 1) et SL200, de structure semblable mais avec deux fois plus de périodes et ayant une première bande interdite en centre de zone à 200 GHz (voir tableau 6.1). Il est toujours nécessaire de travailler à 13 K pour négliger l'atténuation acoustique. Les signaux présentés sur la figure 2.2 sont

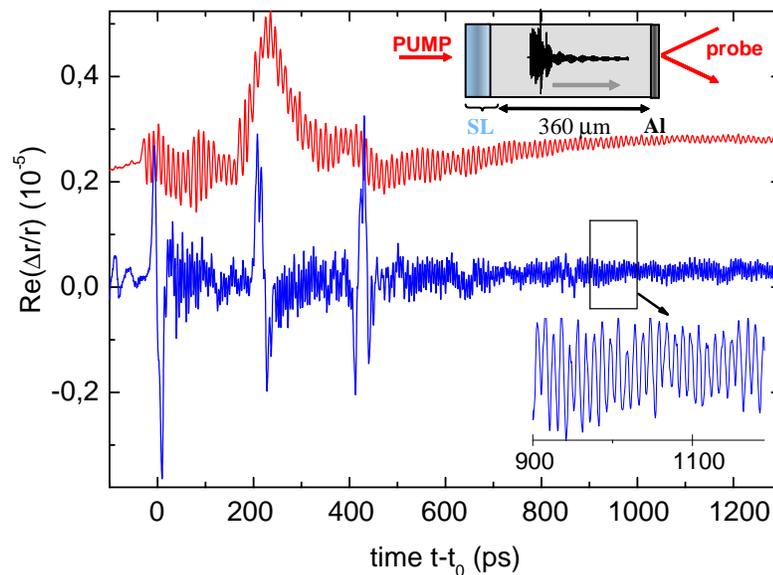


Figure 2.2 – Dans l'expérience de génération par le SL, dont le principe est schématisé en haut, réflectivité (partie réelle) en fonction du temps : en haut (rouge) dans le cas de l'échantillon S100 avec une excitation du faisceau pompe de 2.8 nJ/pulse et une longueur d'onde de $\lambda = 752$ nm ; en bas (bleu) dans le cas de l'échantillon S200 avec 7.5 nJ/pulse et $\lambda = 735$ nm ; des oscillations de période 5 ps peuvent être discernées dans la partie agrandie.

les changements de réflectivité obtenus pour les échantillons SL100 et SL200. On obtient un train

1. le vecteur d'onde est en fait un multiple de $2\pi/d$ mais avec le repliement du spectre, cela correspond au centre de zone

d'onde quasi monochromatique correspondant aux fréquences attendues et qui durent quelques ns.² L'influence de l'énergie d'excitation de la pompe a été aussi étudiée [54] : l'efficacité de génération est maximale pour des énergies proches ou supérieures à celles des transitions excitoniques des puits quantiques constituant le SL. Par exemple dans le cas de l'échantillon SL200, l'amplitude du signal généré est multipliée par 10 entre 810 et 770 nm, cette dernière longueur d'onde semblant correspondre à la transition E2HH2.

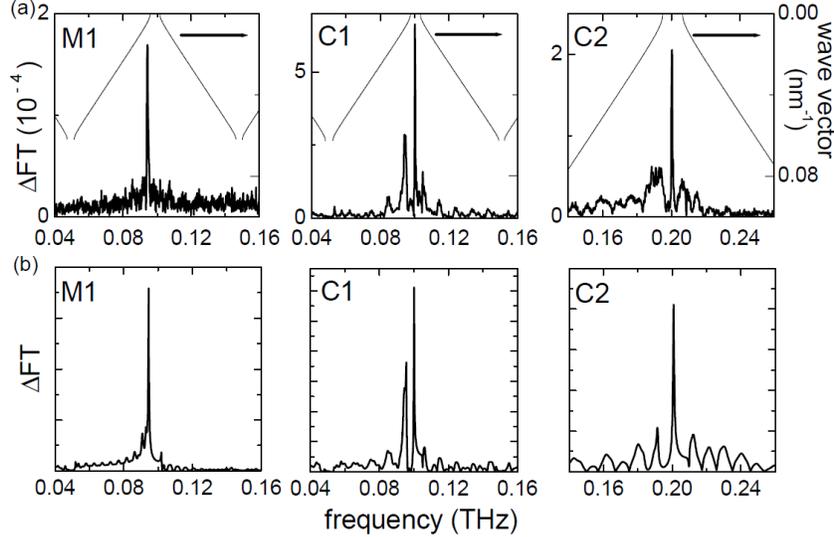


Figure 2.3 – Transformée de Fourier de la dérivée de $\text{Im}(\Delta r/r)$ des signaux de génération pour le SL SL100 (M1), et les cavités C1 et C2. (a) résultats expérimentaux et (b) calculs correspondants. Les courbes de dispersion sont montrées au-dessus, les modes générés correspondent au vecteur d'onde $q = 0$.

Les modes localisés sont également générés, comme les modes de cavité. La figure 2.3 rassemble les résultats obtenus avec deux cavités, C1 (décrite au chapitre 1) et C2, formée avec deux SLs de 20 périodes et centrée sur 200 GHz. Le mode de cavité est prépondérant par rapport au mode $q = 0$ de bord de gap, qui est présent aussi, et vit plus longtemps, puisqu'il correspond à un mode confiné. Pour la cavité C1, le temps de décroissance est d'environ 1300 ps, en accord avec la largeur de mode donné par le facteur de qualité (0.32 GHz à comparer à la largeur expérimentale 0.5 GHz).

L'amplitude des oscillations du signal $\Delta r/r$ à 100 ou 200 GHz peut atteindre $3 \cdot 10^{-6}$. On estime qu'une telle valeur de $\delta r/r$ pour une couche d'aluminium à cette longueur d'onde donne une déformation incidente de l'ordre de $3 \cdot 10^{-6}$. Les déformations générées par ces structures dans les conditions de nos expériences sont faibles et n'induisent pas d'effets non-linéaires.

2.2.4 Dans le système Mo/Si

La détection passe-bas du film d'aluminium fait que parmi les modes générés par les échantillons de Mo/Si, seuls seront détectés ceux se situant autour du 1^{er} gap de bord de zone. Ce ne peut être qu'un mode localisé de surface ou un mode de cavité. L'expérience de génération avec un

2. Notons que dans le cas du SL100, la fréquence obtenue est légèrement plus petite que celle du mode de centre de zone (figure 2.3). En effet, la courbe de dispersion est calculée pour un SL infini et l'échantillon SL100 n'a que 20 périodes

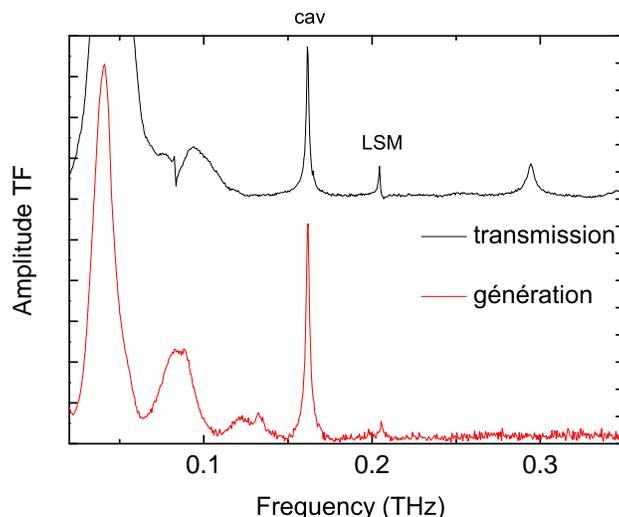


Figure 2.4 – Transformée de Fourier de la dérivée de $\text{Re}(\Delta r/r)$ du signal de génération pour la cavité M7, pour rappel le spectre obtenu en transmission (expérience de caractérisation vue au chapitre 1) montre que le mode de cavité est le seul mode essentiel à pouvoir fuir vers le substrat et se propager. « cav » dénote le mode de cavité et « LSM » dénote le mode localisé de surface.

multicouche de 8 périodes de 25 nm n’a pas abouti : le mode localisé de surface, visible en pompe sonde sur la structure, de fréquence 145 GHz est excité mais s’amortit le long de la structure et n’en sort pas. Sur le miroir M36, contenant seulement 3 périodes, le mode localisé de surface est généré et peut fuir du miroir par effet tunnel pour se propager et être détecté. De la même manière, la cavité M7 génère un signal qui contient essentiellement le mode de cavité. En effet le mode de surface est beaucoup plus localisé côté interface avec l’air que le mode de cavité.

2.2.5 Vers de plus hautes fréquences ?

Nous avons démontré qu’un SL ou une cavité était une source de phonons quasi monochromatique aux fréquences correspondant à $q = 0$. Pour les mêmes raisons que précédemment, nous avons commencé avec des structures possédant un gap autour de 100-200 GHz pour ne pas être limité par la détection passe-bas du film métallique. A priori il n’y a pas de limite en fréquence pour la génération par un SL : en effet, on tire parti de la nanostructuration qui imprime une modulation de courte période spatiale à la contrainte et qui génère ainsi une onde acoustique à la fréquence souhaitée, imposée par q .

Nous avons poussé notre configuration expérimentale au maximum jusqu’à 400 GHz. En effet l’expérience menée avec un super-réseau avec un premier gap à 400 GHz (SL400) montre un pic à 400 GHz qui ne sort que de très peu du bruit.

2.2.6 Excitation sélective

Les cavités ont ainsi des propriétés de génération qualitativement comparables à celles des SLs, mais avec une finesse spectrale supérieure. Il serait intéressant de générer uniquement le mode de cavité et de filtrer le mode $q = 0$ des SLs. Dans ce but, on peut jouer sur la position spectrale du laser vis-à-vis des transitions électroniques des puits quantiques qui composent la cavité et ses

miroirs. Nous avons étudié une cavité où le puits quantique ($\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.15}\text{As}$) constituant la cavité de phonons possède un gap plus petit que celui des miroirs ($\text{Ga}_{0.85}\text{In}_{0.85}\text{As}/\text{AlAs}$) [55]. En ajustant la longueur d'onde du laser de telle sorte que les SLs formant les miroirs de la cavité soient transparents et que la cavité soit absorbante, seul le mode de la cavité est excité dans la structure. Cela a été démontré dans le signal de réflexion mesuré sur la structure. Malheureusement la démonstration n'a pu être faite en transmission, le mode de fréquence choisie (540 GHz) étant trop élevé pour être détecté par un film d'aluminium.

2.3 Détection

2.3.1 Processus de détection dans les SL

La détection d'une onde acoustique en mesurant les changements de réflectivité d'un faisceau focalisé sur la surface de l'échantillon est décrite dans l'annexe 6.1. Nous avons fait varier la longueur d'onde du laser entre 700 et 800 nm, ce qui fait que la lumière pénètre assez profondément dans le SL. D'un point de vue optique, le SL constitue un milieu effectif d'indice n et l'équation 6.5 pour la détection, si on ne considère que le terme photoélastique devient proportionnel à [56] :

$$\sum_p \frac{\partial \epsilon_p}{\partial \eta} \int_0^{d_p} dz \eta_p(z) e^{iq_p z} (a_p e^{ikz} + b_p e^{-ikz})^2 \quad (2.1)$$

p est relatif à la $p^{\text{ème}}$ couche, q_p est le vecteur d'onde acoustique, k le vecteur d'onde électromagnétique effectif dans le SL, a_p l'amplitude du champ électromagnétique incident, b_p celle du champ électromagnétique réfléchi sur l'interface SL/ substrat et revenant vers la surface. b_p est habituellement négligé et la détection devient alors très importante quand $q = 2k$, ce qui reflète l'accord de phase dans le terme exponentiel. On retrouve la règle de sélection qui donne la fréquence Brillouin détectée dans un milieu massif semi-transparent égale à $\frac{\lambda}{2nv}$ avec λ et v la longueur d'onde électromagnétique et la vitesse du son effectif dans le SL. Ici comme la courbe de dispersion est repliée, à la fréquence Brillouin s'ajoutent des fréquences plus élevées (voir fig. 2.3). Notons que les effets de taille finie et l'absorption de la lumière sont responsables d'une relaxation de cette règle de sélection. Si la réflexion de la lumière sur l'interface avec le substrat n'est pas négligeable, s'ajoute l'accord de phase du terme croisé et les modes $q = 0$ peuvent être aussi détectés.

2.3.2 Résultats expérimentaux

La configuration expérimentale est inversée par rapport à l'étude de la génération. Ici nous utilisons comme source de phonons le film métallique, et pour enrichir le spectre incident sur la structure en hautes fréquences, on utilise une impulsion pompe de grande intensité pour être en régime non-linéaire. Nous illustrons les résultats sur le SL SL400 figure 2.5 qui montre le spectre de $\Delta r/r$ mesuré sur le détecteur métallique. Comme attendu, le spectre est composé de raies qui correspondent à la règle de sélection $q = 2k$. Ce sont d'une part, la raie Brillouin à 45 GHz et d'autre part, parmi les groupes de triplets autour de 0,4, 0,8 et 1,2 THz, aux deux raies de plus basse et plus haute fréquence. Des raies moins intenses apparaissent aux fréquences correspondant aux modes $q = 0$; les conditions expérimentales favorisent une réflexion de l'onde lumineuse sur l'interface SL/substrat, mais ce n'est pas toujours le cas selon les échantillons et les longueurs d'onde. De très hautes fréquences sont détectées, jusqu'à 1,2 THz où même en régime non-linéaire,

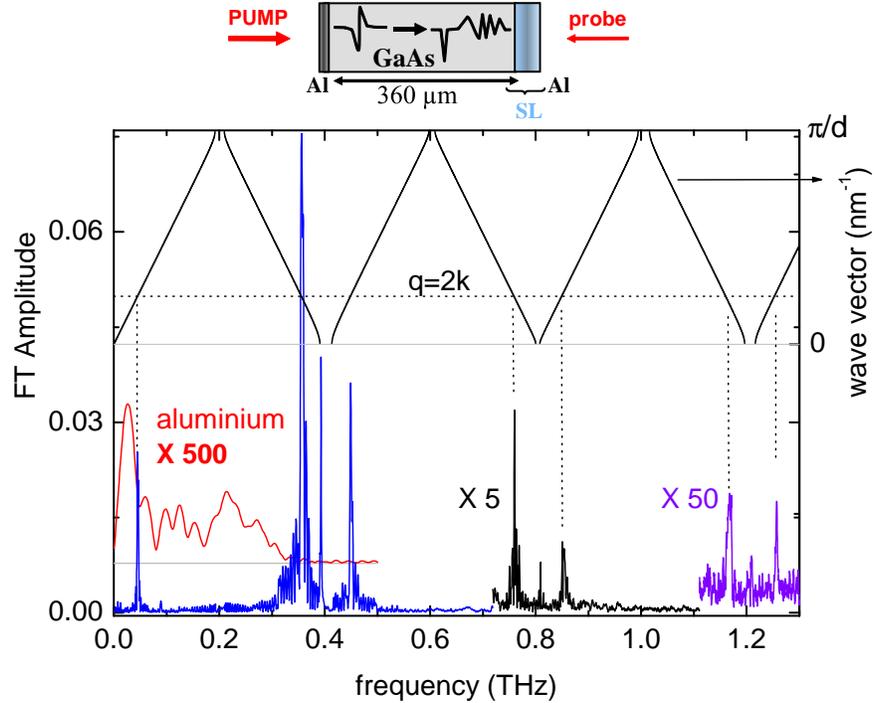


Figure 2.5 – SL400. Dans la configuration expérimentale pour étudier la détection par un SL schématisée par l’insert, spectre (transformée de Fourier de la dérivée du signal) du signal de détection avec une intensité de pompe de 12 nJ/impulsion et de longueur d’onde 777 nm. La courbe de dispersion est superposée. En rouge, le spectre obtenu avec un film d’aluminium de 30 nm dans les mêmes conditions.

on peut soupçonner que le spectre incident sur le SL après propagation est faible. Cela montre que le SL est un détecteur très sensible. Cela montre également l’enrichissement jusqu’à plus de 1 THz du spectre de l’impulsion initiale par effet non-linéaire pendant la propagation, ce qui n’était pas décelé avec des films métalliques. Nous avons comparé ces résultats avec ceux d’une expérience similaire, où la génération et la détection se font avec des films d’aluminium de 30 nm. La détection avec le SL peut s’avérer plus de 500 fois efficace et le spectre détecté par le film est limité aux fréquences inférieures à 0,4 THz.

De même que précédemment, la longueur d’onde du laser de sonde joue un rôle prépondérant puisque le coefficient photoélastique intervient dans la détection et on s’attend, même si sa variation avec l’énergie lumineuse est mal connue, à ce qu’il varie beaucoup au voisinage des transitions électroniques des puits quantiques. En effet, la réponse de la détection est très piquée autour des transitions E1HH1 et E1LH1 et en s’éloignant de seulement 10 nm à 20 nm, le signal chute de près d’un ordre de grandeur.

2.4 Transduction

2.4.1 Transduction avec deux SLs

Il devient alors naturel de combiner l'utilisation de multicouches en génération et en détection pour s'affranchir entièrement des limitations des transducteurs métalliques. Les fonctions de génération et de détection, l'une centrée vers la fréquence de bord de zone et l'autre vers la fréquence correspondant à la règle de sélection $q = 2k$ imposent deux SLs différents pour jouer ce rôle. Dans le cas où le même empilement serait utilisé à la fois en génération et en détection, et si la réflexion optique sur l'interface SL/substrat est négligeable, le recouvrement des fonctions de génération et de détection serait faible mais pas totalement nul à cause de la largeur finie des pics de génération et de détection.

Deux SLs ont été déposés sur les faces opposées d'un substrat de GaAs et utilisés l'un en génération et l'autre en détection (échantillon DS400). La structure est optimale à 0,4 THz, c'est-à-dire au-delà des performances ultimes des dispositifs mixtes SL / film métallique et à une fréquence où le libre parcours moyen dans GaAs à 15 K est certainement supérieur à 350 μm . Le miroir de Bragg de génération est homogène sur toute la surface de l'échantillon, tandis que l'épaisseur des couches constituant le miroir de détection présente un gradient dans le plan de l'échantillon : les épaisseurs nominales sont égales à celles de la multicouche opposée au centre de l'échantillon et varient de part et d'autre quand on s'éloigne du centre. Cela est rendu possible en arrêtant la rotation du substrat lors de l'épitaxie d'un des SL. Ce gradient permet de compenser le désaccord des fonctions de génération et de détection : quand la période du détecteur est telle que le maximum de détection est aligné avec le maximum de génération (voir figure 2.7(b)), la fonction de réponse totale (figure 2.6) est (presque) un mode unique étroit et très intense. Le changement de réflectivité obtenu en transmission, montré sur la figure 2.6, est un train d'onde qui oscille à la fréquence de 0,4 THz. La composante Brillouin est très faible mais à cause de la dispersion, elle est présente seule au début du train d'onde, entre 200 et 300 ps (la vitesse des hautes fréquences est en effet plus faible). Notons que les premières oscillations (avant 200 ps) sont dues à la détection du train d'onde dans le substrat avant qu'il n'atteigne le SL détecteur, car celui-ci est un peu transparent.

Atteindre la fréquence « mythique » du THz a été possible avec une structure similaire de période 5 nm (DS1). Il est nécessaire de travailler à une longueur d'onde où la détection est efficace ; dans ce cas, les puits quantiques étant fins (puits de GaAs de 1.4 nm), il a fallu travailler aux longueurs d'onde les plus basses que permettait le laser, plus instable et beaucoup moins intense en bord de zone spectrale de fonctionnement (690 nm mais la longueur d'onde optimale n'a pas été atteinte). Les résultats sont rassemblés sur la figure 2.7 : en déplaçant le faisceau de sonde sur le SL qui présente un gradient d'épaisseur, on obtient des spectres contenant deux composantes correspondant aux modes $q = 2k$, dont l'énergie varie avec la position de la sonde. Près de la position optimale, le spectre contient une composante supplémentaire, dont l'énergie reste fixe, correspondant à l'énergie du mode $q = 0$. Cette composante est maximale lorsque les deux énergies $E(q = 0)$ et $E(q = 2k)$ sont égales.

Ces mesures de transduction permettent de mettre en évidence la dispersion acoustique, en menant cette expérience sur plusieurs échantillons semblables générant à des fréquences différentes. On mesure la distance parcourue par l'onde en enregistrant la réflectivité sur longs délais pour pointer les temps d'arrivée d'autres échos. Grâce à 5 échantillons différents, le retard entre les temps d'arrivée de la fréquence Brillouin et la haute fréquence correspondant à $q = 0$ permet de retrouver la loi issue de la dispersion au premier ordre 1.2 : $\delta t/t_0 = 12 \pi^2 \gamma f^2 / v_0^3$, et une valeur pour

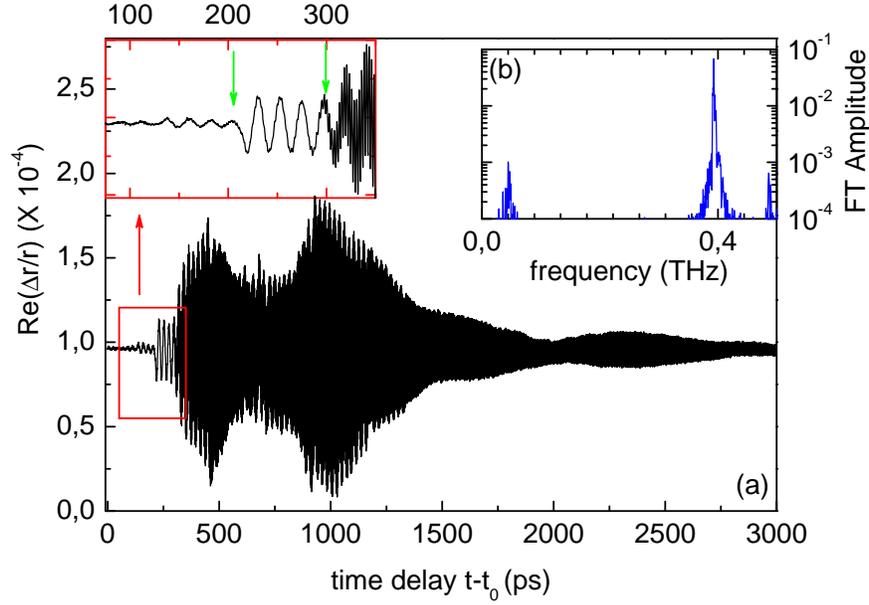


Figure 2.6 – (a) Changement de réflectivité pour l'échantillon DS400, à une intensité de pompe de 7,9 nJ/impulsion et une longueur d'onde $\lambda = 769 \text{ nm}$. Un agrandissement du début du signal montre l'arrivée dans la structure de détection de la composante Brillouin et du mode $q = 0$ (à $t \sim 200$ et 300 ps environ) (b) Spectre correspondant : le mode $q = 0$ domine de 2 ordres de grandeur les modes $q = 2k$.

le coefficient de dispersion de $\gamma = (6.9 \pm 0.2) \times 10^{-3} \text{ nm}^3 \cdot \text{ps}^{-1}$, légèrement inférieure à la valeur mesurée dans le groupe de Maris, $7.4 \times 10^{-3} \text{ nm}^3 \cdot \text{ps}^{-1}$ [26].

2.4.2 Transduction en face avant

Ces expériences prouvent la bonne performance des SLs comme émetteurs et récepteurs d'ondes acoustiques de haute fréquence. La configuration en double SL présente la difficulté d'un mode de croissance délicat. De plus, pour utiliser les SLs comme outils pour la spectroscopie THz, il est plus commode d'envisager de déposer une seule structure sur un échantillon, qui jouerait le rôle à la fois d'émetteur et de détecteur. Ce schéma permettrait d'étudier ensuite des structures déposées ou enterrées en face arrière de l'échantillon [57].

Les SLs présentent l'inconvénient, comme on l'a vu, d'être très efficaces comme générateur et détecteur mais pour des fréquences différentes. Toutefois, une réflexion optique suffisante sur l'interface SL/substrat peut lever cet obstacle et un SL unique peut jouer ce double rôle à la fréquence des modes $q = 0$. L'expérience a été menée sur le SL400, voir [54, 58]. D'où l'idée d'insérer un SL dans une cavité optique, dont le rôle est double : augmenter l'interaction du champ avec le SL pour la génération et exalter la détection des modes émis.

Le SL étudié (échantillon SLcav), de période d'environ 17 nm, a des zones interdites de centre de zone autour de 300 GHz, 600 GHz *etc.* La cavité optique est ainsi formée par le SL de 26,5 périodes de GaAs/AlAs, et de miroirs de Bragg de AlGaAs/AlAs. Elle possède un mode de cavité assez large, de manière à ne pas filtrer les faisceaux pompe et sonde impulsions, de largeur spectrale $\Delta\lambda$ d'une dizaine de nanomètres. Le mode de cavité devait se situer autour de 790 nm pour

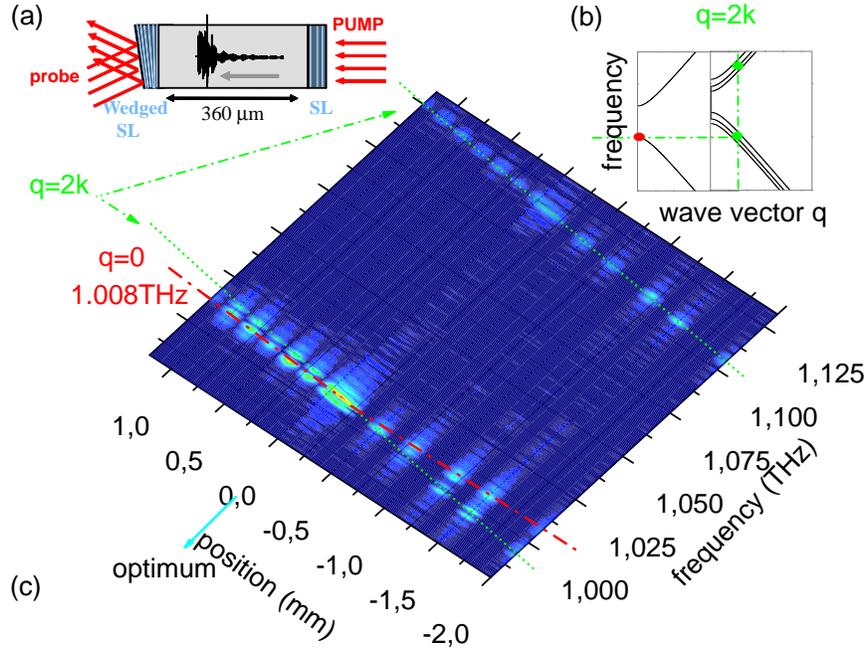


Figure 2.7 – (a) Schéma de l’expérience où les faisceaux de pompe et de sonde sont déplacés sur l’échantillon, permettant d’ajuster la réponse en fréquence de la détection. (b) courbes de dispersion des SL, dont celles du SL détecteur qui varient selon la position du faisceau laser. La position optimale correspond à la situation où le mode généré à $q = 0$ est égal au mode $q = 2k$ du détecteur. (c) échantillon DS1. Amplitude des transformées de Fourier de la réflectivité de la sonde pour différentes positions sur l’échantillon. Les lignes pointillées soulignent les modes détectés, en vert, et le mode généré à 1,008 THz, en rouge. La longueur d’onde du laser est de $\lambda = 695$ nm.

optimiser la fonction de détection acoustique du SL, dont les transitions excitoniques (E1LH1 et E1HH1), déduites de mesures de photoluminescence, se situent à 793 et 800 nm à basse température. Malheureusement le mode de cavité se situe à 756 nm. Si le SL a une réponse acoustique moindre à des longueurs d’onde éloignées des transitions excitoniques, il risque également d’avoir une réponse plus constante et cela favorise l’étude de l’effet intrinsèque de la cavité optique sur la réponse acoustique.

Une expérience menée en configuration « détection » sur l’échantillon SLcav montre que les prédictions sur la fonction de détection sont avérées (voir figure 2.8). Les modes $q = 0$ sont extrêmement bien détectés, comparés aux modes $q = 2k$, dans les 3 bandes interdites successives.

L’expérience décisive est de faire propager le train d’ondes acoustique généré par la structure et de le détecter après un aller-retour, donc en configuration pompe sonde « en face avant » sur la structure, c’est-à-dire avec la sonde et la pompe focalisées sur le même point. L’échantillon est toujours refroidi pour minimiser l’atténuation acoustique pendant la propagation à travers le substrat. La difficulté est de détecter un écho d’amplitude de l’ordre de 10^{-5} sur un fond non noir. La figure 2.9 montre le changement relatif de réflectivité transitoire « en face avant » dominé par la coïncidence pompe sonde (délai nul), signe de la photo-excitation de paires électrons trous, puis une plus lente diminution du signal due à la relaxation de ces derniers mêlée à un refroidissement de la structure. Ce signal atteint 10^{-2} . Cependant à un délai de 3500 ps, le premier écho se manifeste par

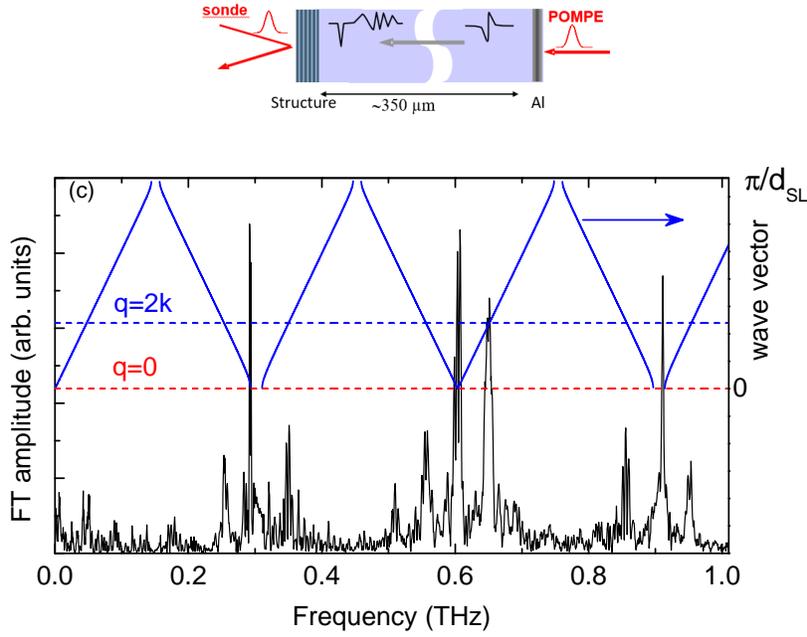


Figure 2.8 – Échantillon SLcav, configuration « détection » (expérience de transmission acoustique avec sonde sur la structure, voir schéma). Transformée de Fourier de la dérivée de $\text{Re}(\Delta r/r)$ à la longueur d’onde de sonde de 754 nm. La courbe de dispersion du SL est rappelée (échelle de droite)

de faibles oscillations sur la voie X. Le panneau (b) de la figure 2.9, où sont présentés les spectres du signal dérivé en fonction du délai, montre bien que le premier écho est dominé par le mode $q = 0$.

Une étude complète du premier écho a été effectuée, et montre notamment l’efficacité de la cavité optique pour détecter le mode émis correspondant à $q = 0$. Afin de découpler l’effet spectral de la cavité optique sur la génération et détection, nous avons utilisé une longueur d’onde différente et ajustable pour les faisceaux pompe et sonde [58]. Cela a été possible grâce au développement d’un montage « asynchrone », montage pompe sonde qui utilise deux lasers femtosecondes dont les taux de répétition, de l’ordre de 80 MHz, différent de quelques kHz. Cela assure un décalage temporel du faisceau sonde croissant linéairement avec le temps [59, 60].

2.5 Conclusion

La génération, à basse température, de trains d’onde de phonons cohérents, de fréquence comprise entre 0,1 et 1 THz, se propageant sur des distances de l’ordre de 300 à 600 μm a été démontrée grâce à la relaxation des modes de surfaces ou de cavité, et de modes de bords de zone.

Outre leur fréquence de fonctionnement plus élevée, qui est ajustée par le choix de la période de ces structures, ces nouveaux générateurs délivrent un signal qualitativement différent des films métalliques traditionnellement utilisés comme transducteurs : non pas une impulsion picoseconde, mais plutôt un train d’onde quasi-monochromatique avec une durée temporelle de l’ordre de la nanoseconde au moins.

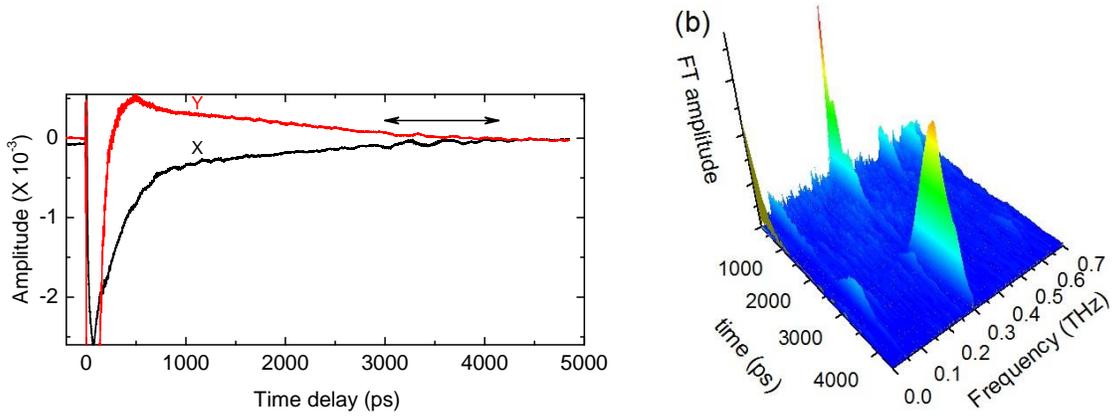


Figure 2.9 – échantillon SLcav : réflectivité $\text{Re}(\Delta r/r)$ mesurée par les deux voies de la détection synchrone en fonction du délai pompe-sonde. La voie X est en phase avec le premier écho, indiquée par une double-flèche (ayant fait un aller retour, correspondant à un temps de propagation de 152,7 ns), détecté à un délai de 3500 ps. La longueur d'onde du laser est de 758 nm. (b) Transformées de Fourier glissantes sur 500 ps en fonction du délai. Le mode $q = 0$ à 293 GHz domine les modes $q = 2k$ (Brillouin à 48 GHz et 253 GHz) lorsque l'écho apparaît après 3 ns.

Les propriétés de détection des SLs ont été aussi démontrées. Ces structures peuvent être des détecteurs de phonons très sensibles à des fréquences ajustables qui peuvent couvrir la gamme subTHz.

Ces propriétés de transduction se révèlent être très pertinentes pour évaluer les temps de vie des phonons à des fréquences précises, contrairement à des techniques de spectroscopie large bande. Les chapitres suivants sont consacrés à la mesure de l'atténuation dans des matériaux massifs à l'aide de ces structures, dans un domaine de fréquences jamais exploré faute de dispositif expérimental adapté.

Chapitre 3

Atténuation des ondes acoustiques dans GaAs

L'atténuation des ondes sonores de hautes fréquences est devenue un sujet d'actualité alors que les systèmes électroniques fonctionnent à des fréquences de plus en plus élevées. Par exemple le potentiel des micro-résonateurs électromécaniques (MEMS), en fort développement pour atteindre des tailles réduites et des gammes de fréquences de plus en plus grandes, va dépendre des niveaux d'atténuation acoustique. L'atténuation acoustique à haute fréquence, liée à la propagation de la chaleur, joue également un rôle important dans de nombreux problèmes technologiques comme la gestion de la chaleur dans les circuits intégrés, l'enregistrement magnétique assisté par la chaleur, l'amélioration des convertisseurs thermo-électriques ou de revêtements à barrière thermique... La connaissance de l'atténuation à haute fréquence est aussi importante pour le développement de l'imagerie par des techniques acoustiques de microstructures enterrées dans le domaine de la micro-électronique, et donc dans des matériaux semiconducteurs standards (GaAs, Si saphir...) [61, 62].

Dans les semiconducteurs et les diélectriques cristallins, la chaleur est transportée majoritairement par les phonons. À basse température, les libres parcours moyens sont grands et la propagation des phonons ballistiques sur des distances macroscopiques a été bien étudiée [63]. À température ambiante, la plupart des phonons possèdent des libres parcours moyens typiquement dans la gamme du nanomètre. Cependant, ces valeurs sont remises en cause récemment, tant d'un point de vue expérimental que théorique.

En effet, des techniques de spectroscopie de conductivité thermique par thermoréfectance ont été développées et suggèrent que les libres parcours moyens couvrent plusieurs ordres de grandeur [64, 65, 66, 67]. Dans des semiconducteurs comme le silicium ou l'arséniure de gallium, des mesures récentes [68, 69] montrent que les phonons de libre parcours moyen supérieur au micron contribuent de façon significative au transport de chaleur, en contradiction avec une théorie cinétique [70] qui prévoit plutôt un libre parcours moyen de 20 à 40 nm. Dans les systèmes de dimension réduite, la distribution des libres parcours moyens est déduite de la variation de la conductivité thermique avec la taille (par exemple dans les membranes de silicium). On trouve ainsi que les phonons de basse fréquence doivent avoir un libre parcours moyen dans le domaine micrométrique et contribueraient de façon notable [71, 72].

D'un point de vue théorique, des calculs *ab initio* ont vu le jour récemment, et bien que des différences quantitatives persistent entre les différentes approches, ils soulignent tous une contribution importante des phonons de basse fréquence au transport thermique [73, 74, 75]. Par exemple,

des simulations par Henry et Chen [76] suggèrent que le peu de phonons de libre parcours moyen supérieur au micron contribuent à 35% de la conductivité thermique à température ambiante, ce qui est en accord avec les récents résultats expérimentaux.

La distribution en fréquence des libres parcours moyens est cruciale pour la compréhension de la propagation de la chaleur dans les matériaux massifs et les matériaux nanostructurés, où des effets de taille sont attendus. Elle est en fait mal connue, même dans les semiconducteurs traditionnels. Des expressions semi-empiriques sont même employées pour estimer les libres parcours moyens [77].

On comprend ainsi l'intérêt de mesurer directement le libre parcours moyen de phonons sub-THz bien individualisés. Les valeurs des conductivités thermiques ne donnent que des estimations indirectes.

Des techniques comme la diffusion de neutrons inélastiques [78] ou de rayons X [79] ne donnent pas assez de précision dans ce domaine de fréquences. Les méthodes basées sur l'acoustique picoseconde avec des films métalliques comme transducteurs ont été utilisées pour mesurer des libres parcours moyens dans des matériaux massifs, de silicium notamment, jusqu'à 100 GHz [25, 80], et jusqu'à quelques centaines de GHz dans des films absorbants [28, 81]. Elles reposent sur l'analyse du contenu fréquentiel des échos successifs. Dans ce cadre, les SLs ont déjà été utilisés pour mesurer des libres parcours moyens, de la même manière [82] ou en examinant la décroissance temporelle des modes excités dans le signal de réflexion (dans cette étude, à température ambiante) [83]. Chen *et al.* [84] ont étudié la décroissance d'échos successifs dans un film de GaAs déposé sur un SL AlAs/GaAs qui agit comme un miroir parfait pour la fréquence Brillouin et l'atténuation dans GaAs à 56 GHz a pu être mesurée en fonction de la température ($T > 50$ K). Dans une géométrie proche de la nôtre (en transmission), Kent *et al.* [85] ont pu faire une mesure directe du libre parcours moyen dans GaAs à 650 GHz. Le mode $q = 0$ de fréquence 650 GHz d'un SL AlAs/GaAs est excité avec les impulsions d'un laser femtoseconde, et l'intensité du signal acoustique qui est généré et qui s'échappe du SL est mesurée de l'autre côté du substrat de GaAs avec un bolomètre en aluminium. L'arrière du substrat a été poli de façon à avoir un fort gradient d'épaisseur, de telle sorte qu'en se déplaçant sur l'échantillon, la distance de propagation varie de 0,5 à 1,7 nm. On peut ainsi en déduire le libre parcours moyen pour des phonons de 650 GHz : 0,8 nm à 2 K. Cette expérience directe ne permet cependant pas de faire varier la température, les bolomètres ne fonctionnant qu'à très basse température. Les calculs *ab initio* que j'évoquerai dans ce chapitre montrent maintenant que de la diffusion aux interfaces et/ou par des défauts cristallins limitent le libre parcours moyen qui devrait être beaucoup plus élevé [86].

Ce chapitre présente les mesures directes de l'atténuation dans GaAs de phonons longitudinaux de fréquence allant de 0,2 jusqu'à 1 THz dans GaAs, dans la gamme de température 10 à 80 K. C'est une application des résultats présentés chapitre 2.

3.1 Principe de mesure

Une onde qui se propage dans un cristal voit son amplitude diminuer exponentiellement avec la distance parcourue. Différents processus en sont la cause, d'origine extrinsèque ou intrinsèque [87]. Les processus extrinsèques ont pour origine un défaut du cristal, qui peuvent être un défaut ponctuel, une lacune atomique ou une substitution d'un atome, une dislocation, ou la rugosité d'interface. Une autre origine de ces défauts est la variation de masse entre les isotopes d'un même atome au sein du réseau cristallin [88]. A priori, ces processus ne dépendent pas de la température. Les processus intrinsèques, eux, trouvent leur origine dans l'anharmonicité des potentiels inter-

atomiques. Ils sont déterminés par les phénomènes d’interaction d’un phonon acoustique avec les phonons du bain thermique, pour se transformer par collision ou fission spontanée en un ou plusieurs phonons [89]. Ces processus ont une forte dépendance avec la température, via les facteurs de population de phonons.

Nous nous sommes intéressés à l’évolution avec la température de l’amplitude du signal correspondant à la traversée de l’échantillon, dans les expériences de transduction (voir § 2.4.1) et d’aller retour (donc deux fois la traversée, voir § 2.4.2). Nous avons suivi, dans le spectre de Fourier du signal, l’amplitude de la raie à la fréquence $q = 0$ du SL générateur. Nous accédons alors à la variation de l’atténuation relativement à celle à basse température

En effet, l’amplitude d’une onde acoustique monochromatique d’amplitude initiale A_0 et qui s’est propagée dans tout le substrat d’épaisseur L s’écrit : $A_L(T) = A_0 e^{-(\alpha_e + \alpha(T))L}$ avec $\alpha(T)$ le coefficient d’atténuation en amplitude dû aux processus anharmoniques et α_e celui dû aux processus extrinsèques. En variant la température, la quantité mesurée est alors :

$$\alpha(T) - \alpha(T_0) = \Delta\alpha(T) = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{A_d(T_0)}{A_d(T)} \right) \quad (3.1)$$

où T_0 est la température la plus basse dans nos expériences, 13 K environ. L’épaisseur L du substrat est mesurée à l’aide de deux échos successifs¹.

La table 3.1 résume toutes les expériences menées pour accéder à la variation du coefficient d’atténuation pour différentes fréquences. Quatre configurations ont permis de faire ces mesures.

1. *La configuration en transmission* : les échantillons de double super-réseaux déposés de part et d’autres du substrat nous ont permis de faire les mesures aux fréquences élevées, de 0,4 à 1 THz. Les propriétés du SL pouvant changer avec la température (notamment les énergies de transition électronique, même faiblement sur cette plage de température), j’ai pour chaque point de mesure cherché la longueur d’onde pour laquelle la détection était maximale et optimisé la position sur l’échantillon pour obtenir les conditions optimales de fonctionnement des doubles SLs. J’ai aussi vérifié que normaliser les amplitudes par celle des basses fréquences, a priori peu atténuées (amplitude de l’enveloppe de l’écho ou de la fréquence Brillouin) induisait une différence sur $\Delta\alpha$ négligeable. D’autre part, pour un échantillon, il a été possible d’inverser le rôle des SLs (émetteur/détecteur) et des mesures ont pu être effectuées aux fréquences 786 et 819 GHz.
2. *La configuration en réflexion sur la structure*, qui joue le rôle d’émetteur et de détecteur, pour mesurer le premier écho après un aller-retour dans le substrat. Les pertes éventuelles par réflexion sur l’interface substrat/hélium ne dépendent pas a priori de la température.
 - (a) avec un SL simple (SL400)
 - (b) avec le SL inséré dans une cavité optique (SLcav)
 - (c) avec un échantillon particulier, de grande période de telle sorte que les vecteurs d’onde électromagnétique incident et réfléchi vérifient $k_i + k_d = 0 \pmod{2\pi/d}$, la règle de sélection $q = 2k$ sélectionne ainsi les modes en centre de zone, ceux-là mêmes qui sont générés. La période étant grande (130 nm), les modes repliés en centre de zone sont resserrés, et plusieurs modes sont générés et détectés. Ceux dont le signal était suffisant à des températures allant jusqu’à 80 K environ correspondent aux fréquences basses 202 et 243 GHz.

1. voir § 1.2.2. Les substrats de GaAs sur lesquels sont épitaxiés les échantillons ont des épaisseurs typiques de 350 μm , mais qui varient de plusieurs dizaines de microns ($\pm 20 \mu\text{m}$) (voir le tableau 3.1).

Fréquence (THz)	Configuration	Distance de propagation (μm)
0.202	AR - LP ^a	750
0.243	AR - LP ^a	750
0.292	AR - SLcav	740
0.356	AR	692
0.394	Trans / AR / Trans	360/692/983
0.714	Trans	368
0.786	Trans	361
0.819	Trans	361
1.008	Trans	368

Table 3.1 – Les différentes configurations utilisées pour mesurer la variation d’atténuation. « AR » indique des expériences en réflexion qui ont permis de mesurer le train d’onde acoustique après un aller-retour, « Trans » des expériences en transmission. LP^a est un SL de grande période telle que la règle de sélection de détection est $q = k_i + k_d = 0 \pmod{2\pi/d}$: les modes générés sont aussi ceux qui sont détectés.

3.2 Validation du protocole

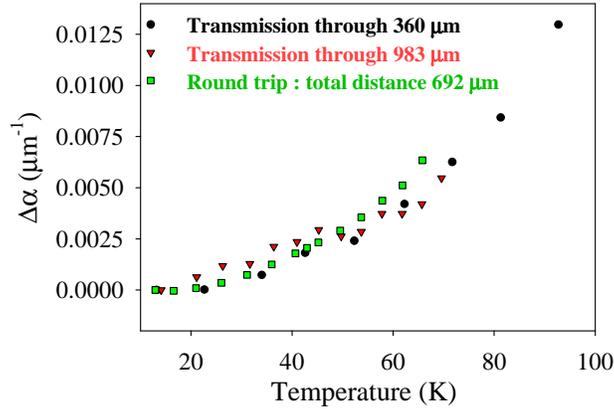


Figure 3.1 – Variation de l’atténuation (en amplitude) $\Delta\alpha(T)$ à la fréquence de 400 GHz en fonction de la température, pour trois distances de propagation.

Pour valider complètement le principe de ces mesures, nous avons fait varier la longueur de propagation. Pour cela la croissance d’un échantillon de double SL a été réalisée sur un substrat de GaAs d’un millimètre d’épaisseur, avec des SLs de mêmes caractéristiques nominales que ceux des échantillons DS400 et S400. Le mode de centre de zone qui est alors généré a pour fréquence 400 GHz. L’expérience de transduction acoustique avec un SL uniforme émetteur et un SL possédant un gradient d’épaisseur en tant que détecteur est alors effectuée en fonction de la température avec une distance de propagation presque trois fois plus grande (983 μm) qu’avec l’échantillon de double SL DS400. De plus, cette expérience est aussi comparée à la mesure faite avec l’échantillon comportant un simple SL S400 dans lequel la détection du mode $q = 0$ a pu être faite après réflexion sur la face arrière ; la distance de propagation est celle de l’aller retour dans le substrat d’épaisseur 346 μm .

Les résultats de variation d'atténuation sont vraiment comparables (15% de variation), comme l'illustre la figure 3.1.

3.3 Résultats et discussions

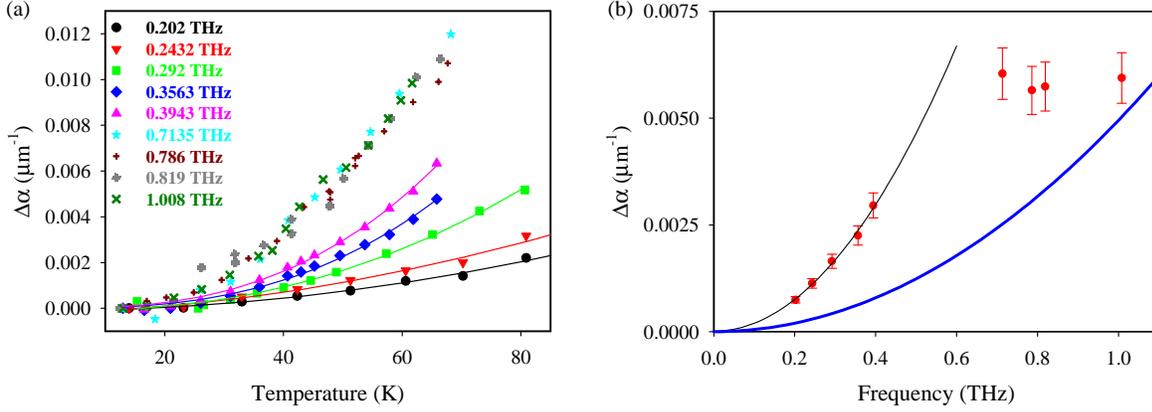


Figure 3.2 – (a) Variation de l’atténuation (en amplitude) $\Delta\alpha(T)$ en fonction de la température. Les lignes sont un guide pour l’œil. (b) Dépendance en fréquence de $\Delta\alpha(T)$ à 50 K (cercles rouges). La ligne noire est un ajustement en carré de la fréquence qui rend bien compte des données expérimentales jusqu’à 400 GHz. Les données expérimentales sont en désaccord avec l’estimation des processus de Herring donnée par la formule asymptotique de Simons [90] (ligne bleue) .

Les mesures d’atténuation relative sont regroupées sur la figure 3.2(a). Les courbes obtenues pour différentes fréquences présentent toutes deux régimes : un régime basse température ($T \lesssim 30 \text{ K}$) où l’atténuation augmente lentement en loi de puissance, et un régime plus haute température où l’atténuation varie linéairement avec la température.

De plus, au-delà de 0,5 THz, le coefficient d’atténuation devient identique : sur la figure 3.2(a) les courbes de variation d’atténuation en fonction de la température se superposent. La figure 3.2(b) met en évidence ce plateau d’atténuation en fonction de la fréquence à température donnée (ici à la température de 50 K).

Ces résultats sont assez inattendus, car ils ne suivent pas les théories courantes, en lois de puissance, valables pour les basses fréquences, comme nous allons le voir.

Deux mécanismes pour l’atténuation sont à considérer dans la gamme des très basses températures [91, 92]. La fission spontanée en deux autres phonons est due à l’anharmonicité du potentiel interatomique et est évaluée à environ $1,3 \times 10^{-4} f^5 \mu\text{m}^{-1}$, f étant la fréquence en THz. La diffusion isotopique est également importante et est estimée à $7,5 \times 10^{-4} f^4 \mu\text{m}^{-1}$. Ces deux contributions sont vite négligeables lorsque la température augmente devant les processus de diffusion par les phonons thermiques. Pour des phonons de fréquence supérieure à 10 GHz, à basse température, l’atténuation est surtout due aux interactions à trois phonons, correspondant au régime de Landau-Rumer. À plus haute température, ce modèle en perturbation à trois phonons n’est valable que pour les phonons de plus haute fréquence, à plus basses fréquence le régime est celui d’Akhiezer où la réponse collective des populations de phonons sous l’effet d’un champ de contrainte induit par l’onde acoustique doit être prise en compte.

Dans le régime de Landau Rumer, l'interaction à trois phonons est le principal mécanisme de l'atténuation des phonons [93]. Au premier ordre de la théorie des perturbations, l'inverse du temps de vie dû aux processus de fission ou de collision, pour un phonon de la branche j , de vecteur d'onde \mathbf{q} , d'énergie $\omega_{\mathbf{q}j}$ et de nombre d'occupation $n_{\mathbf{q}j}$ s'écrit [86] :

$$\begin{aligned}
(\tau)_{q,j}^{-1} = & \frac{\pi}{\hbar N_0} \sum_{q',j',j''} |V^{(3)}(\mathbf{q}j, \mathbf{q}'j', \mathbf{q}''j'')|^2 \\
& \times [(1 + n_{\mathbf{q}'j'} + n_{\mathbf{q}''j''}) \delta(\hbar\omega_{\mathbf{q}j} - \hbar\omega_{\mathbf{q}'j'} - \hbar\omega_{\mathbf{q}''j''}) \\
& + 2(n_{\mathbf{q}'j'} - n_{\mathbf{q}''j''}) \delta(\hbar\omega_{\mathbf{q}j} + \hbar\omega_{\mathbf{q}'j'} - \hbar\omega_{\mathbf{q}''j''})] \quad (3.2)
\end{aligned}$$

Cette équation fait intervenir les éléments de matrice $V^{(3)}(\mathbf{q}j, \mathbf{q}'j', \mathbf{q}''j'')$ de l'interaction phonon-phonon, dans le cadre de l'interaction à 3 phonons ; le premier terme décrit la fission et le second la collision. Comme précédemment dit, le processus de fission est négligeable pour des températures élevées et aussi pour des phonons de basse énergie. En effet, la conservation de l'énergie exige que les deux phonons créés aient des énergies plus petites que l'énergie du phonon initial, et il y a peu d'états finals qui conviennent. L'atténuation acoustique (en amplitude) est déduite du temps de vie via $\alpha_{q,j} = \frac{1}{2|v_{q,j}|\tau_{q,j}}$ avec $v_{q,j}$ la vitesse de groupe.

Expérimentalement, au delà de 30 K, la dépendance linéaire avec T s'explique simplement. En effet, la dépendance en température de α intervient dans les termes de population de phonons. Ceux-ci deviennent, à haute température (tout en restant dans un domaine de températures assez basses pour que le régime de Landau Rumer soit valide), $n = (e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1)^{-1} \approx \frac{k_B T}{\hbar\omega}$.

La dépendance en fréquence est plus complexe. La conservation des vecteurs d'onde et des énergies pour ces processus est une contrainte très limitante pour les phonons de basse énergie. Pour une onde acoustique longitudinale se propageant dans un cristal anisotrope, Herring [77] a montré qu'il existait un processus dominant, celui de la coalescence d'un phonon longitudinal (L) avec un phonon transverse lent (ST), ayant un vecteur d'onde proche d'une direction de haute symétrie, pour donner un phonon transverse rapide (FT) : $L + ST \rightarrow FT$. En effet, près de ces directions, une faible levée de dégénérescence des modes transverses permet le couplage d'une onde de basse énergie avec des phonons de grand vecteur d'onde pour lesquels la densité d'états est également importante. Grâce à des arguments de symétrie, Herring a prédit que la contribution de ce processus devait varier en $\omega^2 T^3$ pour des cristaux cubiques. En négligeant la dispersion, Simons a dérivé une expression pour le processus de Herring, et dans le cas de GaAs [100], l'atténuation s'écrit [90] :

$$\alpha(\mu\text{m}^{-1}) = 3,95 \times 10^{-8} f^2 T^3 \quad (3.3)$$

avec f la fréquence en THz. Cependant cette expression n'est valable dans un domaine de températures et de fréquences très restreint. En effet la comparaison de cette loi avec les points expérimentaux montre que l'expérience est hors du domaine de validité, ce qu'illustre la figure 3.2(b) où la courbe bleue résulte de la formule asymptotique.

L'existence du plateau en fréquence est sans doute lié à un effondrement des processus de Herring. En effet, ces derniers sont très efficaces car ils couplent une onde de basse énergie, de faible vecteur d'onde, avec des phonons thermiques de grand vecteur d'onde, de grande fréquence et donc pour lesquels la densité d'états est importante. Paradoxalement ce qui rend ces processus efficaces

à basse fréquence explique également leur effondrement dès lors que la fréquence de l'onde longitudinale augmente : on atteint en effet très rapidement la fréquence de coupure des ondes transverses particulièrement basse dans des semi-conducteurs à liaisons covalentes (tels que GaAs ou Si). Les autres processus d'interaction compensent cet effondrement et il en résulte le plateau observé dans les expériences. La densité d'état jointes à 2 phonons, où l'interaction est prise constante dans le calcul de l'atténuation, rend compte de la disponibilité dans l'espace des phases pour un processus d'interaction à 3 phonons. Pour les processus de Herring nous l'avons estimée dans [94] en prenant une fréquence de coupure pour les phonons transverses de 3 THz. On trouve alors une courbe qui augmente jusqu'à quelques centaines de GHz, puis décroît ensuite.

Le calcul complet de l'atténuation en tenant compte des paramètres négligés dans les théories basses fréquences, la dispersion qui apparaît dès le milieu de la zone de Brillouin et la limite en fréquence des phonons thermiques atteignant le bord de la zone de Brillouin, a été effectué à la fin de la thèse de R. Legrand. La dispersion utilisée provient de calculs ab initio fournie par J. Sjakste (laboratoire des solides irradiés). Les coefficients de couplage sont approchés dans le cadre de l'approximation de grande longueur d'onde. Pour corriger la surestimation du couplage pour les grands vecteurs d'onde, une fréquence de coupure est introduite, et constitue une variable ajustable. Les calculs numériques ont été effectués avec un maillage fin de la zone de Brillouin, en effet la dispersion joue un rôle très important, du fait de la conservation de l'énergie. Ils montrent bien un effondrement des processus de Herring pour les phonons acoustiques de plus haute fréquence.

3.4 Conclusion

Ces résultats d'atténuation ont motivé une collaboration avec Jelena Sjakste et Nathalie Vast du laboratoire des solides irradiés (LSI) et avec M. Markov et Lorenzo Paulatto (IMPMC SU). Ces résultats ont pu être reproduits à partir de calculs ab initio [86]. Les coefficients de couplage ont été calculés dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité en perturbation (DFPT) en utilisant la suite de codes *Quantum espresso*, (codes open source pour le calcul de structures électroniques et la modélisation de matériaux à l'échelle atomique ou microscopique). La figure 3.3 montre l'accord expérimental entre les points expérimentaux et le calcul de l'atténuation « absolue ». Il est notable que dans l'expérience, l'atténuation s'avère négligeable à basse température et qu'on accède à la valeur absolue d'atténuation. Les calculs complets montrent que le plateau de l'atténuation en fréquence, dû à l'effondrement des processus de Herring, est expliqué à la fois par l'allure de la densité jointe à 2 phonons correspondante, qui sature à partir de 500 GHz puis diminue, et par les valeurs prises par les coefficients de couplage.

Ces calculs prédisent aussi l'existence d'un plateau similaire (pour les phonons longitudinaux) ou un épaulement (pour les phonons transverses) dans la courbe de l'atténuation en fonction de la fréquence dans le cas du silicium vers 1,2-1,7 THz, et plus généralement dans les semiconducteurs cubiques.

Cet effondrement des processus de Herring confère aux phonons subterahertz un temps de vie beaucoup plus long qu'attendu et une extrapolation à la température ambiante prédit notamment un libre parcours moyen de 10 μm pour une onde longitudinale de 1 THz dans GaAs, et 50 μm dans Si, correspondant à une longueur d'onde de 8,5 nm. Ces résultats apportent une preuve directe de l'importance des phonons subterahertz dans le transport de chaleur. La prise en compte de ces très grands libres parcours moyens est donc cruciale pour une bonne compréhension du transport thermique dans les nano et micro-structures.

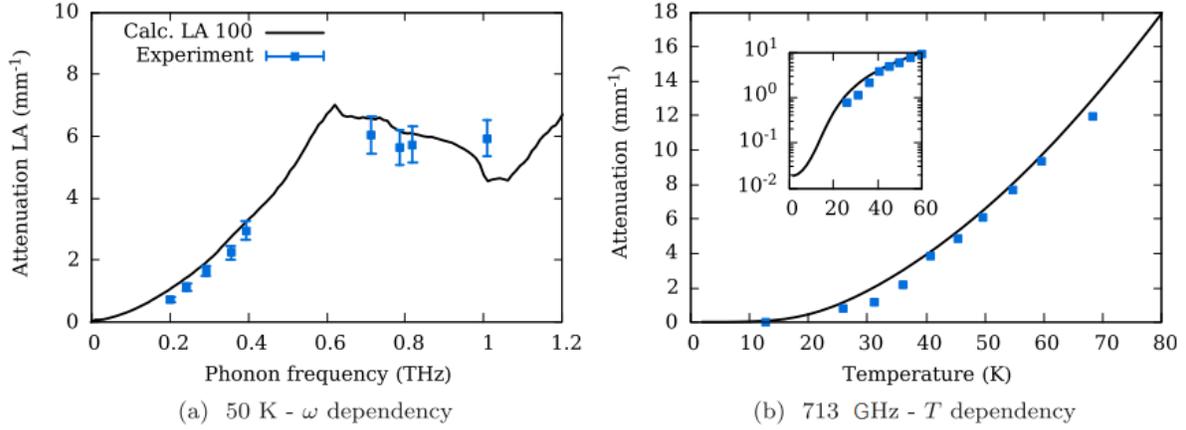


Figure 3.3 – Atténuation acoustique dans GaAs : comparaison des calculs avec les expériences : (a) à une température donnée (50 K) en fonction de la fréquence des phonons le long de la direction [100] et (b) à une énergie donnée ($\omega = 713$ GHz) en fonction de la température. L'encart montre l'atténuation sur une échelle logarithmique pour mettre en évidence le comportement à basse température. Des résultats similaires pour tous les points mesurés (R. Legrand, A. Huynh *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 184304, 2016) sont disponibles dans "Supplemental Material" (Phys. Rev. B **98** 245201)

Ces mesures dans un domaine de fréquence inédit ont mis en évidence un plateau inattendu dans l'évolution de l'atténuation avec la fréquence, et cela montre bien les limites des lois approchées en puissance utilisées pour estimer l'atténuation.

Chapitre 4

Atténuation des ondes acoustiques dans la silice

Les succès obtenus pour mesurer l'atténuation dans GaAs à l'aide de super-réseaux m'ont amenée à m'intéresser à des problématiques similaires dans les verres, grâce à une collaboration avec Marie Forêt (Laboratoire Charles Coulomb, université de Montpellier) qui s'est concrétisée par une ANR (ANR Glassphon 2012-2015).

Les anomalies que présentent les propriétés thermiques et vibrationnelles des verres par rapport aux cristaux constituent une question importante en sciences de matériaux, encore très débattue. Par exemple, à basse température, en-dessous de 1 K, la capacité thermique $C(T)$ augmente linéairement avec T , contrairement aux cristaux dont $C(T)$ varie en T^3 conformément à la prévision de Debye[95]. Cette variation est expliquée en postulant l'existence de systèmes tunnels à deux niveaux, dus à des défauts structuraux créés par le désordre, qui peuvent passer d'une configuration à une autre par effet tunnel (tunneling two-level systems TLS). Une autre anomalie est l'existence d'une bosse dans la courbe $C(T)/T^3$ autour de 10 K dans le cas de la silice, qui correspond à un excès de modes de vibration dans la gamme du THz, le fameux pic boson. L'origine du pic boson dans les verres et les matériaux amorphes intrigue depuis plusieurs décennies [96, 97]. De plus, la conductivité thermique présente un plateau autour de 10 K qui correspond aussi à des phonons dominants de fréquence autour de 1 THz. Ce plateau est une caractéristique universelle des verres [95] et semble indiquer que les phonons transportant la chaleur ne se propagent plus : l'atténuation doit augmenter au moins en ω^4 avec la fréquence [98, 99]. Cet intervalle fréquentiel correspond à des longueurs d'onde acoustiques proches des longueurs caractéristiques d'inhomogénéités structurales et vibrationnelles attendues dans les verres. La façon dont le désordre structural à l'échelle atomique affecte la propagation d'ondes macroscopiques n'est pas claire. L'interprétation traditionnelle, bien que controversée, est qu'à ces hautes fréquences, les modes acoustiques perdent leur caractère d'onde plane à des fréquences supérieures à une limite définie par un critère de Ioffe Regel (leur libre parcours moyen devient de l'ordre de leur longueur d'onde). Ce seuil doit être la conséquence d'un fort mécanisme d'amortissement prépondérant pour ces fréquences ($\sim 0,1$ à 1 THz). L'origine de cet amortissement est toujours débattue. La transition vers ce régime de forte atténuation n'a pas encore été observée.

Je me suis intéressée à l'étude de l'atténuation dans ce domaine de fréquences dans un verre modèle que constitue la silice, à l'aide des outils précédemment développés. En effet, cette plage de fréquence pertinente pour la silice correspond justement à celle où les super-réseaux étudiés sont

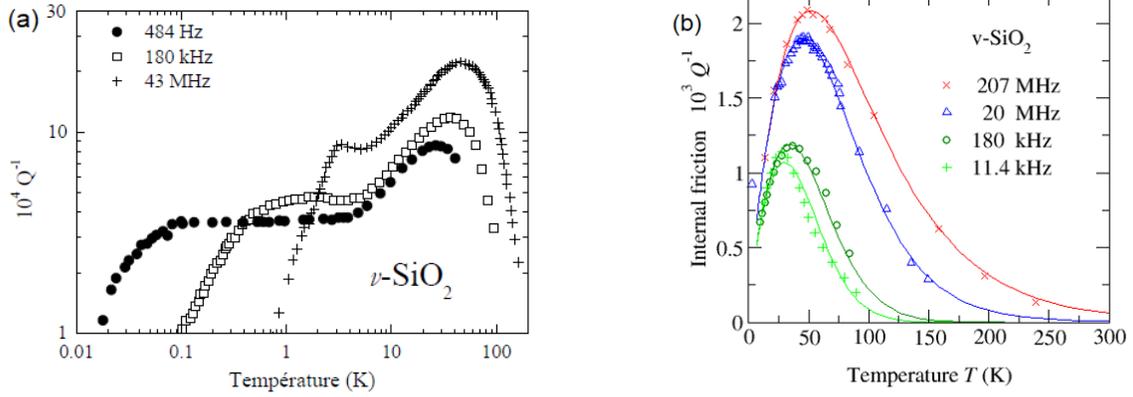


Figure 4.1 – (a) frottement interne (proportionnel à l’atténuation α) en fonction de la température, montrant un plateau à environ 1 K produit par les TLS, pour différentes fréquences 484 Hz [100], 180 kHz [101] et 43 MHz [102]. Le maximum d’atténuation à environ 50 K est produit par les relaxations thermiquement activés (TAR) (figure tirée de la thèse de Simon Ayrhinac, 2008). (b) frottement interne en fonction de la température pour plusieurs fréquences et polarisations. Le pic d’absorption est dû aux TAR. (figure tirée de [103])

performants pour la génération et la détection de phonons.

4.1 Amortissement acoustique dans les verres

Plusieurs mécanismes d’amortissement ont été identifiés dans des verres où les défauts d’ordre structural jouent un rôle majeur. En dessous de 10 K, l’atténuation est dominée par l’interaction du son avec des systèmes à 2 niveaux (TLS) issus des doubles puits asymétriques précédemment évoqués, et produit un plateau dans l’atténuation en fonction de la température (voir figure 4.1a). L’amplitude et la position du plateau évoluent avec la fréquence. Dans la gamme du GHz, ce plateau devient un épaulement du pic d’atténuation produit par les relaxations thermiquement activés (TAR)¹. En effet, à plus haute température, les processus de relaxation thermiquement activés (TAR) associés à des défauts structuraux donnent lieu à un pic d’absorption aux fréquences ultrasonores et au-dessous. Ce dernier se produit dans l’intervalle 30 K à 70 K pour v-SiO₂ (voir figure 4.1b). La question de savoir si les défauts qui produisent les TAR sont aussi à l’origine des TLS n’est pas tranchée. La dépendance en fréquence de l’atténuation acoustique résultante en fonction de la température donnée T peut être décrite en fonction de l’équation de Debye :

$$\alpha(\omega, T) \propto \int G(\tau, T) \frac{\omega^2 \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} d\tau \quad (4.1)$$

où G décrit la distribution des temps de relaxation τ des défauts en fonction de T . Une bonne description de l’absorption est généralement obtenue en supposant une activation thermique dans des systèmes à double puits asymétriques. Indépendamment de la forme de la distribution G , l’équation 4.1 donne toujours une atténuation dont la dépendance en fréquence est sous-quadratique.

1. Le frottement interne Q^{-1} est lié à la largeur de raie Γ et la vitesse du mode acoustique v : $Q^{-1} = \Gamma/\omega$ avec la largeur de raie $\Gamma = \alpha/v$

Comme dans les monocristaux sans défaut, l'atténuation sonore provenant des interactions anharmoniques avec les phonons excités thermiquement est également attendue dans les verres et les quasi-cristaux. Dans le traitement d'Akhiezer, l'onde sonore perturbe les phonons du bain thermique qui reviennent à l'équilibre pendant la durée de vie thermique moyenne τ_{th} des vibrations dominantes. La relaxation est plus efficace pour les fréquences acoustiques ω pour lesquelles $\omega\tau_{th} \approx 1$. Comme τ_{th} est court, il doit contribuer à l'amortissement acoustique à ω élevée. Une estimation de la contribution relative à l'atténuation acoustique dans la silice vitreuse du mécanisme TAR et Akhiezer a été fournie dans la réf. [103] dans le cadre des mesures de diffusion de Brillouin (voir figure 4.2).

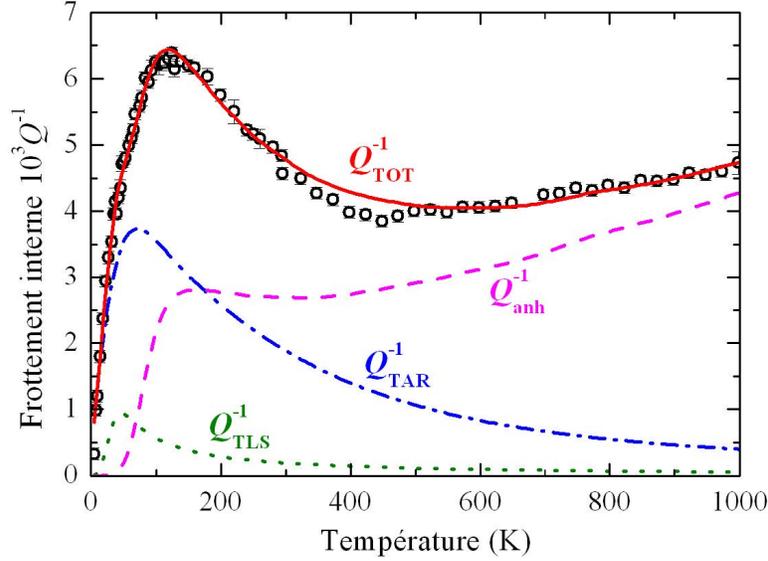


Figure 4.2 – Frottement interne (points) en fonction de la température, à 33.5 Ghz déduit des mesures de diffusion Brillouin (d'après [103]). La ligne verte est la contribution des systèmes à 2 niveaux; la ligne bleue est la contribution attendue des TAR, par extrapolation à la fréquence Brillouin du modèle à basses fréquences; la ligne violette est le calcul estimant la contribution due aux processus anharmoniques; la ligne noire est la somme de toutes les contributions.

À très haute fréquence, dans la gamme THz, un ultime mécanisme d'amortissement est déduit du plateau de conductivité thermique observé dans tous les verres. Ce dernier pourrait provenir de la diffusion Rayleigh par le désordre [95], de la diffusion par la présence de fluctuations locales d'élasticités [104, 105, 106], ou du couplage résonant avec les modes excédentaires (pic boson)[107, 108] dans le cadre du « soft potential model ». Les deux mécanismes devraient donner lieu à une augmentation spectaculaire de l'atténuation avec la fréquence. Une loi en ω^4 a, en effet, été mise en évidence au-delà de 1 THz dans quelques verres autres que la silice. Beaucoup d'efforts expérimentaux ont été faits récemment pour trouver une signature de cette loi dans des couches de SiO₂ en utilisant les techniques acoustiques ultrarapides, sans succès jusqu'à maintenant. La figure 4.3 compile les résultats publiés des différentes mesures de l'atténuation aux fréquences hypersoniques à 300 K. Les données à basse fréquence ont été obtenues par diffusion Brillouin (BLS) dans le domaine visible et ultraviolet. Suite aux travaux de R. Vacher *et al.* on peut estimer les contributions des mécanismes de TAR et d'anharmonicité. Certains des résultats d'acoustique picoseconde coïncident remarquablement avec la prédiction jusqu'à environ 300 GHz. Les données de l'expérience historique de Zhu *et al.* (comme ceux de la référence [115]) apparaissent maintenant nettement sur-

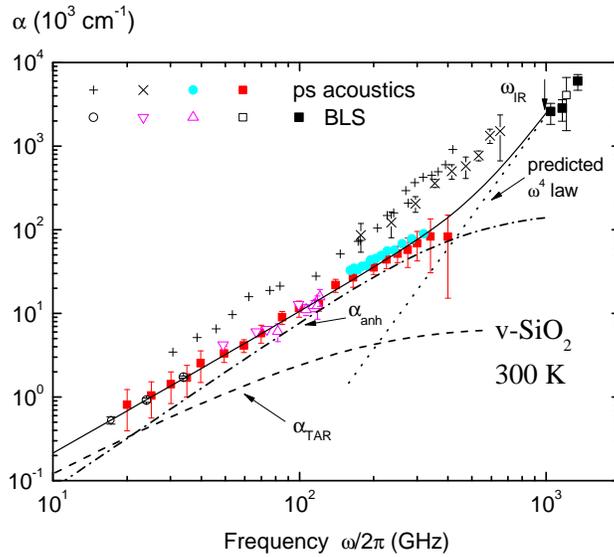


Figure 4.3 – Mesures du coefficient de l’atténuation en énergie pour des ondes LA dans v-SiO₂ à 300 K, déduites de différentes spectroscopies : diffusion Brillouin dans le visible (BLS) [109] (○), dans l’ultra-violet (▽ [110, 111] △ [112]) et résultats d’acoustique picoseconde dans des couches de SiO₂ de Ayrinhac *et al.* [113] (●) de Klieber *et al.* [114] (■), ainsi que les premières données de Zhu *et al.* [28] (+) et celles à hautes fréquences de Wen *et al.* [115] (×) qui semblent surestimées. La flèche indique la limite de Ioffe-Regel pour les ondes LA [116]. Les points au-dessus de la fréquence de Ioffe Regel ω_{IR} proviennent de la diffusion Brillouin de rayons X [117, 118]. La ligne continue est la somme des contributions estimées dues aux TAR (ligne tiret), à l’anharmonicité (ligne tiret point) et à l’amortissement prédit par le « soft potential » en ω^4 [119] (ligne pointillée).

estimés à la lumière des résultats globaux. Enfin, la ligne pointillée de la figure 4.3 est une prédiction quantitative du modèle de « soft potential », la flèche indiquant la limite d'Ioffe-Regel prédite pour les ondes LA [116]. La ligne continue représente l'amortissement total qui est donc attendu à 300 K.

Pour tester la validité globale de cette interprétation, il faudrait effectuer des mesures en fonction de la température :

- à basse température, la contribution des TAR devrait prévaloir contre l'anharmonicité en-dessous d'une certaine fréquence qui dépend de la température.
- à très haute fréquence, la loi ω^4 devrait devenir dominante quelle que soit $T < 300$ K.

Aucune dépendance significative de l'atténuation des phonons en fonction de la température n'a été trouvée dans la plage 30-440 GHz dans le travail originel par H. J. Maris et ses collègues [28].

J'ai donc étudié l'atténuation acoustique en fonction de la température dans des films minces de silice, dans un schéma simple d'expériences d'échos générés et détectés par un transducteur métallique. Cela permet une exploration jusqu'à des fréquences de 200 GHz. Cette étude est présentée dans le paragraphe suivant. Dans un deuxième temps, je montrerai les expériences en cours pour explorer l'atténuation à plus haute fréquence, à basse température et à l'ambiante.

4.2 Atténuation mesurée par des échos dans des films minces

Les films minces de dioxyde de silicium amorphe (SiO_2) sont couramment utilisés dans une grande variété d'applications allant des circuits intégrés, aux dispositifs à ondes acoustiques de surface (SAW) ou aux capteurs à base de nanoparticules. Les propriétés physiques des films sont souvent cruciales pour déterminer les performances de ces applications. Cependant, il est connu que les propriétés des films de SiO_2 peuvent varier notablement suivant la technique de dépôt utilisée. Par exemple, il a été observé que le facteur de qualité des résonateurs SAW varie avec la température de dépôt de la couche de recouvrement en silice qui affecte les pertes acoustiques [120]. Les couches de SiO_2 déposées sont également des matériaux clés pour certaines expériences de précision dans lesquelles la réduction du bruit thermique est d'une importance cruciale. Des travaux récents ont, par exemple, révélé que les pertes dans le revêtement optique (empilement de SiO_2 / Ta_2O_5) des miroirs des détecteurs d'ondes gravitationnelles ont une grande contribution au bruit thermique global [121]. Il est donc fondamental d'étudier les mécanismes dissipatifs à l'origine des pertes acoustiques dans les couches diélectriques amorphes et en particulier de les comparer à celles du matériau massif, la silice vitreuse $v\text{-SiO}_2$.

4.2.1 Principe de l'expérience et analyse

L'acoustique picoseconde se présente comme une alternative aux techniques de diffusion inélastique pour étudier la dynamique des phonons à des fréquences au-dessus du GHz. La technique pompe-sonde qui avait déjà donné des résultats dans les travaux précédents est revisitée, dans une gamme de température allant de 15 à 300 K. Nous utilisons ici uniquement une seule couche métallique comme transducteur, en configuration de réflexion.

L'impulsion acoustique est produite par l'impulsion laser pompe dans un film d'Aluminium et se propage à travers la couche de silice prise en sandwich entre le film métallique mince et un substrat (GaAs ou saphir). Les échos successifs après des allers retours dans la couche de silice sont détectés grâce à la sonde focalisée sur le film d'aluminium (expérience « en face avant », voir schéma figure 4.4). Comparer les spectres des échos successifs et ajuster le rapport de ces spectres

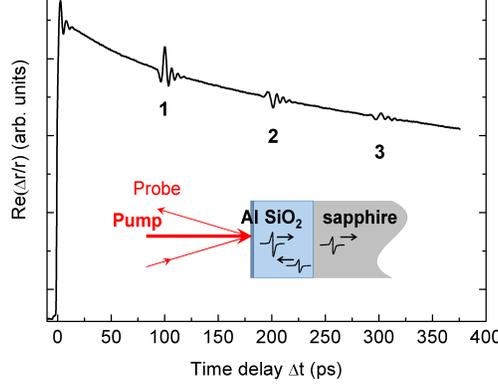


Figure 4.4 – Changements de réflectivité à 45 K. Les numéros indiquent le nombre d’allers-retour effectués par les trois échos.

par une loi de puissance [28] s’avère peu précis. Des oscillations apparaissent, dues aux réflexions à l’interface entre le transducteur (film métallique) et la silice. On préfère évaluer l’atténuation à partir d’une analyse de l’ensemble du signal acoustique basée sur un modèle de désaccord d’impédance incluant une loi effective pour l’atténuation acoustique dans la couche de SiO_2 .

En effet, dans les gammes de température et de fréquences de l’expérience, les mécanismes d’amortissement TAR et d’anharmonicité sont dominants, chacun avec des signatures en fréquence et en température bien distinctes. Nous utilisons donc une loi de puissance *ad hoc* pour la dépendance fréquentielle de l’atténuation acoustique dans la couche, $\alpha(\omega, T) = \alpha_0(T) \omega^{p(T)}$ afin de représenter l’amortissement sonore effectif de l’impulsion. Par la suite, α représente le taux d’atténuation de **l’énergie**, par unité de distance².

L’absorption de l’impulsion lumineuse dans la couche d’aluminium est traduite par l’apparition d’une déformation en dérivée de gaussienne $\sigma(t, z=0) \propto \frac{-t}{\delta^2} e^{-t^2/\delta^2}$, de durée caractérisée par le paramètre δ (plus réaliste que la solution 6.4). En appliquant la continuité aux interfaces de la contrainte et du déplacement, on obtient le déplacement de la surface libre d’aluminium :

$$u_0(\omega) = \frac{A(\omega) e^{-iq_m l} + B(\omega) e^{iq_m l} \sigma(\omega, z=0)}{A(\omega) e^{-iq_m l} - B(\omega) e^{iq_m l} i Z_m v_m q_m} \quad (4.2)$$

avec

$$A(\omega) = \left[1 + \frac{Z_g}{Z_m} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right) + \frac{Z_s}{Z_g} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right)^{-1} + \frac{Z_s}{Z_m} \right] e^{-iq_g d} e^{\frac{\alpha d}{2}} + \left[1 - \frac{Z_g}{Z_m} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right) - \frac{Z_s}{Z_g} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right)^{-1} + \frac{Z_s}{Z_m} \right] e^{iq_g d} e^{-\frac{\alpha d}{2}} \quad (4.3)$$

$$B(\omega) = \left[1 - \frac{Z_g}{Z_m} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right) + \frac{Z_s}{Z_g} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right)^{-1} - \frac{Z_s}{Z_m} \right] e^{-iq_g d} e^{\frac{\alpha d}{2}} + \left[1 + \frac{Z_g}{Z_m} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right) - \frac{Z_s}{Z_g} \left(1 - \frac{\alpha}{2iq_g} \right)^{-1} - \frac{Z_s}{Z_m} \right] e^{iq_g d} e^{-\frac{\alpha d}{2}} \quad (4.4)$$

2. dans le chapitre précédent, α désigne le taux d’atténuation de l’amplitude de l’onde

où v , q and Z sont la vitesse du son, le vecteur d'onde, et l'impédance du milieu spécifié par l'indice (m pour l'aluminium, g pour la silice SiO_2 et s pour le saphir (substrat)); l et d sont les épaisseurs du film métallique et de la couche de silice.

De plus, comme l'impulsion sonde est peu transmise par la couche d'aluminium, la réponse photo-élastique de la couche de silice et celle du substrat peuvent être négligées. Enfin, les expériences sur les solitons acoustiques effectuées par E. Péronne de l'INSP ont montré que la contribution de l'effet photoélastique à $\text{Re}(\Delta r/r)$ était faible quand le signal était détecté à l'aide de films minces d'aluminium. D'où l'expression du changement de réflectivité $r = \rho e^{i\phi}$:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta\rho(\omega)}{\rho} &= \text{Re}\left\{2ik_0 \left[\varepsilon_m + \frac{1}{2} \frac{\partial\varepsilon_m}{\partial\eta} \right] \right. \\ &\quad \left. \times \frac{a_m b_m}{n_0 a_0 b_0} [\cos(q_m l) - 1] u_0(\omega) \right\} \end{aligned} \quad (4.5)$$

où l'indice 0 dénote l'air; k est le vecteur d'onde electromagnetique; a et b sont les amplitudes des champs incidents et réfléchis; ε est la constante diélectrique et $\frac{\partial\varepsilon}{\partial\eta}$ est sa variation avec la déformation. Le changement de réflectivité temporel est obtenu à partir de la transformée de Fourier de cette expression (4.5) et $\frac{\Delta\rho(t)}{\rho}$ est comparé aux mesures.

4.2.2 Élaboration des échantillons

Les couches de silice ont été fabriquées par Xavier Lafosse du laboratoire LPN à Marcoussis, désormais le Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) sur le plateau de Saclay. Un travail de sélection et d'optimisation du procédé de dépôt des couches amorphes SiO_2 a été réalisé pour se rapprocher le plus possible des propriétés de la silice thermique. Celle-ci est obtenue traditionnellement par oxydation sèche ou humide d'un substrat de silicium à des températures élevées (800 °C- 1200 °C). Ce procédé est inapproprié pour obtenir des couches minces de silice sur des substrats différents du silicium (comme le saphir) ou sur lesquels est déjà déposé un super-réseau GaAs/AlAs, comme ce sera le cas dans la poursuite de ces travaux (voir § 4.3.2). Cette dernière exigence implique que le procédé ne mette pas en jeu des températures supérieures à environ 400 °C pour préserver l'intégrité des super-réseaux GaAs/AlAs. Les méthodes de dépôt chimique en phase vapeur à très basse température assisté par plasma (Plasma-Enhanced CVD : PECVD) ont également été écartées car elles produisent des couches SiO_2 dont la vitesse acoustique longitudinale ($v_{LA}=5500$ m/s à 5700 m/s) est significativement inférieure à la vitesse nominale d'une silice synthétique commerciale de haute qualité (Heraeus, suprasil $v_{LA}=5990$ m/s). Nous avons retenu le procédé de pulvérisation cathodique radiofréquence (RF sputtering). Un plasma froid pulvérise une cible de silice, éjectant des structures moléculaires qui se déposent sur un substrat (porté à une température modérée, 300 °C) pouvant être au choix Si, saphir, ou GaAs. Un travail d'optimisation des paramètres de dépôt a été réalisé et est décrit dans [122].

Dans une première étape, nous avons choisi d'étudier une couche SiO_2 déposée sur un substrat de saphir, du fait du fort coefficient de réflexion acoustique $\text{SiO}_2/\text{saphir}$ favorisant l'observation de nombreux échos acoustiques. Le transducteur évaporé sur la silice est une couche d'aluminium de 20 nm, et la couche de silice a un épaisseur de $d = 281 \pm 2$ nm.

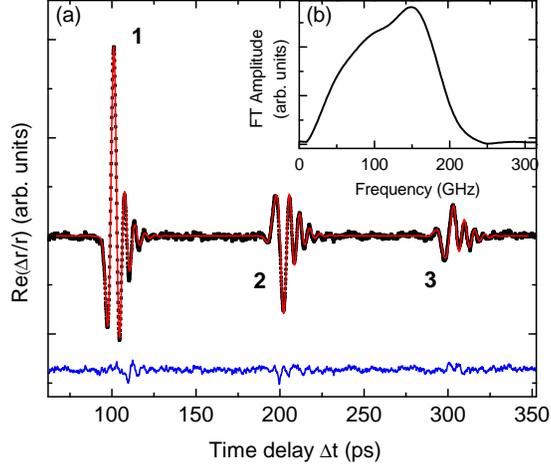


Figure 4.5 – (a) Changement de réflectivité (partie réelle) à 45 K en fonction du délai pompe sonde, après soustraction du fond continu dû à la décroissance thermique (●). Sur ce signal, est superposé en rouge le meilleur ajustement des trois échos. La courbe bleue (en bas) est la différence entre la courbe expérimentale et l’ajustement, sur la même échelle mais translatée pour la visibilité. (b) Amplitude de la transformée de Fourier du premier écho.

4.2.3 Résultats et Analyse

La figure 4.5 montre un signal typique obtenu à 45 K, où les échos successifs apparaissent après soustraction du fond décroissant qui traduit le refroidissement de la couche d’aluminium. Pour une telle couche d’aluminium, le contenu fréquentiel s’étend de 40 à 200 GHz comme le montre le spectre du premier écho (insert de la figure 4.5). La courbe rouge est l’ajustement calculé à l’aide du modèle (4.5). Un très bon accord est obtenu comme le montre la courbe résiduelle (en bleu).

L’analyse simultanée des trois premiers échos apparaît déterminante dans l’évaluation précise des paramètres d’atténuation. Les coefficients α_0 et p trouvés lors du refroidissement de 300 K à 15 K sont représentés sur la figure 4.6. Le préfacteur α_0 décroît d’un facteur d’environ 2,5 accentuant l’abaissement de l’atténuation acoustique avec T décroissant. L’exposant p est tel que $p \leq 2$ à toutes les températures ce qui est cohérent avec les processus de relaxation TAR et anharmonique. Les taux d’atténuation résultants sont en bon accord avec les précédents résultats d’acoustiques picoseconde (seulement disponibles à 300 K) comme l’indique la figure 4.7(a). On a vu que l’atténuation hypersonique dans ν -SiO₂ provient principalement des effets combinés des TAR et de l’anharmonicité. Une inspection détaillée conduit aux deux observations suivantes :

- (i) L’atténuation dans la couche de SiO₂ présente un pic à environ 50 K, tout comme celle de de la silice massive mais elle apparaît légèrement plus grande et plus nette, voir figure 4.7(b). Selon le modèle TAR, cela indiquerait une plus grande concentration de défauts de relaxation dans la couche que dans l’échantillon massif.
- (ii) A l’ambiante, en revanche, l’atténuation de la couche de SiO₂ est principalement due à l’anharmonicité et donc similaire à celle de la silice massive.

La figure 4.7 résume les résultats d’atténuation pour les fréquences extrêmes atteintes et une fréquence centrale (120 GHz) avec les différentes contributions estimées à partir des modèles basses fréquences (voir [122] pour plus de détails, où l’analyse de la variation de la vitesse associée aux

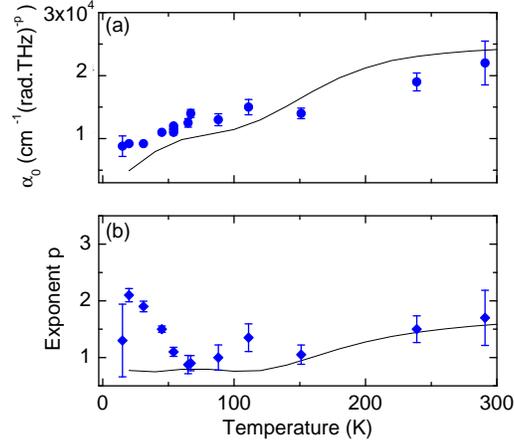


Figure 4.6 – Paramètres α_0 et p intervenant dans la loi effective $\alpha(\omega, T) = \alpha_0(T) \omega^{p(T)}$. Les lignes sont les variations prédites par le modèle combinant un amortissement dû à l’anharmonicité et aux TARs avec une densité de défauts multiplié par 1,5.

mécanismes d’atténuation pourra y être aussi trouvée). On conclue que le modèle d’amortissement combinant TAR et anharmonicité détaillé dans la réf. [103] est valable jusqu’à 250 GHz et dans la gamme de température explorée.

De plus l’amortissement dû à l’anharmonicité reste probablement identique pour les deux matériaux, silice massive ou films. Il semble également probable que l’anharmonicité des phonons ne dépende pas de la quantité de défauts relaxants, puisqu’ils n’affectent guère la densité vibratoire des états.

4.3 Perspectives

4.3.1 Expériences d’échos avec des films minces

La mise au point de cette analyse nous a permis d’estimer le poids des différentes contributions (TAR, anharmonicité, les TLS intervenant surtout à $T < 10$ K) à l’atténuation dans des couches minces de silice. Cela permettrait de caractériser des couches de silice déposées par différents procédés. Par exemple, les projets d’interféromètres de l’astronomie gravitationnelle mettent en œuvre des miroirs contenant des couches optiques diélectriques de très haut facteur de qualité (SiO_2 , Ta_2O_5). Comprendre les mécanismes microscopiques à l’origine du frottement interne et les maîtriser dans les différents procédés serait très utile. L’analyse présentée précédemment serait un moyen efficace [124].

En terme de physique fondamentale, le prolongement logique de cette étude est d’augmenter la plage de fréquence d’étude pour mettre en évidence la transition attendue vers le régime de forte atténuation.

Nous avons déjà commencé des expériences similaires sur des échantillons de même type mais avec une couche d’aluminium plus fine, de 12 nm (voir figure 4.9). Le spectre s’étend désormais de 20 à 350 GHz. La difficulté est de modéliser correctement la déformation induite par la couche d’aluminium. En effet, les études sur les solitons acoustiques à l’INSP ont montré que le modèle

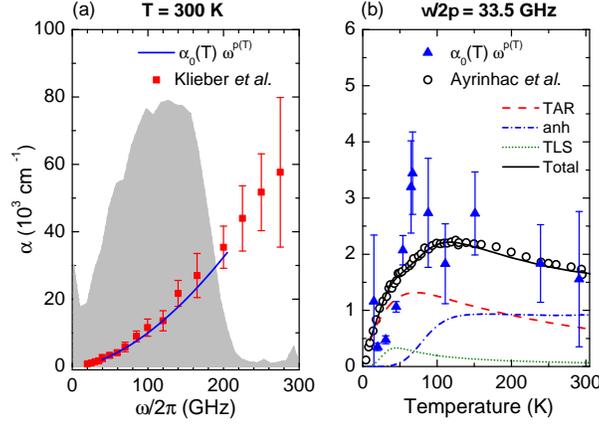


Figure 4.7 – (a) Taux d’atténuation acoustique en énergie en fonction de la fréquence (—) déduit des paramètres α_0 and p trouvés à 300 K. L’aire grisée rappelle l’amplitude du spectre du premier écho acoustique. Nos résultats sont en bon accord avec la détermination expérimentale de α par Klieber *et al.* [114] à température ambiante (■). (b) Taux d’atténuation acoustique en énergie en fonction de la température à 33,5 GHz obtenu à partir des paramètres $\alpha_0(T)$ and $p(T)$ (▲). Les valeurs trouvées dans $v\text{-SiO}_2$ massif à partir de diffusion Brillouin à la même fréquence (○) sont montrées comme référence [123]. La ligne continue est un ajustement des mesures Brillouin fait dans les Réfs. [103, 123], somme de deux contributions principales, α_{TAR} and α_{anh} plus la petite contribution des systèmes à deux niveaux α_{TLS} .

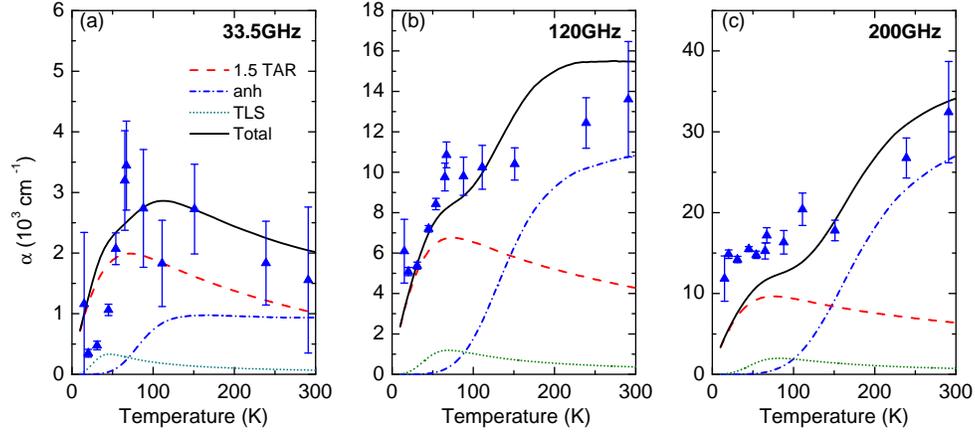


Figure 4.8 – Taux d’atténuation acoustique en énergie obtenu pour la couche de silice à 33,5 GHz (a), 120 GHz (b) and 200 GHz (c). Les valeurs sont déduites des paramètres α_0 et p . Les lignes sont les prédictions du modèle qui combine deux principales contributions, $1.5 \times \alpha_{\text{TAR}}$ et α_{anh} plus la petite contribution α_{TLS} . On trouve que la contribution α_{TAR} dans la couche de SiO_2 est presque une fois et demi celle dans $v\text{-SiO}_2$ massif, indiquant un plus grand nombre de défauts relaxants.

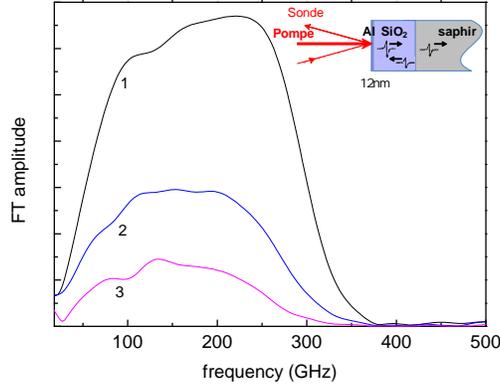


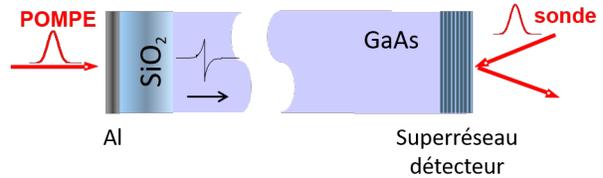
Figure 4.9 – Spectre des échos successifs à 11 K dans un échantillon de silice de 150 nm recouvert d'un film d'aluminium de 12 nm. Les numéros indiquent le nombre d'aller-retour effectués par l'écho.

pris précédemment convient moins bien pour des couches d'aluminium fines.

4.3.2 Expériences associant des films minces et des super-réseaux

Une seconde possibilité est d'utiliser les super-réseaux comme détecteur. En effet on a montré qu'ils étaient très sensibles et pouvaient détecter des fréquences élevées bien que discrètes, puisque la détection obéit à la règle de sélection $q = 2k$. Un autre aspect est de tirer parti de la variation avec la température des différents mécanismes d'atténuation, pour mieux observer la transition vers le régime de forte atténuation. En effet, comme l'illustre la figure 4.3, les mécanismes de TAR et d'atténuation doivent être dominés par le processus de forte atténuation en ω^4 à haute fréquence. Cette transition qui se situe autour de 0,5 THz à température ambiante devrait se situer à des fréquences de plus en plus faibles quand la température baisse. C'est bien cette tendance que l'on voit sur la figure 4.10, qui montre l'estimation de l'atténuation due à ces mécanismes à quelques températures, suivant les travaux de R. Vacher *et al.* [103]. Le régime de forte atténuation est modélisé quantitativement à partir du « soft potential model » en supposant qu'il ne dépend pas de la température. La transition vers ce régime se trouve autour de 0,2 THz à une température de 15 K.

Cette plage de fréquences, autour de 0,2 THz correspond au spectre de l'onde acoustique générée par une couche d'aluminium de 10 à 30 nanomètres, et un super-réseau de période spatiale bien choisie permettrait la détection de plusieurs fréquences jusqu'à quelques centaines de GHz. Nous avons choisi une configuration simple qui permet de déduire l'atténuation directement. L'onde acoustique est générée par une couche d'aluminium déposée sur un film de silice. Après traversée de la couche de silice puis le substrat, cette onde est détectée grâce à un super-réseau déposé sur l'arrière du substrat (voir schéma ci-contre). L'analyse spectrale du signal transmis permet d'en déduire l'atténuation si on analyse la propagation de phonons sub-THz dans des films de différentes épaisseurs.



Cette configuration oblige à travailler à basse température (7 à 15 K). En effet, la seule cause

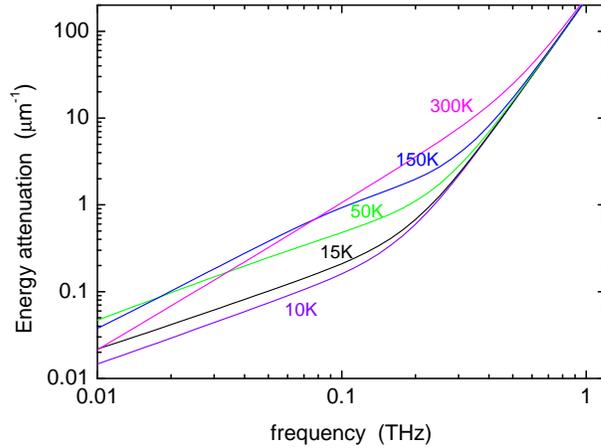


Figure 4.10 – Calcul du coefficient de l’atténuation de l’énergie (suivant [103]) en fonction de la fréquence pour différentes températures.

d’atténuation de l’onde acoustique doit être celle due à la traversée de la couche de silice et l’onde ne doit pas subir d’atténuation pendant la propagation dans le substrat de GaAs. Cette expérience ne permet donc pas de faire varier la température³. L’autre contrainte est de rester en régime linéaire pour que de la même manière, la propagation dans le substrat ne modifie pas l’onde acoustique après traversée de la silice. Cela rend plus difficile l’acquisition du signal du fait des faibles niveaux d’intensité des impulsions lumineuses.

Le super-réseau choisi a une période spatiale qui correspond environ à l’échantillon S200. Il est constitué de 40 périodes ($d = 24,78$ nm) de GaAs/AlAs d’épaisseur respective 17,7 nm et 7,1 nm, et permet d’échantillonner le signal détecté aux fréquences Brillouin (~ 45 GHz) et à 150, 240, 340, 430, 540, 630 GHz environ (les valeurs dépendent faiblement de la longueur d’onde du laser utilisée). Cela est illustrée sur la figure 4.11 où sont comparés deux spectres après traversée d’une couche de silice de 100 et 300 nm. En principe il est donc possible d’obtenir la variation relative du coefficient d’atténuation jusqu’à des fréquences autour de 630 GHz, grâce à la comparaison entre deux épaisseurs de silice traversées.

4.3.3 Expériences avec des films minces et un puits

Une autre façon de générer des phonons de haute fréquence est d’utiliser des puits quantiques à base de InGaN/GaN comme l’a proposé C.-K. Sun de la National Taiwan University [115, 125]. Ces matériaux sont connus pour leur piézoélectricité, et des structures constituées de plusieurs puits quantiques InGaN/GaN (14) peuvent générer de fortes oscillations dans le signal de transmission pompe sonde, de l’ordre de $\Delta T/T \approx 10^{-2} - 10^{-3}$ [126]. Après absorption d’une impulsion femtoseconde dans l’UV, les porteurs photoexcités écrantent le champ piézoélectrique, modifiant ainsi l’équilibre du réseau, ce qui provoque sa relaxation par l’émission d’une onde cohérente. De la même manière que pour les SLs de GaAs/AlAs, la période de l’empilement des puits gouverne la

3. il faudrait amincir le substrat en conservant une bonne qualité de surface avant de déposer la couche de silice et le film d’aluminium

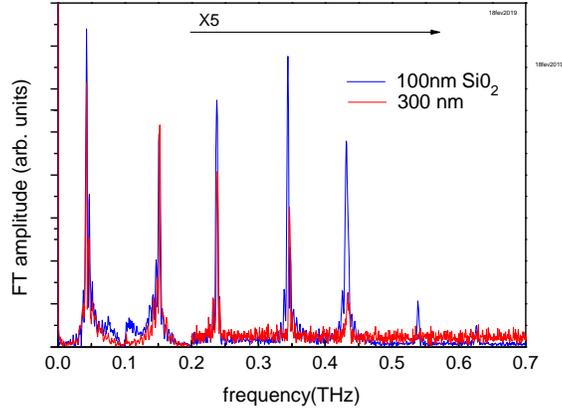


Figure 4.11 – Amplitude de la transformée de Fourier du signal transmis pour deux échantillons contenant une épaisseur de silice de 100 ou 300 nm. L’amplitude a été multipliée par 5 à partir de la fréquence 0,2 THz.

fréquence de l’onde acoustique longitudinale créée : la fréquence varie de 1,23 THz à 0,66 THz pour des périodes de 55 Å (puits de largeur 12 Å) à 105 Å (puits de 62 Å).

Nous avons initié une collaboration avec C.-K. Sun qui utilise un puits ultrafin de InGaN comme transducteur haute fréquence pour étudier l’atténuation acoustique dans la silice à température ambiante et à la température de l’azote liquide.

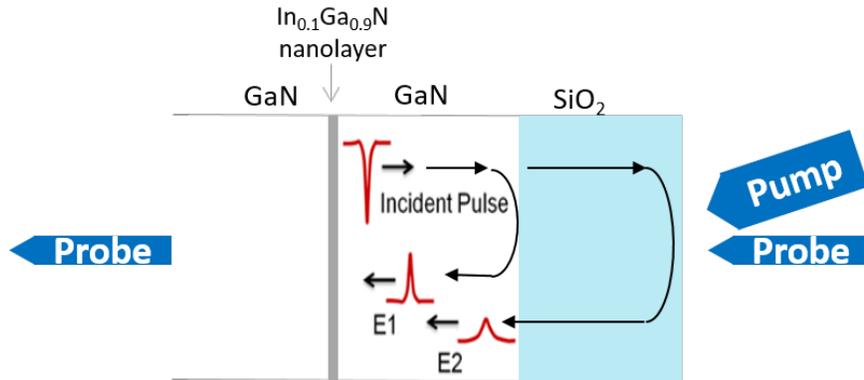


Figure 4.12 – Principe de l’expérience pompe sonde avec un puits de InGaN

Le principe est schématisé sur la figure 4.12 : un puits de $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ de largeur 2,5 nm est inséré dans une couche de GaN sur laquelle a été déposée une couche de silice d’une dizaine de nanomètres. Après absorption d’une impulsion laser, le puits émet une impulsion acoustique de chaque côté. Celle qui se propage vers la silice subit une réflexion partielle sur l’interface GaN/silice, et une réflexion totale sur la surface libre silice/air. Le retour de ces deux ondes vers le puits donnent lieu à deux échos dans le signal transmis. En effet, l’absorption optique du puits est modulée par le passage de l’onde acoustique qui renormalise les bandes d’énergie des électrons et des trous [127]. L’allure du signal transmis est montré figure 4.13, où se distinguent du fond lentement décroissant (refroidissement de la couche de InGaN) deux échos parmi des oscillations Brillouin de très faible amplitude. Le premier, noté E_1 , correspond à l’onde qui s’est réfléchi sur l’interface avec le verre tandis que le second, noté E_2 , à celle qui s’est propagée dans la couche de silice et s’est réfléchi

sur l'interface avec l'air. L'écho E_2 est affecté par l'atténuation lors de son parcours dans la couche de silice, qui peut donc être déduite par comparaison avec l'écho E_1 :

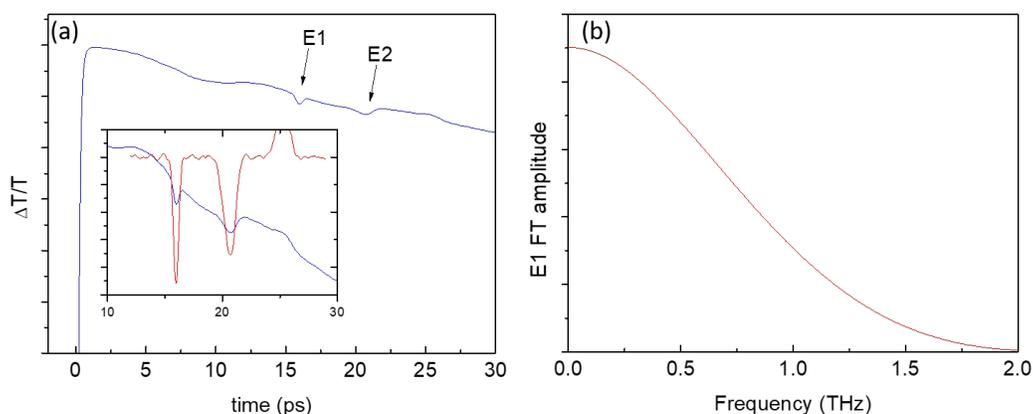


Figure 4.13 – (a) Changement de transmission en fonction du délai pompe sonde. L'écho E_1 est associé à la réflexion sur l'interface GaN/Silice, et l'écho E_2 correspond à la partie de l'onde qui a fait un aller-retour dans la silice. L'insert montre les deux échos après soustraction du fond continu. (b) Amplitude du spectre de l'écho E_1 .

$$\alpha = \frac{1}{2L} \ln \frac{R_2 T_1^2 P_1}{R_1 P_2}$$

avec L l'épaisseur du film de silice, P_i l'amplitude du spectre de l'écho réfléchi à l'interface i et R_i et T_i les coefficients de réflexion et de transmission sur l'interface i en notant $i = 1$ ou 2 l'interface GaN/SiO₂ et SiO₂/air.

L'atténuation acoustique a été ainsi mesurée pour des fréquences allant jusqu'à 650 GHz dans un film de silice de 22 nm [115]. Les valeurs trouvées pour l'atténuation apparaissaient élevées : une évaluation de la diffusion aux interfaces est nécessaire pour estimer R_i et T_i en recourant à un modèle de probabilité de diffusion spéculaire (modèle SSP). Il est probable que la diffusion soit sous-estimée pour une interface avec un film amorphe et pour de si hautes fréquences. Pour s'affranchir de ce problème, il a été décidé comme précédemment de comparer les expériences menées sur deux épaisseurs de silice différentes, voir figure 4.14. Si la rugosité des surfaces et interfaces entre les deux films de silice est la même, la différence entre les deux ondes acoustiques E_2 ne sera due qu'à la propagation dans la silice. De plus le puits quantique utilisé est plus fin, permettant d'atteindre des fréquences au-delà du terahertz comme l'illustre le spectre en amplitude de l'écho E_1 montré figure 4.13(b).

Ces résultats sont en cours d'analyse.

Un premier résultat concerne la vitesse du son. La dispersion de la vitesse, c'est-à-dire la variation de la vitesse de phase avec la fréquence, est obtenue à partir de la différence de phase de la transformée de Fourier des deux échos. La figure 4.14(b) montre le résultat de la mesure pour chaque échantillon à partir de 5 mesures. On observe une dispersion négative. En effet la vitesse décroît d'environ 5%. Une dispersion négative a déjà été établie à plus hautes fréquences pour la silice [118] et d'autres verres [128] en utilisant la diffusion inélastique de rayons X. Elle s'explique par un couplage résonant avec les modes mous du pic boson, produisant un effet de croisement de niveaux comme proposé par Schober [129]. Elle se comprend aussi dans le cadre de la théorie du

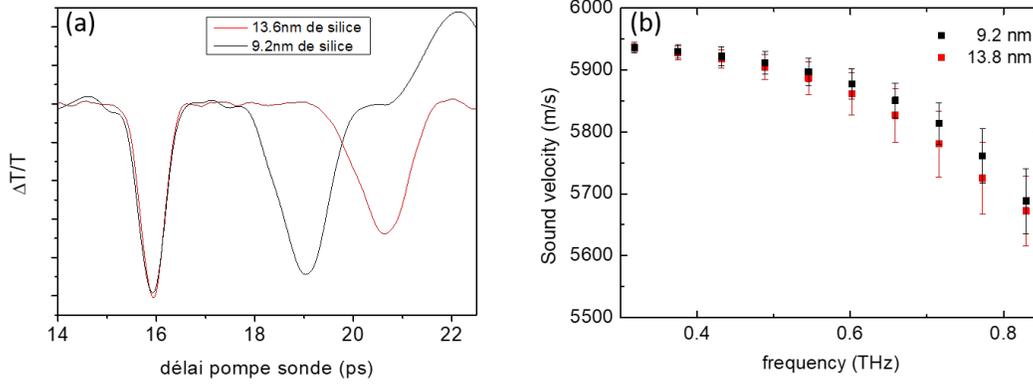


Figure 4.14 – (a) Signal de transmission pour les deux échantillons avec des épaisseurs de silice de 9,8 nm et 13,8 nm. (b) Vitesse du son en fonction de la fréquence pour chaque épaisseur de silice traversée.

désordre élastique [106].

4.4 Conclusion

L'atténuation acoustique dans les verres est un sujet complexe que j'ai pu aborder grâce à l'expertise de Marie Forêt et de ses collègues Benoît Rufflé et René Vacher. Les propriétés acoustiques d'une couche de SiO_2 amorphe ont été étudiées par des expériences d'échos acoustiques à large bande pour une température variable entre 20 K et 300 K. L'atténuation de l'impulsion acoustique à l'intérieur de la couche de SiO_2 est évaluée à différentes températures à l'aide de la loi d'atténuation effective $\alpha(\omega, T) = \alpha_0(T)\omega^{p(T)}$. Cette loi est déduite des modèles phénoménologiques bien établis décrivant l'atténuation acoustique dans la silice massive en fonction de la température à des fréquences inférieures à 30 GHz. Nous avons montré que ces modèles sont validés sur une grande étendue en fréquence 10 kHz - 250 GHz. Un accord quantitatif est trouvé entre les valeurs de $\alpha_0(T)$ et de $p(T)$ identifiées dans ce travail et une prédiction combinant les mécanismes TAR et anharmonicité suivant la réf. [103]. L'exposant se trouve être proche de 1 près de 50 K alors qu'il atteint la valeur de $p \approx 2$ à température ambiante, soulignant que le TAR domine l'amortissement à basse température tandis que l'anharmonicité prend le relais à une température suffisamment élevée. L'absorption acoustique dues aux mécanismes TAR dans la couche de SiO_2 est également environ une fois et demi supérieure à celle de la silice massive. Une explication raisonnable serait que le processus de dépôt plutôt froid utilisé pour la préparation pourrait générer une quantité plus grande de défauts relaxants, et donc une contribution plus élevée de TAR, malgré tous nos efforts pour trouver les conditions optimales de croissance. À notre connaissance, seul un film de SiO_2 produit par oxydation thermique de Si à 1300 K (c'est-à-dire dans l'intervalle de transition vitreuse) s'est révélé présenter un frottement interne identique à celui de la silice massive [130, 131]. Ces expériences ont fourni la première mesure à large bande compatible avec les mesures à bande étroite disponibles (à la fréquence Brillouin [113] ou à spectre étroit à l'aide d'une mise en forme de l'impulsion femtoseconde [114]). On a pu extraire pour la première fois la dépendance en température des propriétés acoustiques dans les couches de SiO_2 (à la différence des précédents résultats

de Zhu *et al.* [28]).

L'utilisation de transducteurs qui fonctionnent à plus haute fréquence, un superréseau AlAs/GaAs comme détecteur et un puits quantique InGaN/GaN comme générateur et détecteur, nous laisse espérer mesurer cette transition vers le régime de forte atténuation : à basse température pour la première étude, et à température ambiante pour la seconde.

Chapitre 5

Perspectives

Les progrès réalisés pour la transduction optoacoustique dans le domaine du terahertz, avec la génération d'ondes longitudinales cohérentes, quasi-monochromatiques et relativement bien collimatées ont permis l'étude de l'atténuation dans un semiconducteur massif et des films de matériaux amorphes.

Dans GaAs massif, j'ai pu effectuer les premières mesures de la variation relative de l'atténuation ultrasonore, en fonction de la température, dans le domaine de fréquence peu exploré du THz. Une « anomalie » prenant la forme d'un plateau en atténuation est la preuve que les approximations en loi de puissance généralement utilisées pour les calculs de temps de vie atteignent largement leurs limites.

Dans la silice, prototype du verre, je me suis intéressée à la transition vers le régime d'atténuation forte, qui est délicat à démontrer directement. Nous avons bon espoir de mettre en évidence cette transition à basse température.

Dans les années à venir, mon activité scientifique s'articulera autour de deux thématiques. La première est dans la continuité directe de ce qui a été décrit dans les chapitres précédents. La seconde concerne l'étude des propriétés thermoélectriques de matériaux prometteurs dans ce domaine, mettant en œuvre une expérience de thermoréfectance.

5.1 Atténuation dans GaAs et Si

La nécessité de caractériser de manière non-destructive les structures enterrées qu'on trouve dans les dispositifs microélectroniques a stimulé le développement de techniques d'imagerie acoustique, par exemple par acoustique picoseconde [57, 132, 133, 134]. Il est ainsi nécessaire de connaître l'atténuation acoustique dans les cristaux utilisés en microélectronique comme le silicium, le germanium, le saphir et l'arséniure de gallium. Cela est aussi pertinent pour le domaine de l'optomécanique, qui vise à utiliser l'interaction de la lumière avec un système mécanique afin de modifier la réponse mécanique de l'oscillateur. Ce domaine s'est beaucoup développé depuis la mise en évidence par la lumière d'un refroidissement de l'oscillateur mécanique vers son régime quantique. Cela permettrait de développer des technologies d'information quantique et d'observer un comportement quantique dans des systèmes macroscopiques. Un des objectifs est d'utiliser des résonateurs de plus haute fréquence (d'une dizaine de GHz au lieu de la centaine de MHz actuellement) afin d'observer le régime quantique de l'oscillateur à plus haute température [48], où l'interaction intrinsèque phonon-phonon

qui intervient alors limite le facteur de qualité de ces résonateurs.

La description du problème à N corps qu'est l'atténuation acoustique est un problème difficile qui peut néanmoins être résolu dans deux régimes asymptotiques. Le régime de Landau-Rumer, utilisé précédemment, est valable pour des ondes de fréquences supérieures à 10 GHz à basse température ($\omega\tau \gg 1$, τ étant le temps de vie des phonons). L'atténuation résulte alors principalement des interactions à trois phonons. On peut accéder expérimentalement à des temps de vie individuels de phonons longitudinaux. Lorsque la température augmente, ce régime n'est valable que pour les phonons haute fréquence (supérieure à la centaine de GHz).

Lorsque $\omega\tau \ll 1$, dans le régime d'Akhiezer, les ondes acoustiques peuvent avoir une durée de vie plus courte que leur période, ce qui fait que l'énergie de la quasi particule est mal définie. Leur longueur d'onde est alors beaucoup plus grande que le paramètre de maille, ce qui permet de traiter les ondes comme un champ de contraintes perturbant localement les populations de phonons du bain thermique qui retournent à l'équilibre. Cette relaxation est décrite par une équation de transport de Boltzmann.

Un travail théorique a été initié par Lorenzo Paulatto de l'IMPMC en collaboration avec Jelena Sjakste du LSI (Palaiseau). Ce travail a pour but de développer une nouvelle approche théorique qui décrirait la transition entre ces deux régimes. Un premier pas, en partant du régime de Landau Rumer, est de tenir compte d'un temps de vie fini des phonons qui interagissent avec l'onde longitudinale. Aborder le régime intermédiaire par l'autre bord implique de résoudre le régime de Akhiezer de façon *ab-initio* en incluant des termes de couplage dans l'équation de transport [135]. L'opérateur collision peut être traité dans l'approximation du temps de relaxation.

En parallèle, il est prévu de faire de nouvelles mesures d'atténuation dans ce régime intermédiaire : tout d'abord dans GaAs à plus basse fréquence, à l'aide de transducteurs métalliques (10-200 GHz) et sur une grande plage de température (jusqu'à la température ambiante). Le silicium sera aussi étudié. En effet, dans ces domaines, peu de données sont disponibles pour valider les prédictions théoriques ([84, 80, 136]). Ces mesures seront réalisées en transmission sur l'expérience d'acoustique picoseconde et confrontées au modèle théorique. Ce projet est financé par le labex Matisse.

5.2 Propriétés thermiques de films minces

L'étude du transport thermique sur des distances microscopiques est au cœur du développement de matériaux possédant, par exemple, des propriétés thermoélectriques, pour la conversion d'énergie dissipée en énergie électrique. Quelques-uns des projets que je présente s'inscrivent dans cette thématique.

Les effets thermoélectriques, dont les effets Seebeck ou Peltier sont les plus connus, ont été découverts au cours du 19^e siècle. La possibilité de convertir une différence de température en différence de potentiel permet d'envisager des applications dans les domaines de la réfrigération ou de la production d'électricité. Après de premières démonstrations au début du XX^e siècle, vite supplantées par les moteurs thermiques, ce sujet est réapparu dans les années 50, avec la nécessité d'alimenter électriquement les sondes spatiales (dès 1961, par la NASA). Mais ce n'est que depuis le milieu des années 90, alors que la maîtrise des échanges thermiques est devenue un enjeu majeur pour le fonctionnement des dispositifs micro et optoélectroniques, et dans un contexte où l'on doit tenir compte de l'impact environnemental des énergies fossiles et de l'augmentation de la demande mondiale en énergie, que la thermoélectricité revêt une importance cruciale.

La performance d'un matériau thermoélectrique se quantifie par sa figure de mérite $ZT = S^2T/(\rho\kappa)$ qui dépend à la fois de ses propriétés de transport électronique via S le coefficient Seebeck, et ρ la résistivité électrique, et des propriétés de transport thermique via κ la conductivité thermique. Cette dernière est la somme de deux contributions, celle due à la conduction par les électrons et celle par les modes de vibrations du réseau : $\kappa = \kappa_{e^-} + \kappa_{\text{phonon}}$. On estime qu'il faut atteindre un ZT autour de 2 pour être compétitif face aux moteurs thermiques conventionnels. La forte corrélation entre ces propriétés rend l'amélioration de ce facteur très difficile. Augmenter la concentration des porteurs augmente la conductivité mais diminue S . Le terme S^2/ρ est optimisé pour des concentrations de l'ordre de 10^{20} cm^{-3} : il s'agit de matériaux présentant un comportement de type « semi-conducteur dégénéré » ou « semi-métal ». Ainsi les matériaux « classiques » de la thermoélectricité tels que SiGe (pour des applications spatiales), PbTe (à haute température) ou Bi₂Te₃ (pour des applications à température ambiante) présentent des valeurs de ZT proches de 1, mais leur utilisation peut être relativement contraignante et restreinte : problèmes d'oxydation pour SiGe, rareté du tellure rendant impossible l'utilisation de Bi₂Te₃ pour des applications à grande échelle. La recherche de nouveaux matériaux thermoélectriques reste toujours très ouverte. Depuis 1993, elle se tourne vers les systèmes de basse dimensionnalité. En effet, Hicks et Dresselhaus du MIT proposent un modèle théorique prédisant une augmentation des figures de mérite dans des nanostructures 1 ou 2D [137].

Augmenter le facteur de mérite peut s'envisager de diverses façons, en jouant sur la partie électronique (augmenter S , diminuer ρ ou κ_{e^-}) ou sur la diminution de la conductivité thermique du réseau κ_{phonon} . Une autre voie consiste à tirer parti de la nanostructuration. Celle-ci permet de réduire la conductivité thermique, via la diminution de la contribution des phonons résultant elle-même de la réduction des dimensions caractéristiques du système, sans toutefois trop dégrader la mobilité des porteurs.

Une modification adéquate de la structure de bandes autour de l'énergie de Fermi peut permettre une nette amélioration de S suivant la formule de Mott, établie pour un métal dans un modèle semi-classique :

$$S = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \left(\frac{\partial \ln \sigma(E)}{\partial E} \right)_{E=E_F}$$

où $\sigma(E) = en(E)\mu(E)$ est la conductivité électrique et μ la mobilité. S est donc très sensible aux porteurs dont l'énergie est proche de E_F et sera maximal pour de grandes pentes $\frac{dn}{dE}$ ou $\frac{d\mu}{dE}$. La nanostructuration induit des densités d'états présentant des pics, ce qui accroît le premier terme $\frac{dn}{dE}$. En effet dans le bismuth par exemple, S est multiplié par un facteur 10^3 lorsque le matériau est structuré sous forme de fil [138]. L'augmentation de $d\mu(E)/dE$ peut résulter quant à elle de l'augmentation de la dérivée du temps de vie des porteurs avec l'énergie $d\tau(E)/dE$. Ce concept, filtrer les électrons selon leur énergie ("energy filtering",) est une des façons d'accroître la valeur de S .

Les projets présentés ici concernent des matériaux bidimensionnels dont on vise à améliorer les propriétés thermoélectriques par intercalation d'ions ou par le choix approprié du substrat responsable d'un effet de « phonon drag ». On envisage aussi l'étude du transport thermique dans des superréseaux à base de chalcogénures ou des couches minces de gadolinium.

L'ingénierie du « phonon drag »

Je participe à un projet financé par l'Alliance Nationale de Coordination pour la Recherche pour l'Energie (ANCRE) coordonné par Nathalie Vast (LSI), en collaboration avec Jelena Sjakste (LSI), et avec Max Marangolo, Danièle Fournier et Mahmoud Eddrief (INSP) pour développer des matériaux thermoélectriques performants à température ambiante. Il s'agit de contrôler le coefficient thermoélectrique des matériaux en couches minces, par le choix du substrat et la maîtrise de la qualité d'interface. En particulier, nous allons étudier le rôle de l'interface et du substrat dans l'augmentation du coefficient Seebeck lié à l'effet de « phonon drag » dans les couches minces thermoélectriques ainsi que la possibilité d'obtenir un coefficient Seebeck important à température ambiante, pour laquelle des matériaux thermoélectriques performants manquent toujours.

Une augmentation de l'effet Seebeck dans des films minces du matériau bien connu Bi_2Te_3 a été attribué à cet effet de « phonon drag » où le rôle du substrat est majeur : celui-ci fournit une grande quantité de phonons particuliers qui sont capables d'entraîner les électrons dans le film mince [139]. Cet effet dépend très fortement de la température de Debye du substrat et la contribution du « phonon drag » au coefficient Seebeck peut être décalée vers les hautes températures.

Une approche numérique nouvelle sera développée et validée par la comparaison directe avec les données expérimentales. Des mesures de conductivité thermique seront effectuées sur un montage de thermoréflexance, constitué d'un microscope permettant une mesure tout optique et sans contact des propriétés thermiques d'un matériau. Une source de chaleur est créée par effet photothermique, grâce à l'absorption d'un faisceau laser dont l'intensité est modulée. La chaleur diffuse alors dans le volume de l'échantillon et une mesure de l'empreinte thermique en surface est effectuée avec un faisceau sonde, en se basant sur la variation de la réflexion optique avec la température. L'amplitude et la phase du signal sont ajustées avec un modèle standard de diffusion de Fourier. Moyennant la connaissance des propriétés optiques et des épaisseurs de la ou des couche(s), cette analyse peut donner accès à la diffusivité et la conductivité thermique. Les différents échantillons de films minces (Bi_2Se_3 , GaSe, InSe, SnSe sur SiC ou GaAs) seront synthétisés au laboratoire. Danièle Fournier et moi réalisons actuellement un perfectionnement du montage : un cryostat est adapté pour pouvoir accéder à des mesures à basse température (jusqu'à 77 K).

Amélioration du transport thermoélectrique dans les matériaux 2D par intercalation

Ce projet est le fruit d'une collaboration avec Mohamed Boutchich (CINTRA - Singapour / Geeps). Il s'agit de synthétiser et d'étudier des composés bidimensionnels en vue d'améliorer leurs propriétés thermoélectriques. Pour cela, nous mesurerons l'impact de l'intercalation d'ions dans des matériaux lamellaires, tels que l'oxysélénure de bismuth ($\text{Bi}_2\text{O}_2\text{Se}$), un matériau thermoélectrique prometteur. Ce type de superstructures bidimensionnelles est favorable à l'obtention de grandes valeurs de S . De plus, l'intercalation d'ions tels que des ions métalliques est à la fois une source de contrainte et de dopage. La contrainte supplémentaire induit une modification de la structure de bandes et ainsi, celle des temps de vie des porteurs et de leur dépendance avec l'énergie (« energy filtering »). La présence d'ions quant à elle modifie la diffusion des porteurs : ils jouent le rôle de centres de diffusion pour les phonons, réduisant la conductivité thermique. On peut espérer obtenir ainsi un meilleur facteur de puissance (S^2/ρ) dû à une optimisation de S malgré une diminution de la conductivité électrique.

Les mesures de conductivité thermique seront complétées par des mesures de transport (conductivité électrique et facteur Seebeck), notamment à la plateforme du PPMS de Sorbonne Université.

Ce projet a fait l'objet d'une demande de financement ANR dont je suis le porteur, mais qui n'a pas été retenue à l'issue du second tour.

Superréseau à base de chalcogénures

Nous avons initié une collaboration avec Christophe Testelin actuellement au Centre de Recherche Interface Design and Engineered Assembly of Low Dimensional Systems (CCNY-CUNY à New-York). Il étudie des couches minces à base de superréseaux tels $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$ qui atteignent un ZT de 2,5 [140]. Le but est de comprendre pourquoi ces superréseaux restent parmi les matériaux thermoélectriques les plus performants et d'explorer d'autres possibilités ($\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Sb}_2\text{Se}_3$). La découverte des isolants topologiques dont font partie ces chalcogénures [141] conduit à revisiter la compréhension du transport électrique et thermique dans ces nanostructures, où les états topologiques sont localisés à la surface et peuvent se coupler si les épaisseurs des couches sont assez faibles. Il est aussi envisagé d'étudier des structures hybrides de couches ultrafines de ces isolants avec des semiconducteurs conventionnels, tels $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{ZnCdSe}$.

Les matériaux sont synthétisés par l'équipe de Maria Tamargo (City college, New-York) et des mesures de thermoréfectance seront effectuées. L'étude thermique est complétée par des mesures d'acoustique picoseconde pour étudier la propagation de phonons cohérents par ces structures. En particulier, la dépendance en température des coefficients de dilatation thermique de composé massif d'isolant topologique tel Sb_2Te_3 et Bi_2Se_3 [142, 143] semblerait montrer des anomalies, ce que l'on peut sonder avec la mesure de la dépendance en température de la vitesse du son.

Je vais également collaborer avec Paola Atkinson de l'INSP qui travaille sur l'élaboration de superréseaux de chalcogénures lamellaires avec désaccord de maille ("misfit layered compounds"), de type $\text{MX}_{(1+\delta)}\text{TX}_2$, avec M un élément du groupe VI V ou de terre rare (Sn, Sb, Bi, Pb...), T un métal de transition (Ti, Mo, W...) et X un chalcogène (S, Se). La variation de structure cristallographique d'une couche à l'autre permet d'obtenir intrinsèquement une conductivité thermique faible et il est possible de moduler la conductivité électrique en variant l'épaisseur et la combinaison de matériaux pour améliorer les performances thermoélectriques. En effet, comme la croissance des films minces se produit loin de l'équilibre thermodynamique, il est possible d'étudier une gamme beaucoup plus large de combinaisons de matériaux et de périodes d'empilement dans les films minces que dans le massif.

5.2.1 Films minces de gadolinium

En raison de la faiblesse de la figure de mérite ZT qui n'atteint pas encore les valeurs qui les rendraient vraiment compétitifs, des alternatives aux matériaux thermoélectriques sont explorées pour la conversion d'énergie dissipée. C'est le cas de la réfrigération industrielle et de la climatisation où les systèmes actuels présentent l'inconvénient de fonctionner sur le principe bien maîtrisé de compression et détente d'un gaz, avec des fluides frigorigènes qui ont souvent un impact direct sur la couche d'ozone et/ou une contribution significative à l'effet de serre. La réfrigération magnétique à base de matériaux à effet magnétocalorique apparaît de plus en plus comme une solution prometteuse [144]. Cette technologie s'appuie principalement sur l'effet magnétocalorique géant de certains matériaux magnétiques autour de la température ambiante. Cet effet consiste en un réchauffement ou un refroidissement du matériau lors de son aimantation ou désaimantation adiabatique autour de la température de transition de phase magnétique.

Le gadolinium est le matériau magnétocalorique de référence (effet magnétocalorique important et facilité de mise en œuvre). Le développement de dispositifs à des échelles micrométriques rend pertinente l'étude de films de gadolinium. En effet, augmenter le rapport surface sur volume permet un échange de chaleur plus rapide. Max Marangolo et Doan Nguyen Ba à l'INSP maîtrisent la croissance par pulvérisation de films de gadolinium d'épaisseur de quelques microns, et étudient l'influence des paramètres de croissance et d'épaisseur sur la modification des propriétés magnétiques [145]. J'ai commencé à faire des mesures thermiques sur un tel film en fonction de la température, afin de voir si cette géométrie induit une modification des paramètres thermiques par rapport au massif [146]. Une transition du second ordre ferromagnétique-paramagnétique est attendue à température ambiante ($\approx 19^\circ\text{C}$), donnant lieu à une évolution complexe des propriétés thermiques en fonction de la température.

Chapitre 6

ANNEXE

6.1 Superréseaux (miroirs de Bragg acoustique)

6.1.1 super-réseau et courbe de dispersion

L'empilement de N paires de couches, d'indice de réfraction n_1 et n_2 (avec $n_1 > n_2$) et d'épaisseur optique $\lambda_0/4$ permet de réaliser un miroir de Bragg de réflectivité optique qui peut être assez élevée moyennant un grand nombre de couches (par ex. [147]). La réflectivité vue du côté du milieu d'indice n_{int} est donnée, si $(\frac{n_2}{n_1})^{2N} \ll 1$:

$$|r|^2 \approx 1 - 4 \frac{n_{ext}}{n_{int}} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N}$$

où n_{ext} désigne l'indice du milieu derrière le miroir. La largeur de la « stop band », c'est-à-dire la région fréquentielle où la réflectivité est très élevée dépend du contraste d'indice. Un des couples de matériaux très utilisés pour les miroirs de Bragg est GaAs/AlAs dont la croissance est très bien maîtrisée. Leurs indices optiques ($n_1 = 3.48$ et $n_2 = 2.95$ respectivement) aboutissent à un contraste de $\frac{n_1 - n_2}{\sqrt{n_1 n_2}} \approx 0.165$.

Pour que cet empilement multicouche soit un miroir de Bragg pour les phonons (nommé souvent **super-réseau** (**SL** pour superlattice)), il est nécessaire que soit modulée l'impédance acoustique $Z = \rho v$, où ρ est la masse volumique et v la célérité du son. Il se trouve que le contraste d'impédance entre GaAs et AlAs est du même ordre de grandeur que celui d'indice : $\epsilon = \frac{Z_1 - Z_2}{\sqrt{Z_1 Z_2}} \approx 0.18$. L'épaisseur des couches est en revanche très différente, pour réfléchir des phonons de fréquence de 100 GHz (resp. 1 THz), à cause de l'ordre de grandeur des vitesses du son, $v \approx 5000 \text{ m s}^{-1}$; la longueur d'onde acoustique est alors de l'ordre de 50 nm (resp. 5 nm), ce qui donne ainsi des épaisseurs dans la gamme du nanomètre, à comparer à la gamme du micron pour les photons. Grâce à l'épitanaxie par jet moléculaire, le dépôt de matériaux avec une précision supérieure à la monocouche est tout à fait maîtrisé (monocouche de GaAs $\sim 0,28 \text{ nm}$).

L'équation de propagation du son dans un solide le long de la direction z s'écrit :

$$\rho(z) \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial z} \left(C(z) \frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (6.1)$$

avec u le déplacement atomique et $C(z) = \rho(z)v^2(z)$ la constante élastique, propre à chaque mode, longitudinale ou transverse. Pour tenir compte des réflexions partielles sur les interfaces, on cherche

les solutions pour le déplacement u et la contrainte $C \frac{\partial u}{\partial z}$ sous la forme d'une combinaison linéaire de deux ondes planes de vecteur d'onde opposé $\pm q_i$ dans chaque couche (1 pour GaAs et 2 pour AlAs). Pour une fréquence donnée, il s'agit ainsi de déterminer les 4 amplitudes des ondes planes, avec comme conditions aux limites, la continuité du déplacement et de la contrainte à chaque interface. La méthode des matrices de transfert permet de traiter facilement un super-réseau fini quelconque. Lorsque l'on considère un empilement semi-infini, le théorème de Bloch permet d'établir la relation de dispersion [3] :

$$\cos(qd) = \cos(q_1 d_1) \cos(q_2 d_2) - \frac{1}{2} \left(\frac{Z_2}{Z_1} + \frac{Z_1}{Z_2} \right) \sin(q_1 d_1) \sin(q_2 d_2) \quad (6.2)$$

avec $d = d_1 + d_2$ et $q_i = \omega/v_i$. Relation qui peut se réécrire sous la forme

$$\cos(qd) = \cos \left(\omega \left(\frac{d_1}{v_1} + \frac{d_2}{v_2} \right) \right) - \frac{\epsilon^2}{2} \left(\frac{Z_2}{Z_1} + \frac{Z_1}{Z_2} \right) \sin \left(\omega \frac{d_1}{v_1} \right) \sin \left(\omega \frac{d_2}{v_2} \right) \quad (6.3)$$

avec ϵ le contraste d'impédance défini précédemment. Si l'on ne tient pas compte du second terme, qui est, dans le cas de semiconducteurs usuels, faible (de l'ordre de 0,02), cette relation se réduit à :

$$qd = \pm \omega \left(\frac{d_1}{v_1} + \frac{d_2}{v_2} \right) + 2p\pi, \quad p \in \mathbb{Z}$$

Cela traduit le repliement de la dispersion acoustique due à la nouvelle périodicité, avec une vitesse effective telle que $\frac{d}{v} = \frac{d_1}{v_1} + \frac{d_2}{v_2}$. Des modes doublement dégénérés d'énergie $\Omega_p = \frac{p\pi v}{d}$ apparaissent en centre de zone (p pair) et en bord de zone (p impair), autour desquels apparaissent un gap lorsqu'on tient compte de la modulation d'impédance. En effet, c'est le contraste d'impédance ϵ qui gouverne l'apparition de bandes interdites aux fréquences pour lesquelles la relation de dispersion 6.3 n'a pas de solution. Une expression approchée de la largeur de la bande interdite est [148]

$$\Delta f = \frac{\epsilon v}{\pi d} \sin \left(p\pi \frac{d_1/v_1}{\frac{d_1}{v_1} + \frac{d_2}{v_2}} \right)$$

La bande interdite de plus basse énergie (en bord de zone) est maximale pour des épaisseurs acoustiques égales $\lambda/4, \lambda/4$ (cas des miroirs en optique) mais nous avons choisi d'optimiser la première bande interdite en centre de zone ($p = 2$) avec des épaisseurs telles que $\frac{d_1}{v_1} = 3 \frac{d_2}{v_2}$, c'est-à-dire $3\lambda_1/4, \lambda_2/4$, $\lambda_i = v_i/f$ et f allant de 100 GHz à 1 THz (la bande interdite en centre de zone $p = 4$ est alors fermée). La figure 6.1 illustre ce propos. En pratique on obtient de bons miroirs pour un nombre de périodes supérieur à 10 pour GaAs/AlAs (transmission résiduelle de 11 %, voir figure 1.2), mais on peut se contenter de quelques périodes pour des couples de matériaux de contraste acoustique plus élevé, comme pour le couple de matériaux Mo/Si, dont le contraste d'impédance est $\epsilon = 1.36$.

Notons que les modes de bord de bande, à $q = 0$ sont des modes stationnaires de symétrie différente. Dans le premier gap de centre de zone, c'est le mode de bord de zone de plus haute (resp. plus basse) énergie qui a un déplacement antisymétrique B_2 (symétrique A_1) par rapport au plan milieu des atomes Ga et As [6].

De plus si l'impédance de la couche en contact avec l'air est supérieure, des modes localisés apparaissent dans la bande interdite. Ils sont confinés dans la couche superficielle du miroir. Pour un

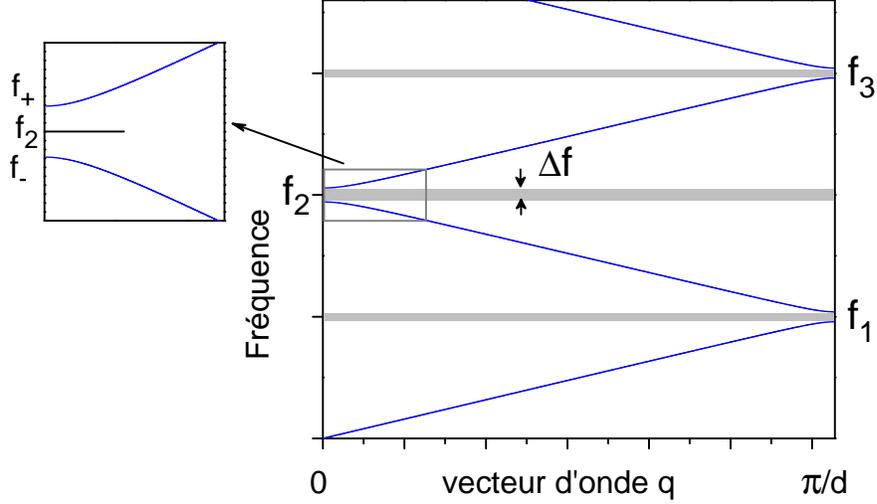


Figure 6.1 – Courbe de dispersion d'un super-réseau GaAs/AlAs $3\lambda/4, \lambda/4$.

milieu semi-infini, la fréquence de ces modes vérifie (avec $Z_1 > Z_2$, 1 dénotant la couche superficielle) [149] :

$$\tan\left(\frac{2\pi f d_2}{v_2}\right) + \frac{Z_1}{Z_2} \tan\left(\frac{2\pi f d_1}{v_1}\right) = 0$$

Notons qu'ils peuvent être vus comme le mode d'une cavité coincée entre le miroir et l'air (miroir parfait). On n'en rencontrera pas dans les SLs GaAs/AlAs, où la couche supérieure est GaAs mais les multicouches Mo/Si peuvent en avoir si la première couche est le Silicium ($Z_{Si} > Z_{Mo}$).

6.1.2 Échantillons à base de super-réseaux GaAs/AlAs

Ces échantillons ont été épitaxiés au LPN (Laboratoire de photonique et de nanostructures, maintenant C2N - Paris Saclay) par épitaxie par jets moléculaires (molecular beam epitaxy MBE) par Aristide Lamaître et caractérisés notamment par Olivia Mauguin.

Les différents super-réseaux GaAs/AlAs étudiés ont été optimisés pour avoir la fréquence f_2 en centre de zone autour de 100, 200, 400, 600, 700, 800 GHz et 1 THz.

D'autre part, des « doubles super-réseaux » (voir § chapitre 2.4.1) ont été réalisés, en deux étapes : après la croissance d'un SL, un second est épitaxié de l'autre côté du substrat en stoppant la rotation de l'échantillon. Cela induit un gradient de toutes les épaisseurs pour un des SLs.

Enfin, des échantillons de SLs ou de cavités de phonons inclus dans une microcavité optique ont été étudiés [150], un seul échantillon est décrit ici (échantillon de SL avec une fréquence f_2 en centre de zone de 300 GHz incluse dans une cavité optique de GaAlAs/GaAs).

La table 6.1 résume les principales caractéristiques de ces échantillons.

Sample SL	first zone center gap (THz)	thickness GaAs/AlAs (nm)	number of periods	
S100	0.095	35.9/14.8	20	
S200	0.197	17.1/7.5	40	
S400	0.395	8.6/3.9	80	
S600	0.587	5.6/2.7	120	
DS400	0.393	8.9/3.5	100	
DS700	0.715	4.71/1.83	175	
DS800	0.787	4.35/1.72	200	
DS1	1.008	1.38/3.48	250	

Sample cavity	first zone center	thickness GaAs/AlAs	number of periods	cavity thickness GaAs
C1	0.097	34.7/15.3	10/9.5	23.5
C2	0.195	18.4/6.8	20/19.5	36.5

sample	first zone center	thickness GaAs/AlAs SL ($\times 26.5$)	thickness GaAlAs/AlAs optical mirror	numbers of periods top/bottom
SLcav	0.290	12.2/4.8	56/65	3/10

Table 6.1 – Échantillon de SLs et de cavités de phonons. S100 à S600 sont de simples SL épitaxiés sur un substrat de GaAs. DS400 to DS1 contiennent deux SLs épitaxiés de chaque côté du substrat, et l'un de des deux SL présente un gradient d'épaisseur de toutes les couches. Les caractéristiques indiquées sont celles du SL uniforme. La fréquence indiquée est celle du mode de bord de zone inférieure du premier gap. L'échantillon SLcav est un SL inclus dans une microcavité optique, constituée de miroirs de Bragg GaAlAs/AlAs.

6.2 Expérience d'acoustique picoseconde

L'expérience dite d'acoustique picoseconde est une expérience pompe sonde utilisant une source laser femtoseconde.

Le premier laser utilisé était un oscillateur Ti :Saphir pompé par un laser Argon qui fonctionnait à la longueur d'onde 750 nm. Nous avons pu acquérir un système Ti :Saphir pompé par un laser solide millenia 15 Watt (HP de spectra physics) délivrant un faisceau de puissance moyenne de 3 Watt à la longueur d'onde 800 nm, et délivrant des impulsions d'une centaine de fs. Le taux de répétition peut varier de 78 à 82 MHz grâce à une cale piezoélectrique, et sa plage d'accordabilité va de 700 à 900 nm. En sortie de laser, le faisceau polarisé verticalement est séparé avec un cube séparateur en deux faisceaux de polarisation linéaire croisée. Un des faisceaux constitue la pompe et est modulé grâce à un modulateur acousto-optique. Une lame demi-onde en amont du cube permet de répartir les puissances de chaque faisceau, et on limite à 1 Watt celle de la pompe pour éviter d'endommager l'acousto-optique. La modulation de la pompe se fait à la fréquence de 1 MHz en général et permet l'utilisation d'une détection synchrone. On place sur le trajet sonde un système afocal pour corriger la divergence du faisceau et la ligne à retard. Au début de nos travaux, nous disposions d'un déplacement SOPRA de 35 cm où l'impulsion faisait 4 passages et permettait d'atteindre des retards de 4,5 ns très lentement (100 ps par seconde réelle). Cette ligne à retard

était doublée d'un déplacement galvanométrique de course 2,5 cm qui permettait une acquisition rapide mais pour des retards de 150 ps. Les premières expériences en transmission se sont avérées difficiles dans ces conditions.

Par la suite, nous avons acquis une platine de déplacement performante (aerotech), qui avec trois allers retours entre les rétroreflecteurs fixes et mobiles permet de couvrir un retard de 11,5 ns (voir figure 1.4b). La bonne précision mécanique de la ligne à retard offre ainsi une précision de quelques dizaines de fs sur le retard. Par exemple il a été possible de mesurer les oscillations de 350 fs, présentées sur la figure 6.2, dues au mode A_{1g} des phonons optiques du Bismuth [151].

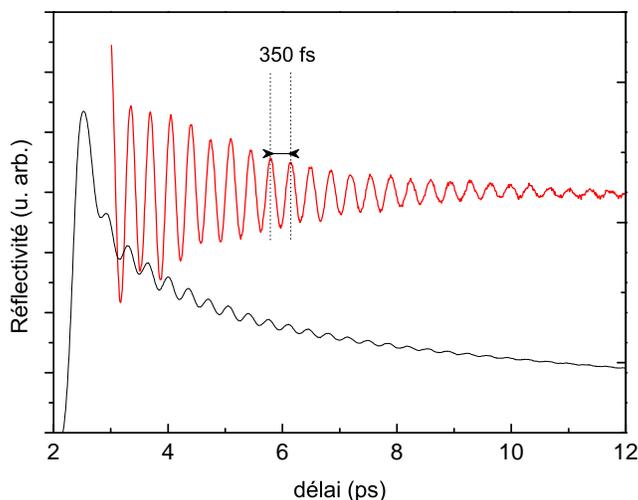


Figure 6.2 – Réflectivité sur un échantillon de bismuth où sont photogénérés des phonons optiques à la fréquence de 2,9 THz (mode A_{1g}). En noir, signal brut et en rouge, signal dont on a retiré le fond continu.

Un interféromètre de Sagnac, schématisé figure 6.3 est monté devant l'échantillon. Il a l'avantage d'être très stable parce que les faisceaux qui interfèrent parcourent le même chemin géométrique, mais en sens inverse ; les conséquences d'éventuelles vibrations affectent les deux bras de la même manière. Cela est très utile avec l'utilisation d'un cryostat. L'échantillon est placé dans cette boucle en position non symétrique, ce qui fait que les deux sondes portent le signal à deux instants différents t et $t + \tau$ par rapport au faisceau de pompe. Sur la boucle sont disposées une lame demi-onde à 45° , qui fait tourner la polarisation de la sonde de 90° (verticale en horizontale et vice-versa), et une lame quart d'onde orientée parallèlement aux polarisations horizontale et verticale. Chaque sonde traverse la lame quart d'onde avec une polarisation différente, parallèle à l'axe lent ou rapide. Ainsi à la sortie de l'interféromètre, les deux sondes sont déphasées de $\pm\pi/2$, à un point d'interférence de sensibilité maximale. Par le jeu des cubes séparateurs, polarisant ou non, on obtient des signaux complémentaires sur les deux diodes A et B :

$$I_A = (\rho(t) + \rho(t + \tau)) \pm (\phi(t + \tau) - \phi(t))$$

$$I_B = (\rho(t) + \rho(t + \tau)) \mp (\phi(t + \tau) - \phi(t))$$

où est noté le changement de réflectivité relatif en *amplitude* (c'est-à-dire avec $r = |E_r|/|E_i|$ le rapport des champs électriques réfléchis et incidents), $\frac{\Delta r}{r} = \rho + i\phi$. Une mesure permet ainsi de

déduire les variations de réflexion ou de phase, en ajoutant ou soustrayant les signaux, grâce à un pont de diode. En général, nous choisissons la mesure en interférométrie pour mesurer $\phi(t + \tau) - \phi(t)$, la mesure de la partie réelle pouvant être faite directement en coupant un des bras de l'interféromètre. En effet, les phénomènes trop lents ou qui surviennent à des retards plus grands que τ seront plus difficiles à analyser, puisque se mélangent alors le signal à t et celui à $t + \tau$. Toutefois, un avantage de ce montage interférométrique est de permettre un très bon réglage de la focale de la lentille, avantage mis à profit dans les mesures de réflexion $\rho(t)$ qui peuvent être faites dans ce schéma en mesurant la réflexion d'un seul faisceau sonde.

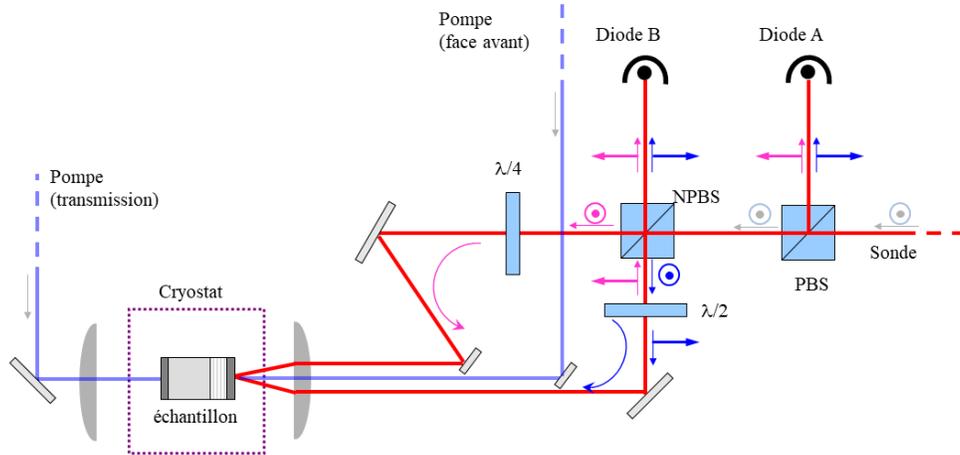


Figure 6.3 – Schéma de l'expérience avec l'interféromètre de Sagnac monté pour le faisceau sonde (en rouge). Le cube séparateur polarisant est noté PBS, celui qui est non polarisant NPBS. Le faisceau de pompe (en bleu) peut être focalisé sur l'arrière de l'échantillon ou bien sur la face avant, avec la même lentille de focalisation que les sondes.

Une grande partie des expériences menées sur les super-réseaux ont nécessité de travailler à basse température à l'aide d'un cryostat à bain d'Hélium, permettant une meilleure thermalisation qu'un doigt froid. Les expériences ont été menées à basse température vers 12 K mais nous avons aussi fait des études en température jusqu'à la température ambiante.

Enfin les expériences ont pu être calibrées à l'aide d'un échantillon qui donnait un très fort signal, de manière à comparer le signal via la détection synchrone avec la mesure directe.

6.3 Génération et détection des phonons

6.3.1 Génération de phonons acoustiques longitudinaux

La photogénération de phonons acoustiques a été bien discutée dans la littérature ([152] et références qui y sont citées). Elle est basée sur la conversion de l'énergie lumineuse de l'impulsion pompe en une énergie mécanique qui se traduit par une contrainte photoinduite σ . Celle-ci a lieu sur une certaine profondeur ξ , dépendant des caractéristiques du matériau (par ex. épaisseur de peau d'un métal, conductivité thermique...) ainsi que du laser (longueur d'onde, intensité...). Généralement les taches focales des faisceaux sont beaucoup plus grandes que ξ , ce qui valide l'approche unidimensionnelle. (En effet les taches focales sont de l'ordre de 30 à 50 μm pour nos expériences, et les longueurs de pénétration de la lumière dans GaAs ou un super-réseau sont de

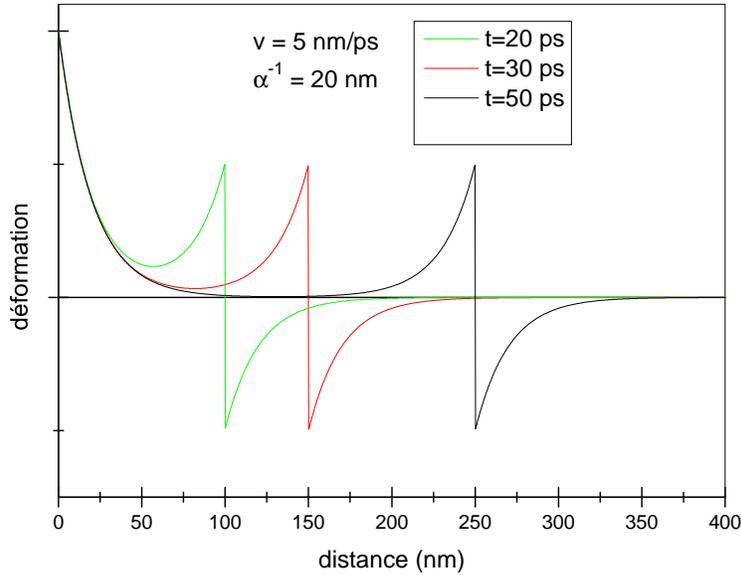


Figure 6.4 – Déformation décrite par l’expression 6.4

l’ordre de 1 à 2 μm autour de 775 nm.)

Dans le cas de films métalliques minces déposés à la surface de l’échantillon, la génération de phonons acoustiques se fait via le mécanisme de thermoélasticité. L’absorption de l’impulsion laser se fait sur une épaisseur très faible : l’absorption optique α^{-1} varie de 10 à 30 nm pour une longueur d’onde de 750 nm (7 nm pour l’aluminium). Après un temps de thermalisation électron-électron très court (inférieur à 100 fs), le gaz d’électrons est mis hors d’équilibre, donnant naissance à une pression électronique. L’interaction des électrons avec le réseau conduit ensuite à une élévation de température dans le métal. Ces deux phénomènes donnent naissance à une dilatation thermique de dynamique différente. Dans les deux cas, un gradient de contrainte apparaît le long de la longueur d’absorption, créant ainsi un déplacement collectif des atomes et donc la génération de phonons *cohérents*. Un modèle simple où la diffusion électronique ou thermique n’est pas prise en compte [14, 30] conduit à l’expression de la déformation :

$$\eta(z, t) = \frac{\eta_0}{2} \left[(2 - e^{-\alpha vt}) e^{-\alpha z} - \text{sgn}(z - vt) e^{-\alpha|z-vt|} \right] \quad (6.4)$$

avec η_0 l’amplitude de la déformation induite par l’impulsion laser et dépendant des caractéristiques du matériaux et z la coordonnée perpendiculaire à la surface. Pour des temps grands devant $(\alpha v)^{-1}$, le premier terme ne dépend plus du temps et représente la dilatation statique induite par le gradient de contrainte. Le second terme décrit la propagation d’une impulsion de largeur temporelle $\tau = (\alpha v)^{-1}$ de quelques picosecondes puisque dans les métaux usuels, la vitesse du son est de quelques nm/ps.

Dans certains métaux la diffusion des électrons peut permettre que les électrons distribuent leur énergie sur une profondeur plus grande que la longueur d’absorption optique, ce qui contribue à un élargissement de l’impulsion acoustique [22, 153, 154].

Dans les semi-conducteurs, le plasma d’électrons et de trous créés par l’absorption de l’énergie lumineuse relaxe assez rapidement en bas (pour les électrons) ou en haut (pour les trous) de bande

(sur des temps de l'ordre de la ps), mais la relaxation interbande peut se produire sur des échelles de temps bien plus longue. Ces porteurs hors d'équilibre sont alors responsables d'une contrainte appelée déformation de potentiel. Dans le cas d'un milieu isotrope, dans le cas d'une bande de valence et d'une bande de conduction, elle s'écrit :

$$\sigma^e = -N \frac{\partial E_g}{\partial P} B$$

où N est la concentration des porteurs, E_g l'énergie de bande interdite, $\frac{\partial E_g}{\partial P}$ la constante de déformation et B le module élastique [155, 156].

Enfin citons le cas de matériaux piézoélectriques où un autre mécanisme intervient. Dans ce cas, les paires électrons trous créés après l'absorption de l'impulsion lumineuse femtoseconde, sont spatialement séparés à cause du champ piézoélectrique préexistant, dû à la contrainte statique du matériau. Le champ piézoélectrique est alors écranté, modifiant instantanément l'équilibre du réseau dont la relaxation est à l'origine d'une onde cohérente de phonons. Notons que cette force motrice peut engendrer des ondes longitudinale et transverses, contrairement aux mécanismes précédents. Cela a été profitable pour créer des ondes transverses dans des cristaux taillés dans des directions particulières (par ex. [157]), ou pour générer des ondes acoustiques dans GaN ou des puits quantiques InGaN/GaN (par ex. [158]).

Le poids des différents mécanismes n'est pas toujours facile à déterminer, mais dans le cas des semi-conducteurs comme GaAs dans la direction 111, le mécanisme dominant est la déformation de potentiel [155].

Finalement, si l'on néglige toute diffusion thermique ou électronique, l'absorption de la lumière sur une certaine profondeur ξ dépose un gradient de contrainte, qu'elle soit photoinduite par thermoélasticité ou par déformation de potentiel, et c'est ce gradient qui est responsable de la naissance de l'onde acoustique cohérente. Dans le cas d'une couche d'aluminium de 30 nm, on génère des phonons jusqu'à 300 GHz environ.

Nous n'étudierons que les modes acoustiques longitudinaux mais il y a a priori coexistence des modes longitudinal et transverses, même si le processus de génération favorise le premier mode.

6.3.2 Détection des phonons acoustiques

La détection est optique, grâce à l'impulsion sonde focalisée à la surface de l'échantillon. L'arrivée de l'onde acoustique provoque d'une part un déplacement de la surface, qui modifie alors le chemin optique de l'onde électromagnétique et donc introduit un déphasage. D'autre part, le champ de déformation induit une modification des propriétés optiques, notamment de la constante diélectrique. Ces deux phénomènes se traduisent sur le changement de réflexion optique (en amplitude r) par une variation de l'amplitude ρ et de la phase ϕ . Le déplacement de surface ne joue que sur la phase, contrairement à l'effet photoélastique. Dans le cas d'un milieu semi-infini [156, 14, 17, 20]

$$\frac{\Delta r}{r} = 2ik_0 u(0, t) + ik_0 \frac{\partial n}{\partial \eta} \frac{4n}{1 - n^2} \int_0^\infty dz \eta(z, t) e^{2ik_0 n z} \quad (6.5)$$

où $u(0, t)$ est le déplacement de la surface de l'échantillon, k_0 le vecteur d'onde électromagnétique dans le vide, n l'indice du milieu et η la déformation. Notons que lorsque le milieu est semi-transparent, le signal est modulé avec la fréquence Brillouin (accord de phase) telle que $q = 2k_0 n$. Cela peut se comprendre comme l'interférence entre le faisceau sonde réfléchi à la surface et celui réfléchi sur le front d'onde de l'onde acoustique (situation illustrée figure 6.5). Dans le cas d'un

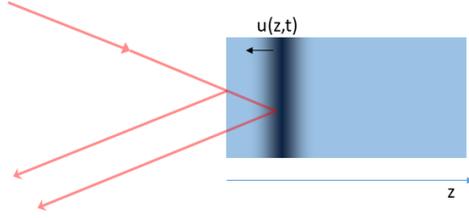


Figure 6.5 – Détection dans un milieu semi-transparent, vue comme l'interférence des faisceaux réfléchis à la surface et sur le front d'onde qui se déplace à la vitesse v . Le signal est alors modulé à la fréquence Brillouin $\nu = 2vn/\lambda$.

multicouche (N couches), la détection du changement de réflectivité 6.5 se réécrit [17] :

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{ik_0}{n_0 a_0 b_0} \left(2\epsilon_0 u_0 a_0 b_0 + \sum_{m=1}^{N-1} 2\epsilon_m (u_m - u_{m-1}) a_m b_m + \sum_{m=0}^N \frac{1}{2} \frac{\partial \epsilon_m}{\partial \eta} \int_0^{d_m} dz \eta_m(z) e^{iq_m z} (a_m e^{ik_m z} + b_m e^{-ik_m z})^2 \right) \quad (6.6)$$

où u_i est le déplacement de la $i^{\text{ème}}$ interface, ϵ_i , η_i , q_i , k_i , a_i et b_i sont respectivement la constante diélectrique, la déformation, le vecteur d'onde acoustique, les amplitudes du champ électrique et électromagnétique dans chaque couche i ($i = 0$ étant l'air), et d_i l'épaisseur de chaque couche.

Bibliographie

- [1] E. M. PURCELL, Proceedings of the american physical society, *Phys. Rev.* **69**, p. 681 (1946).
- [2] J. RARITY & C. WEISBUCH (éditeurs), *Microcavities and Photonic Bandgaps* (Kluwer, Dordrecht, 1996).
- [3] S. M. RYTOV, Acoustical properties of a thinly laminated medium, *Sov. Phys. Acoust.* **2**, p. 68 (1956).
- [4] M. S. KUSHWAHA, P. HALEVI, L. DOBRZYNSKI & B. DJAFARI-ROUHANI, Acoustic band structure of periodic elastic composites, *Phys. Rev. Lett.* **71**, pp. 2022–2025 (1993).
- [5] D. M. PROFUNSER, O. B. WRIGHT & O. MATSUDA, Imaging ripples on phononic crystals reveals acoustic band structure and Bloch harmonics, *Phys. Rev. Lett.* **97**, p. 055502 (2006).
- [6] B. JUSSERAND & M. CARDONA, *Light scattering in Solids V*, (p. 49) (Springer, Heidelberg, 1989).
- [7] U. ZEITLER, A. M. DEVITT, J. E. DIGBY, C. J. MELLOR, A. J. KENT, K. A. BENEDICT & T. CHENG, Ballistic heating of a two-dimensional electron system by phonon excitation of the magnetoroton minimum at $\nu = 1/3$, *Phys. Rev. Lett.* **82**, pp. 5333–5336 (1999).
- [8] A. J. KENT, A. J. NAYLOR, P. HAWKER & M. HENINI, Phonon-induced conductivity of ballistic quantum wires, *Phys. Rev. B* **61**, pp. R16311–R16314 (2000).
- [9] S. A. CAVILL, L. J. CHALLIS, A. J. KENT, F. F. OUALI, A. V. AKIMOV & M. HENINI, Acoustic phonon-assisted tunneling in GaAs/AlAs superlattices, *Phys. Rev. B* **66**, p. 235320 (2002).
- [10] H. RÜCKER, E. MOLINARI & P. LUGLI, Microscopic calculation of the electron-phonon interaction in quantum wells, *Phys. Rev. B* **45**, pp. 6747–6756 (1992).
- [11] M. TRIGO, A. BRUCHHAUSEN, A. FAINSTEIN, B. JUSSERAND & V. THIERRY-MIEG, Confinement of acoustical vibrations in a semiconductor planar phonon cavity, *Phys. Rev. Lett.* **89**, p. 227402 (2002).
- [12] J. VOLLMANN, D. M. PROFUNSER, A. H. MEIER, M. DÖBELI & J. DUAL, Pulse laser acoustics for the characterization of inhomogeneities at interfaces of microstructures, *Ultrasonics* **42** (1), pp. 657 – 663 (2004), ISSN 0041-624X. Proceedings of Ultrasonics International 2003.
- [13] J. ILUKOR & E. H. JACOBSEN, *Physical Acoustics*, volume V, (p. 221) (Academic, New York, 1968).
- [14] C. THOMSEN, H. T. GRAHN, H. J. MARIS & J. TAUC, Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses, *Phys. Rev. B* **34**, pp. 4129–4138 (1986).
- [15] G. L. EESLEY, B. M. CLEMENS & C. A. PADDOCK, Generation and detection of picosecond acoustic pulses in thin metal films, *Applied Physics Letters* **50** (12), pp. 717–719 (1987).

- [16] G. C. CHO, W. KÜTT & H. KURZ, Subpicosecond time-resolved coherent-phonon oscillations in gaas, *Phys. Rev. Lett.* **65**, pp. 764–766 (1990).
- [17] B. PERRIN, B. BONELLO, J. C. JEANNET & E. ROMATET, Interferometric detection of hypersonic waves in modulated structures, *Prog. Nat. Sci.* **6**, p. 444 (1996).
- [18] J. E. ROTHENBERG, Observation of the transient expansion of heated surfaces by picosecond photothermal deflection spectroscopy, *Opt. Lett.* **13** (9), pp. 713–715 (1988).
- [19] O. B. WRIGHT & K. KAWASHIMA, Coherent phonon detection from ultrafast surface vibrations, *Phys. Rev. Lett.* **69**, pp. 1668–1671 (1992).
- [20] B. PERRIN, C. ROSSIGNOL, B. BONELLO & J. C. JEANNET, Interferometric detection in picosecond ultrasonics, *Physica B* **263-264**, p. 571 (1999).
- [21] R. M. WHITE, Generation of elastic waves by transient surface heating, *Journal of Applied Physics* **34** (12), pp. 3559–3567 (1963).
- [22] G. TAS & H. J. MARIS, Electron diffusion in metals studied by picosecond ultrasonics, *Phys. Rev. B* **49**, pp. 15046–15054 (1994).
- [23] V. E. GUSEV & O. B. WRIGHT, Ultrafast nonequilibrium dynamics of electrons in metals, *Phys. Rev. B* **57**, pp. 2878–2888 (1998).
- [24] H.-Y. HAO & H. J. MARIS, Study of phonon dispersion in silicon and germanium at long wavelengths using picosecond ultrasonics, *Phys. Rev. Lett.* **84**, p. 5556 (2000).
- [25] H.-Y. HAO & H. J. MARIS, Dispersion of the long-wavelength phonons in Ge, Si, GaAs, quartz, and sapphire, *Phys. Rev. B* **63**, p. 224301 (2001).
- [26] H.-Y. HAO & H. J. MARIS, Experiments with acoustic solitons in crystalline solids, *Phys. Rev. B* **64**, p. 64302 (2001).
- [27] W. SINGHSOMROJE & H. J. MARIS, Generating and detecting phonon solitons in MgO using picosecond ultrasonics, *Phys. Rev. B* **69**, p. 174303 (2004).
- [28] T. C. ZHU, H. J. MARIS & J. TAUC, Attenuation of longitudinal-acoustic phonons in amorphous SiO_2 at frequencies up to 440 GHz, *Phys. Rev. B* **44**, pp. 4281–4289 (1991).
- [29] W. CHEN, H. J. MARIS, Z. WASILEWSKI & S.-I. TAMURA, Attenuation and velocity of 56 GHz longitudinal phonons in gallium arsenide from 50 to 300 K, *Philosophical Magazine Part B* **70** (3), pp. 687–698 (1994), ISSN 1364-2812.
- [30] B. PERRIN, *Systèmes femtosecondes*, chapitre Acoustique picoseconde (Publication de l'Université de Saint-Etienne, 2001).
- [31] V. NARAYANAMURTI, H. L. STÖRMER, M. A. CHIN, A. C. GOSSARD & W. WIEGMANN, Selective transmission of high-frequency phonons by a superlattice : The "dielectric" phonon filter, *Phys. Rev. Lett.* **43**, pp. 2012–2016 (1979).
- [32] F. R. MONTERO DE ESPINOSA, E. JIMÉNEZ & M. TORRES, Ultrasonic band gap in a periodic two-dimensional composite, *Phys. Rev. Lett.* **80**, pp. 1208–1211 (1998).
- [33] S. YANG, J. H. PAGE, Z. LIU, M. L. COWAN, C. T. CHAN & P. SHENG, Ultrasound tunneling through 3D phononic crystals, *Phys. Rev. Lett.* **88**, p. 104301 (2002).
- [34] J. CHEN & J. KHURGIN, Feasibility analysis of phonon lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39** (4), pp. 600–607 (2003).

- [35] P. A. FOKKER, J. I. DIJKHUIS & H. W. DE WIJN, Stimulated emission of phonons in an acoustical cavity, *Phys. Rev. B* **55**, pp. 2925–2933 (1997).
- [36] B. JUSSERAND & B. PERRIN, La nanophononique : un outil pour l’acoustique térahertz, *Images de la Physique, éditions du CNRS* (2008).
- [37] O. MUSKENS, A. V. AKIMOV & J. I. DIJKHUIS, Coherent interactions of terahertz strain solitons and electronic two-level systems in photoexcited ruby, *Phys. Rev. Lett.* **92**, p. 35503 (2004).
- [38] E. PÉRONNE & B. PERRIN, Generation and detection of acoustic solitons in crystalline slabs by laser ultrasonics, *Ultrasonics* **44**, p. 1203 (2006).
- [39] P. J. S. VAN CAPEL, E. PERONNE & J. I. DIJKHUIS, Nonlinear ultrafast acoustics at the nano scale, *Ultrasonics* **56**, pp. 36–51 (2015), ISSN 0041624X.
- [40] T. A. DRISCOLL, A Composite Runge-Kutta Method for the Spectral Solution of Semilinear PDEs, *Journal of Computational Physics* **182** (2), pp. 357–367 (2002), ISSN 00219991.
- [41] L. BELLIARD, A. HUYNH, B. PERRIN, A. MICHEL, G. ABADIAS & C. JAOUEN, Elastic properties and phonon generation in Mo/Si superlattices, *Phys. Rev. B* **80**, p. 155424 (2009).
- [42] N. D. LANZILLOTTI-KIMURA, A. FAINSTEIN, B. PERRIN, B. JUSSERAND, O. MAUGUIN, L. LARGEAU & A. LEMAÎTRE, Bloch oscillations of thz acoustic phonons in coupled nanocavity structures, *Phys. Rev. Lett.* **104**, p. 197402 (2010).
- [43] R. SAPIENZA, P. COSTANTINO, D. WIERSMA, M. GHULINYAN, C. J. OTON & L. PAVESI, Optical analogue of electronic bloch oscillations, *Phys. Rev. Lett.* **91**, p. 263902 (2003).
- [44] V. AGARWAL, J. A. DEL RÍO, G. MALPUECH, M. ZAMFIRESCU, A. KAVOKIN, D. COQUILLAT, D. SCALBERT, M. VLADIMIROVA & B. GIL, Photon bloch oscillations in porous silicon optical superlattices, *Phys. Rev. Lett.* **92**, p. 097401 (2004).
- [45] Ö. O. SOYKAL, R. RUSKOV & C. TAHAN, Sound-based analogue of cavity quantum electrodynamics in silicon, *Phys. Rev. Lett.* **107**, p. 235502 (2011).
- [46] S. SANDEEP, S. L. HEYWOOD, R. P. CAMPION, A. J. KENT & R. N. KINI, Resonance of terahertz phonons in an acoustic nanocavity, *Phys. Rev. B* **98**, p. 235303 (2018).
- [47] S. SANDEEP & R. N. KINI, Phoniton in a GaAs-AlAs acoustic phonon cavity with a tunable two-level system, *Semiconductor Science and Technology* **34** (7), p. 075010 (2019).
- [48] A. FAINSTEIN, N. D. LANZILLOTTI-KIMURA, B. JUSSERAND & B. PERRIN, Strong optical-mechanical coupling in a vertical GaAs/AlAs microcavity for subterahertz phonons and near-infrared light, *Phys. Rev. Lett.* **110**, p. 037403 (2013).
- [49] C. LAGOIN, B. PERRIN, P. ATKINSON & D. GARCIA-SANCHEZ, High spectral resolution of GaAs/AlAs phononic cavities by subharmonic resonant pump-probe excitation, *Phys. Rev. B* **99**, p. 060101 (2019).
- [50] K. MIZOGUCHI, M. HASE, S. NAKASHIMA & M. NAKAYAMA, Observation of coherent folded acoustic phonons propagating in a GaAs/AlAs superlattice by two-color pump-probe spectroscopy, *Phys. Rev. B* **60**, pp. 8262–8266 (1999).
- [51] A. BARTELS, T. DEKORSY, H. KURZ & K. KÖHLER, Coherent zone-folded longitudinal acoustic phonons in semiconductor superlattices : Excitation and detection, *Phys. Rev. Lett.* **82**, p. 1044 (1999).

- [52] J. J. BAUMBERG, D. A. WILLIAMS & K. KÖHLER, Ultrafast acoustic phonon ballistics in semiconductor heterostructures, *Phys. Rev. Lett.* **78**, pp. 3358–3361 (1997).
- [53] O. MATSUDA, T. TACHIZAKI, T. FUKUI, J. J. BAUMBERG & O. B. WRIGHT, Acoustic phonon generation and detection in GaAs/AlAs_{0.3}Ga_{0.7}As quantum wells with picosecond laser pulses, *Phys. Rev. B* **71**, p. 115330 (2005).
- [54] A. HUYNH, B. PERRIN & A. LEMAÎTRE, Semiconductor superlattices : A tool for terahertz acoustics., *Ultrasonics* **56**, pp. 66–79 (2015), ISSN 1874-9968.
- [55] M. F. PASCUAL WINTER, G. ROZAS, A. FAINSTEIN, B. JUSSERAND, B. PERRIN, A. HUYNH, P. O. VACCARO & S. SARAVANAN, Selective optical generation of coherent acoustic nanocavity modes, *Phys. Rev. Lett.* **98**, p. 265501 (2007).
- [56] C. ROSSIGNOL & B. PERRIN, Picosecond ultrasonics study of periodic multilayers, *Analytical Sciences* **17**, p. 245 (2001).
- [57] B. C. DALY, N. C. HOLME, T. BUMA, C. BRANCIARD, T. B. NORRIS, D. M. TENNANT, J. A. TAYLOR, J. E. BOWER & S. PAU, Imaging nanostructures with coherent phonon pulses, *Applied Physics Letters* **84** (25), p. 5180 (2004), ISSN 00036951.
- [58] R. LEGRAND, A. HUYNH, S. VINCENT, B. PERRIN & A. LEMAÎTRE, Device for acoustic pulse echo experiments in the subterahertz range, *Phys. Rev. B* **95**, p. 014304 (2017).
- [59] A. BARTELS, F. HUDERT, C. JANKE, T. DEKORSY & K. KÖHLER, Femtosecond time-resolved optical pump-probe spectroscopy at kilohertz-scan-rates over nanosecond-time-delays without mechanical delay line, *Applied Physics Letters* **88** (4), p. 041117 (2006).
- [60] R. GEBS, G. KLATT, C. JANKE, T. DEKORSY & A. BARTELS, High-speed asynchronous optical sampling with sub-50fs time resolution, *Opt. Express* **18** (6), pp. 5974–5983 (2010).
- [61] S. EDWARD, H. ZHANG, I. SETIJA, V. VERRINA, A. ANTONCECCHI, S. WITTE & P. PLANCKEN, Detection of hidden gratings through multilayer nanostructures using light and sound, *Phys. Rev. Applied* **14**, p. 014015 (2020).
- [62] V. VERRINA, S. EDWARD, H. ZHANG, A. ANTONCECCHI, S. WITTE & P. PLANCKEN, Role of scattering by surface roughness in the photoacoustic detection of hidden micro-structures, *Appl. Opt.* **59** (30), pp. 9499–9509 (2020).
- [63] J. P. WOLFE, *Imaging Phonons* (Cambridge University Press, Cambridge, Great Britain, 1998).
- [64] Y. K. KOH & D. G. CAHILL, Frequency dependence of the thermal conductivity of semiconductor alloys, *Phys. Rev. B* **76**, p. 075207 (2007).
- [65] A. J. MINNICH, Determining phonon mean free paths from observations of quasiballistic thermal transport, *Phys. Rev. Lett.* **109**, p. 205901 (2012).
- [66] A. J. MINNICH, J. A. JOHNSON, A. J. SCHMIDT, K. ESFARJANI, M. S. DRESSELHAUS, K. A. NELSON & G. CHEN, Thermal conductivity spectroscopy technique to measure phonon mean free paths, *Phys. Rev. Lett.* **107**, p. 095901 (2011).
- [67] L. ZENG, K. C. COLLINS, Y. HU, M. N. LUCKYANOVA, A. A. MAZNEV, S. HUBERMAN, V. CHILOYAN, J. ZHOU, X. HUANG, K. A. NELSON & G. CHEN, Measuring Phonon Mean Free Path Distributions by Probing Quasiballistic Phonon Transport in Grating Nanostructures, *Scientific Reports* **5** (August), p. 17131 (2015), ISSN 2045-2322.

- [68] K. T. REGNER, D. P. SELLAN, Z. SU, C. H. AMON, A. J. H. MCGAUGHEY & J. MALEN, Broadband phonon mean free path contributions to thermal conductivity measured using frequency domain thermoreflectance., *Nature Communications* **4**, p. 1640 (2013), ISSN 2041-1723.
- [69] J. P. FREEDMAN, J. H. LEACH, E. A. PREBLE, Z. SITAR, R. F. DAVIS & J. A. MALEN, Universal phonon mean free path spectra in crystalline semiconductors at high temperature., *Scientific reports* **3**, p. 2963 (2013), ISSN 2045-2322.
- [70] J. BLAKEMORE, *Solid State Physics* (Cambridge University Press, Cambridge, Great Britain, 1985), 2^e édition.
- [71] J. A. JOHNSON, A. A. MAZNEV, J. CUFFE, J. K. ELIASON, A. J. MINNICH, T. KEHOE, C. M. S. TORRES, G. CHEN & K. A. NELSON, Direct measurement of room-temperature nondiffusive thermal transport over micron distances in a silicon membrane, *Phys. Rev. Lett.* **110**, p. 025901 (2013).
- [72] J. CUFFE, J. K. ELIASON, A. A. MAZNEV, K. C. COLLINS, J. A. JOHNSON, A. SHCHEPETOV, M. PRUNNILA, J. AHOPELTO, C. M. SOTOMAYOR TORRES, G. CHEN & K. A. NELSON, Reconstructing phonon mean-free-path contributions to thermal conductivity using nanoscale membranes, *Phys. Rev. B* **91**, p. 245423 (2015).
- [73] D. A. BROIDO, M. MALORNY, G. BIRNER, N. MINGO & D. A. STEWART, Intrinsic lattice thermal conductivity of semiconductors from first principles, *Applied Physics Letters* **91** (23), p. 231922 (2007).
- [74] A. WARD & D. A. BROIDO, Intrinsic phonon relaxation times from first-principles studies of the thermal conductivities of Si and Ge, *Phys. Rev. B* **81**, p. 085205 (2010).
- [75] K. ESFARJANI, G. CHEN & H. T. STOKES, Heat transport in silicon from first-principles calculations, *Phys. Rev. B* **84**, p. 085204 (2011).
- [76] A. S. HENRY & G. CHEN, Spectral phonon transport properties of silicon based on molecular dynamics simulations and lattice dynamics, *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience* **5** (2), pp. 141–152 (2008), ISSN 1546-1955.
- [77] C. HERRING, Role of low-energy phonons in thermal conduction, *Phys. Rev.* **95**, pp. 954–965 (1954).
- [78] J. MA, O. DELAIRE, A. F. MAY, C. E. CARLTON, M. A. MCGUIRE, L. H. VANBEBBER, D. L. ABERNATHY, G. EHLERS, T. HONG, A. HUQ, W. TIAN, V. M. KEPPENS, Y. SHAO-HORN & B. C. SALES, Glass-like phonon scattering from a spontaneous nanostructure in AgSbTe₂, *Nature Nanotechnology* **8** (6), pp. 445–451 (2013), ISSN 17483395.
- [79] A. SHUKLA, M. CALANDRA, M. D’ASTUTO, M. LAZZERI, F. MAURI, C. BELLIN, M. KRISCH, J. KARPINSKI, S. M. KAZAKOV, J. JUN, D. DAGHERO & K. PARLINSKI, Phonon dispersion and lifetimes in MgB₂, *Phys. Rev. Lett.* **90**, p. 095506 (2003).
- [80] B. C. DALY, K. KANG, Y. WANG & D. G. CAHILL, Picosecond ultrasonic measurements of attenuation of longitudinal acoustic phonons in silicon, *Phys. Rev. B* **80**, p. 174112 (2009).
- [81] P. EMERY & A. DEVOS, Acoustic attenuation measurements in transparent materials in the hypersonic range by picosecond ultrasonics, *Applied Physics Letters* **89** (19), p. 191904 (2006), ISSN 00036951.

- [82] T. M. LIU, S. Z. SUN, C. F. CHANG, C. C. PAN, G. T. CHEN, J. I. CHYI, V. GUSEV & C. K. SUN, Anharmonic decay of subterahertz coherent acoustic phonons in GaN, *Applied Physics Letters* **90** (4), pp. 2007–2009 (2007), ISSN 00036951.
- [83] A. A. MAZNEV, F. HOFMANN, A. JANDL, K. ESFARJANI, M. T. BULSARA, E. A. FITZGERALD, G. CHEN & K. A. NELSON, Lifetime of sub-THz coherent acoustic phonons in a GaAs-AlAs superlattice, *Applied Physics Letters* **102** (4), p. 041901 (2013), ISSN 00036951.
- [84] W. CHEN, H. J. MARIS, Z. WASILEWSKI & S.-I. TAMURA, Attenuation and velocity of 56 GHz longitudinal phonons in gallium arsenide from 50 to 300 K, *Philosophical Magazine Part B* **70** (3), pp. 687–698 (1994), ISSN 1364-2812.
- [85] A. J. KENT, N. M. STANTON, L. J. CHALLIS & M. HENINI, Generation and propagation of monochromatic acoustic phonons in gallium arsenide, *Applied Physics Letters* **81** (18), p. 3497 (2002), ISSN 00036951.
- [86] M. MARKOV, J. SJAKSTE, N. VAST, R. LEGRAND, B. PERRIN & L. PAULATTO, Breakdown of Herring’s processes in cubic semiconductors for subterahertz longitudinal acoustic phonons, *Phys. Rev. B* **98**, p. 245201 (2018).
- [87] P. KLEMENS, Thermal conductivity and lattice vibrational modes, volume 7 de *Solid State Physics*, (pp. 1 – 98) (Academic Press, 1958).
- [88] S.-I. TAMURA, Isotope scattering of large-wave-vector phonons in GaAs and InSb : Deformation-dipole and overlap-shell models, *Phys. Rev. B* **30**, pp. 849–854 (1984).
- [89] H. J. MARIS, Attenuation of Ultra-high-frequency Acoustic Waves in Quartz at Low Temperatures, *Nature* **198**, p. 876 (1963).
- [90] S. SIMONS & J. M. ZIMAN, The absorption of very high frequency sound in dielectric solids, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* **53** (03), p. 702 (1957), ISSN 0305-0041.
- [91] A. BERKE, A. P. MAYER & R. K. WEHNER, Spontaneous decay of long-wavelength surface acoustic phonons., *Journal of Physics C : Solid State Physics* **21**, pp. 2305–2323 (1988).
- [92] H. J. MARIS & S. TAMURA, Propagation of acoustic phonon solitons in nonmetallic crystals, *Phys. Rev. B* **84**, p. 024301 (2011).
- [93] H. MARIS, Sound waves and thermal phonons, in *Physical Acoustics* (édité par W. P. MASON & N. Y. R. N. THURSTON, (ACADEMIC PRESS).
- [94] R. LEGRAND, A. HUYNH, B. JUSSERAND, B. PERRIN & A. LEMAÎTRE, Direct measurement of coherent subterahertz acoustic phonons mean free path in GaAs, *Phys. Rev. B* **93**, p. 184304 (2016).
- [95] R. C. ZELLER & R. O. POHL, Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids, *Phys. Rev. B* **4**, pp. 2029–2041 (1971).
- [96] H. SHINTANI & H. TANAKA, Universal link between the boson peak and transverse phonons in glass, *Nature Materials* **7** (11), pp. 870–877 (2008), ISSN 14764660.
- [97] K.-H. LIN, D. H. TSAI, K. J. WANG, S. H. CHEN, K. L. CHI, J. W. SHI, P. C. CHEN & J. K. SHEU, Acoustic spectroscopy for studies of vitreous silica up to 740 GHz, *AIP Advances* **3** (2013), pp. 0–8 (2013), ISSN 21583226.
- [98] J. E. GRAEBNER, B. GOLDING & L. C. ALLEN, Phonon localization in glasses, *Phys. Rev. B* **34**, pp. 5696–5701 (1986).

- [99] M. RANDERIA & J. P. SETHNA, Resonant scattering and thermal transport in orientational glasses, *Phys. Rev. B* **38**, pp. 12607–12614 (1988).
- [100] A. K. RAYCHAUDHURI, S. HUNKLINGER & I. INTRODUCTION, Implications on the Tunneling Model **125**, pp. 113–125 (1984).
- [101] R. KEIL, G. KASPER & S. HUNKLINGER, Distribution of barrier heights in a-SiO₂ and a-Se, *J. Non-Cryst. Solids* **164–166**, pp. 1183–1186 (1993).
- [102] BARTELL, U. & HUNKLINGER, S., Pressure dependence of the low temperature acoustic anomalies in vitreous silica, *J. Phys. Colloques* **43**, pp. C9–489–C9–492 (1982).
- [103] R. VACHER, E. COURTENS & M. FORET, Anharmonic versus relaxational sound damping in glasses. ii. vitreous silica, *Phys. Rev. B* **72**, p. 214205 (2005).
- [104] W. SCHIRMACHER & M. WAGENER, Vibrational anomalies and phonon localization in glasses, *Solid State Communications* **86** (9), pp. 597 – 603 (1993), ISSN 0038-1098.
- [105] W. SCHIRMACHER, Thermal conductivity of glassy materials and the boson peak, *Europhys. Lett.* **73**, pp. 892–898 (2006).
- [106] W. SCHIRMACHER, Some comments on fluctuating-elasticity and local oscillator models for anomalous vibrational excitations in glasses, *Journal of Non-Crystalline Solids* **357** (2), pp. 518–523 (2011), ISSN 00223093.
- [107] U. BUCHENAU, Y. M. GALPERIN, V. L. GUREVICH, D. A. PARSHIN, M. A. RAMOS & H. R. SCHOBER, Interaction of soft modes and sound waves in glasses, *Phys. Rev. B* **46**, pp. 2798–2808 (1992).
- [108] D. A. PARSHIN & C. LAERMANS, Interaction of quasilocal harmonic modes and boson peak in glasses, *Phys. Rev. B* **63**, p. 132203 (2001).
- [109] R. VACHER, S. AYRINHAC, M. FORET, B. RUFFLÉ & E. COURTENS, Finite size effects in brillouin scattering from silica glass, *Phys. Rev. B* **74** (1), p. 012203 (2006).
- [110] C. MASCIOVECCHIO, A. GESSINI, S. DI FONZO, L. COMEZ, S. C. SANTUCCI & D. FIORRETTO, Inelastic ultraviolet scattering from high frequency acoustic modes in glasses, *Phys. Rev. Lett.* **92**, p. 247401 (2004).
- [111] P. BENASSI, S. CAPONI, R. ERAMO, A. FONTANA, A. GIUGNI, M. NARDONE, M. SAMPOLI & G. VILIANI, Sound attenuation in a unexplored frequency region : Brillouin ultraviolet light scattering measurements in v -SiO₂, *Phys. Rev. B* **71**, p. 172201 (2005).
- [112] B. RUFFLÉ, E. COURTENS & M. FORET, Inelastic ultraviolet brillouin scattering from superpolished vitreous silica, *Phys. Rev. B* **84**, p. 132201 (2011).
- [113] S. AYRINHAC, M. FORET, A. DEVOS, B. RUFFLÉ, E. COURTENS & R. VACHER, Subterahertz hypersound attenuation in silica glass studied via picosecond acoustics, *Phys. Rev. B* **83**, p. 014204 (2011).
- [114] C. KLIEBER, E. PERONNE, K. KATAYAMA, J. CHOI, M. YAMAGUCHI, T. PEZERIL & K. A. NELSON, Narrow-band acoustic attenuation measurements in vitreous silica at frequencies between 20 and 400 GHz, *Applied Physics Letters* **98** (21), p. 211908 (2011), ISSN 00036951.
- [115] Y.-C. WEN, S.-H. GUOL, H.-P. CHEN, J.-K. SHEU & C.-K. SUN, Femtosecond ultrasonic spectroscopy using a piezoelectric nanolayer : Hypersound attenuation in vitreous silica films, *Applied Physics Letters* **99** (5), p. 051913 (2011), ISSN 00036951.

- [116] B. RUFFLÉ, G. GUIMBRETIERE, E. COURTENS, R. VACHER & G. MONACO, Glass-specific behavior in the damping of acousticlike vibrations, *Phys. Rev. Lett.* **96**, p. 045502 (2006).
- [117] C. MASCIOVECCHIO, G. RUOCCO, F. SETTE, P. BENASSI, A. CUNSOLO, M. KRISCH, V. MAZZACURATI, A. MERMET, G. MONACO & R. VERBENI, High-frequency propagating modes in vitreous silica at 295 K, *Phys. Rev. B* **55**, pp. 8049–8051 (1997).
- [118] G. BALDI, V. M. GIORDANO & G. MONACO, Elastic anomalies at terahertz frequencies and excess density of vibrational states in silica glass, *Phys. Rev. B* **83**, p. 174203 (2011).
- [119] B. RUFFLÉ, D. A. PARSHIN, E. COURTENS & R. VACHER, Boson peak and its relation to acoustic attenuation in glasses, *Phys. Rev. Lett.* **100**, p. 015501 (2008).
- [120] S. MATSUDA, M. MIURA, T. MATSUDA, M. UEDA, Y. SATOH & K. HASHIMOTO, Correlation between propagation loss and silicon dioxide film properties for surface acoustic wave devices, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **60** (5), pp. 993–997 (2013), ISSN 0885-3010.
- [121] M. GRANATA, E. SARACCO, N. MORGADO, A. CAJGFINGER, G. CAGNOLI, J. DEGALLAIX, V. DOLIQUE, D. FOREST, J. FRANC, C. MICHEL, L. PINARD & R. FLAMINIO, Mechanical loss in state-of-the-art amorphous optical coatings, *Phys. Rev. D* **93**, p. 012007 (2016).
- [122] A. HUYNH, E. PÉRONNE, C. GINGREAU, X. LAFOSSE, A. LEMAÎTRE, B. PERRIN, R. VACHER, B. RUFFLÉ & M. FORET, Temperature dependence of hypersound attenuation in silica films via picosecond acoustics, *Phys. Rev. B* **96**, p. 174206 (2017).
- [123] S. AYRINHAC, B. RUFFLÉ, M. FORET, H. TRAN, S. CLÉMENT, R. VIALLA, R. VACHER, J. C. CHERVIN, P. MUNSCH & A. POLIAN, Dynamical origin of anomalous temperature hardening of elastic modulus in vitreous silica, *Phys. Rev. B* **84**, p. 024201 (2011).
- [124] G. M. HARRY, A. M. GRETARSSON, P. R. SAULSON, S. E. KITTELBERGER, S. D. PENN, W. J. STARTIN, S. ROWAN, M. M. FEJER, D. R. CROOKS, G. CAGNOLI, J. HOUGH & N. NAKAGAWA, Thermal noise in interferometric gravitational wave detectors due to dielectric optical coatings, *Classical and Quantum Gravity* **19** (5), pp. 897–917 (2002), ISSN 02649381.
- [125] G. W. CHERN, K. H. LIN & C. K. SUN, Transmission of light through quantum heterostructures modulated by coherent acoustic phonons, *Journal of Applied Physics* **95** (3), pp. 1114–1121 (2004), ISSN 00218979.
- [126] C.-K. SUN, J.-C. LIANG & X.-Y. YU, Coherent acoustic phonon oscillations in semiconductor multiple quantum wells with piezoelectric fields, *Phys. Rev. Lett.* **84**, pp. 179–182 (2000).
- [127] G. W. CHERN, K.-H. LIN & C. K. SUN, Transmission of light through quantum heterostructures modulated by coherent acoustic phonons, *Journal of Applied Physics* **95** (3), pp. 1114–1121 (2004), ISSN 0021-8979.
- [128] G. MONACO & V. M. GIORDANO, Breakdown of the Debye approximation for the acoustic modes with nanometric wavelengths in glasses, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **106** (10), pp. 3659–3663 (2009), ISSN 0027-8424.
- [129] H. R. SCHOBER, Quasi-localized vibrations and phonon damping in glasses, *Journal of Non-Crystalline Solids* **357** (2), pp. 501–505 (2011), ISSN 00223093.
- [130] B. E. WHITE & R. O. POHL, How do two-level-systems come about?, *Physica B : Condensed Matter* **219-220** (1-4), pp. 267–269 (1996), ISSN 09214526.

- [131] P. D. VU, J. R. OLSON & R. O. POHL, Phonon scattering in thin silica films below 1 K, *Journal of Low Temperature Physics* **113** (1-2), pp. 123–139 (1998), ISSN 00222291.
- [132] S. RAMANATHAN & D. G. CAHILL, High-resolution picosecond acoustic microscopy for non-invasive characterization of buried interfaces, *Journal of Materials Research* **21**, pp. 1204–1208 (2006).
- [133] M. HETTICH, K. JACOB, O. RISTOW, C. HE, J. MAYER, M. SCHUBERT, V. GUSEV, A. BRUCHHAUSEN & T. DEKORSY, Imaging of a patterned and buried molecular layer by coherent acoustic phonon spectroscopy, *Applied Physics Letters* **101** (19), p. 191606 (2012).
- [134] J. C. D. FARIA, P. GARNIER & A. DEVOS, Non-destructive spatial characterization of buried interfaces in multilayer stacks via two color picosecond acoustics, *Applied Physics Letters* **111** (24), p. 243105 (2017).
- [135] B. PERRIN, Ultrasonic attenuation in molecular crystals, *Phys. Rev. B* **24**, pp. 6104–6113 (1981).
- [136] D. H. MACHADO, A. CRESPO-POVEDA, A. S. KUZNETSOV, K. BIERMANN, L. V. SCALVI & P. V. SANTOS, Generation and propagation of superhigh-frequency bulk acoustic waves in GaAs, *Phys. Rev. Applied* **12**, p. 044013 (2019).
- [137] L. D. HICKS & M. S. DRESSELHAUS, Effect of quantum-well structures on the thermoelectric figure of merit, *Phys. Rev. B* **47**, pp. 12727–12731 (1993).
- [138] J. P. HEREMANS, C. M. THRUSH, D. T. MORELLI & M.-C. WU, Thermoelectric power of bismuth nanocomposites, *Phys. Rev. Lett.* **88**, p. 216801 (2002).
- [139] G. WANG, L. ENDICOTT, H. CHI, P. LOŠT’ÁK & C. UHER, Tuning the temperature domain of phonon drag in thin films by the choice of substrate, *Phys. Rev. Lett.* **111**, p. 046803 (2013).
- [140] R. VENKATASUBRAMANIAN, E. SIIVOLA, T. COLPITTS & B. O’QUINN, Thin-film thermoelectric devices with high room-temperature figures of merit, *Nature* **413** (6856), pp. 597–602 (2001), ISSN 00280836.
- [141] H. OSTERHAGE, J. GOOTH, B. HAMDou, P. GWOZDZ, R. ZIEROLD & K. NIELSCH, Thermoelectric properties of topological insulator Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 , and Bi_2Se_3 thin film quantum wells, *Applied Physics Letters* **105** (12), p. 123117 (2014).
- [142] G. PRAKASH, K. PAL, M. JAIN, U. V. WAGHMARE & A. K. SOOD, Origin of the thermal expansion anomaly in layered bi_2x_3 topological insulators : Ultrafast time-resolved pump-probe experiments and theory, *Phys. Rev. B* **96**, p. 075109 (2017).
- [143] G. PRAKASH, K. PAL, U. V. WAGHMARE & A. K. SOOD, Anomalous temperature dependence of optical and acoustic phonons in bi_2se_3 arising from stacking faults, *Physica Scripta* **94** (11), p. 115706 (2019).
- [144] K. G. SANDEMAN, Magnetocaloric materials : The search for new systems, *Scripta Materialia* **67** (6), pp. 566 – 571 (2012), ISSN 1359-6462. Viewpoint Set No. 51 : Magnetic Materials for Energy.
- [145] D. N. BA, L. BECERRA, N. CASARETTO, J.-E. DUVAUCHELLE, M. MARANGOLO, M. ALMANZA & M. LOBUE, Magnetocaloric Gadolinium thick films for energy harvesting applications Magnetocaloric Gadolinium thick films for energy harvesting applications, *AIP Advances* **10** (February), p. 035110 (2020).

- [146] C. GLORIEUX, J. THOEN, G. BEDNARZ, M. A. WHITE & D. J. W. GELDART, Photoacoustic investigation of the temperature and magnetic-field dependence of the specific-heat capacity and thermal conductivity near the curie point of gadolinium, *Phys. Rev. B* **52**, pp. 12770–12778 (1995).
- [147] V. SAVONA, Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells., in *Confined Photon Systems. Lecture Notes in Physics* (édité par H. BENISTY, C. WEISBUCH, ÉCOLE POLYTECHNIQUE, J. M. GÉRARD, R. HOUDRÉ & J. RARITY), (p. 173) (vol 531. Springer, Berlin, Heidelberg, 1999).
- [148] B. JUSSERAND, D. PAQUET, F. MOLLOT, F. ALEXANDRE & G. LE ROUX, Influence of the supercell structure on the folded acoustical Raman line intensities in superlattices, *Phys. Rev. B* **35**, pp. 2808–2817 (1987).
- [149] H. T. GRAHN, H. J. MARIS, J. TAUC & B. ABELES, Time-resolved study of vibrations of a-Ge:H/a-Si:H multilayers, *Phys. Rev. B* **38**, pp. 6066–6074 (1988).
- [150] N. D. LANZILLOTTI-KIMURA, A. FAINSTEIN, A. HUYNH, B. PERRIN, B. JUSSERAND, A. MIARD & A. LEMAÎTRE, Coherent generation of acoustic phonons in an optical microcavity, *Phys. Rev. Lett.* **99**, p. 217405 (2007).
- [151] T. K. CHENG, S. D. BRORSON, A. S. KAZEROONIAN, J. S. MOODERA, G. DRESSELHAUS, M. S. DRESSELHAUS & E. P. IPPEN, Impulsive excitation of coherent phonons observed in reflection in bismuth and antimony, *Applied Physics Letters* **57** (10), pp. 1004–1006 (1990).
- [152] P. RUELLO & V. E. GUSEV, Physical mechanisms of coherent acoustic phonons generation by ultrafast laser action, *Ultrasonics* **56**, pp. 21–35 (2015), ISSN 0041624X.
- [153] O. B. WRIGHT & V. GUSEV, Ultrafast generation of acoustic waves in copper, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control* **42** (3), pp. 331–338 (1995), ISSN 0885-3010.
- [154] O. B. WRIGHT & V. E. GUSEV, Ultrafast generation of acoustic waves in copper, *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **42**, pp. 331–338 (1995).
- [155] O. B. WRIGHT, B. PERRIN, O. MATSUDA & V. E. GUSEV, Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond acoustic pulses, *Phys. Rev. B* **64**, p. 081202 (2001).
- [156] C. THOMSEN, J. STRAIT, Z. VARDENY, H. J. MARIS, J. TAUC & J. J. HAUSER, Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses, *Phys. Rev. Lett.* **53**, pp. 989–992 (1984).
- [157] O. MATSUDA, O. B. WRIGHT, D. H. HURLEY, V. E. GUSEV & K. SHIMIZU, Coherent shear phonon generation and detection with ultrashort optical pulses, *Phys. Rev. Lett.* **93**, p. 095501 (2004).
- [158] C.-K. SUN, J.-C. LIANG, C. J. STANTON, A. ABARE, L. COLDREN & S. P. DENBAARS, Large coherent acoustic-phonon oscillation observed in InGaN/GaN multiple-quantum wells, *Applied Physics Letters* **75** (9), pp. 1249–1251 (1999).