N° d'ordre : 40353

# Thèse

**Présentée à**

**l'Université de Lille I - Université des Sciences et Technologies**

**par**

Pierre-Adrien MANTE

**pour l'obtention du**

**Grade de Docteur en Micro- et Nano-technologies, Acoustique et Télécommunications**

## Génération par impulsions laser ultracourtes d'ondes acoustiques hautes fréquences par des nanostructures

**présentée et soutenue publiquement le 16 Novembre 2010.**

| | | | |
|---|---|---|---|
| **Membres du jury :** | Bahram | Djafari-Rouhani | **Président** |
| | Bernard | Perrin | **Rapporteur** |
| | Jesse | Groenen | **Rapporteur** |
| | Vitali | Goussev | **Examinateur** |
| | Pascal | Ancey | **Encadrant de thèse** |
| | Arnaud | Devos | **Directeur de thèse** |

"Une civilisation sans la Science, ce serait aussi absurde qu'un poisson sans bicyclette."

Pierre Desproges

*À ma mère et mon père*
*À mes soeurs*

# Remerciements

Je tiens à remercier Arnaud Devos pour m'avoir permis de réaliser cette thèse durant laquelle j'ai pu profiter de ces qualités de chercheur et de ces connaissances (pas que scientifiques).

Je remercie également Pascal Ancey qui m'a suivi durant ces trois années et a su s'intéresser à tous les aspects de mes travaux.

Je remercie l'ensemble des membres du jury, Bahram Djafari-Rouhani pour avoir accepté le poste de président du jury, Bernard Perrin et Jesse Groenen pour avoir accepté d'être rapporteur de mon travail, Vitali Goussev pour avoir accepté d'examiner mes travaux.

Je remercie les membres de l'équipe nano-acoustique qui ont réussi à me supporter pendant ces trois années : Jean-François, Oliwer, Sabrina et Fabrice. Un grand merci à Patrick pour l'ensemble de son oeuvre, du PSG à Jasseron. Un remerciement spécial à Arnaud (le complice) qui a fait preuve d'une patience et d'un contrôle de soi exceptionnels pour réussir à travailler avec moi.

Je remercie les personnes que j'ai cotoyé durant ces trois années et avec qui j'ai pu passer de bons moments : Maxime, Loïc, Gauthier, Mamadou, Sergio, François et George Foreman.

Je remercie également l'ensemble des personnes qui ne me connaisse pas (scientifiquement ou pas du tout).

# Table des matières

**Introduction** **9**

**1 L'Acoustique Picoseconde et ses Limitations** **11**
1.1 La technique acoustique picoseconde . . . . . 12
1.1.1 Historique . . . . . 12
1.1.2 Principe . . . . . 13
1.2 Génération . . . . . 15
1.2.1 Contrainte thermo-élastique . . . . . 16
1.2.2 Contrainte électronique . . . . . 18
1.2.3 Les autres contraintes . . . . . 20
1.3 Détection . . . . . 21
1.3.1 Dans un milieu absorbant . . . . . 21
1.3.2 Dans un milieu transparent . . . . . 22
1.4 Limitations . . . . . 23
1.4.1 Les très hautes fréquences . . . . . 24
1.4.2 Les ondes transverses . . . . . 29

**2 Réseaux de Nanostructures** **35**
2.1 Génération d'ondes acoustiques de surface par des nanostructures . . . . . 37
2.1.1 Présentation des échantillons et des signaux . . . . . 37
2.1.2 Des modes collectifs . . . . . 40
2.1.3 Modèle . . . . . 42
2.2 Caractérisation mécanique complète . . . . . 47
2.2.1 Principe . . . . . 47
2.2.2 Comparatif avec la nanoindentation . . . . . 53
2.2.3 Effet de température . . . . . 55
2.2.4 Conclusion . . . . . 58
2.3 Mécanisme de detection . . . . . 60
2.3.1 Le mécanisme photo-élastique . . . . . 61
2.3.2 La diffraction . . . . . 61
2.3.3 Le déplacement . . . . . 63
2.3.4 La plasmonique . . . . . 65
2.3.5 Conclusion . . . . . 73

**3 Les Boîtes Quantiques** **75**
3.1 Génération d'ondes acoustiques par des boîtes quantiques . . . . . 77
3.1.1 Expériences . . . . . 77
3.1.2 Génération par les boîtes . . . . . 82
3.1.3 Génération forte . . . . . 84
3.1.4 Synthèse . . . . . 86
3.2 Hautes fréquences . . . . . 87
3.2.1 Limitations et améliorations . . . . . 87
3.2.2 Modèle . . . . . 92
3.2.3 Ondes terahertz . . . . . 96
3.2.4 Un modèle très général . . . . . 99
3.3 Mécanisme de génération . . . . . 101
3.3.1 Génération par potentiel de déformation . . . . . 102
3.3.2 Capture des porteurs . . . . . 103
3.3.3 Boîtes quantiques ou couche de mouillage ? . . . . . 108

**Conclusion** **113**

**Bibliographie** **121**

**Annexes** **125**

# Introduction

Les ultrasons sont des ondes acoustiques de hautes fréquences. Ils peuvent être utilisés pour caractériser les propriétés mécaniques et structurelles des matériaux. Plus la fréquence des ondes acoustiques est élevée, plus l'onde est sensible aux changements de propriétés sur une petite échelle. De nombreuses méthodes de génération de ce type d'onde existent, notamment grâce à des films piézoélectriques. Néanmoins cette technique nécessite un contact avec l'échantillon, ce qui n'est pas toujours possible. L'utilisation de faisceaux laser permet également de générer des ondes acoustiques. De plus, ils permettent la génération sans contact. Le développement des lasers à impulsions courtes a permis d'encore augmenter la fréquence des ondes acoustiques générées. Aujourd'hui avec les lasers femtosecondes, il est possible d'atteindre des fréquences inédites, supérieures à la centaine de gigahertz.

En 1984, la technique acoustique picoseconde est mise au point. Elle permet de générer et de détecter les ondes acoustiques hautes fréquences et de les suivre temporellement. De nombreuses études ont permis de montrer l'étendue des possibilités de cette technique. La métrologie de film mince, la génération de solitons, l'étude de nanostructures sont autant de possibilités qu'offre l'acoustique picoseconde.

Néanmoins, de nouveaux défis restent encore à relever. De part sa nature l'acoustique picoseconde ne permet que la génération d'ondes longitudinales. La génération d'ondes transverses ou d'ondes possédant des propriétés mixtes est un de ces défis. Un second enjeu de l'acoustique picoseconde est de continuer à augmenter les fréquences des ondes acoustiques pour pouvoir sonder des structures toujours plus petites. Dans ce travail, nous nous sommes attachés à augmenter les fréquences des ondes acoustiques générées grâce à l'utilisation de nanostructures.

Le manuscrit est organisé comme suit. La première partie est consacrée à l'acoustique picoseconde. Cette technique permet la génération et la détection d'ondes acoustiques très hautes fréquences grâce à l'utilisation de source laser impulsionnelle. On s'intéressera alors aux mécanismes physiques responsables de la génération et de la détection des ondes acoustiques. Suite à cette description, on se penchera sur les limitations de cette technique, notamment l'impossibilité de générer des ondes non longitudinales ou des ondes avec des

fréquences de l'ordre du terahertz.

La deuxième partie concerne l'utilisation de nanostructures pour la transduction d'ondes non longitudinales. On y approfondit plus particulièrement trois points : la mise en évidence de la génération d'ondes non longitudinales grâce aux réseaux de nanostructures, l'utilisation de ces ondes pour réaliser des caractérisations mécaniques et enfin le mécanisme physique responsable de la détection de ces ondes.

Dans la troisième partie, on s'intéressera à la possibilité de générer des ondes acoustiques terahertz grâce à des boîtes quantiques semi-conductrices. On montrera que la génération d'ondes acoustiques par des boîtes quantiques est réalisable, mais également très efficace. Dans un second temps, le caractère haute fréquence des ondes générées sera étudié. Enfin, on se penchera sur le mécanisme responsable de la génération des ondes acoustiques.

# Chapitre 1

# L'Acoustique Picoseconde et ses Limitations

*La technique acoustique picoseconde est une technique optique permettant la génération et la détection d'ondes acoustiques haute fréquences. Elle se trouve au carrefour entre deux domaines, les ultrasons lasers et les expériences d'optique ultra-rapide pompe-sonde.*

*Dans un premier temps, un bref historique de l'acoustique picoseconde et son principe seront présentés. Ensuite, nous détaillerons les mécanismes physiques responsables de la génération et de la détection. L'accent sera mis sur deux types de génération, thermo-élastique et électronique. Le principe de la détection photo-élastique sera abordé. Finalement à partir de cette étude, nous constaterons que la technique acoustique picoseconde possède deux limitations intrinsèques importantes : il n'est possible de générer que des ondes longitudinales et le contenu fréquentiel de ces ondes se limite à quelques centaines de gigahertz.*

## 1.1 La technique acoustique picoseconde

### 1.1.1 Historique

En 1984, H.J. Maris et ses collaborateurs, à l'université de Brown, font une découverte inopinée en étudiant la réponse d'un film d'$As_2Te_3$ à une impulsion lumineuse. [62] Ils observent une structure périodique dans la transmitivité de l'échantillon en fonction du temps. Cette structure est attribuée à une impulsion acoustique qui se propage dans l'échantillon, la période correspondant au temps d'aller-retour de l'onde dans le film : $T = 2e/c$. Différents échantillons ayant des épaisseurs variables sont alors étudiées et la période évolue de la manière attendue.

Ainsi est créé un montage permettant à la fois la génération et la détection d'ondes acoustiques, dont les fréquences peuvent atteindre quelques centaines de gigahertz, dans des films très minces (de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de microns), ainsi que le suivi temporel de ces ondes. C'est la naissance de l'acoustique picoseconde, un outil de métrologie plein d'avenir. Cette technique fera d'ailleurs l'objet d'un brevet en 1987, qui sera exploité par la société Rudolph Technologies.

Dans les années 90, les montages d'acoustique picoseconde commencent à se répandre. Au Japon, O.B. Wright est le premier a développer un montage détectant la déflexion optique causée par l'impulsion acoustique. Ensuite, une expérience est montée à Paris, par B. Perrin et B. Bonello. La subtilité de cette expérience réside dans la détection interférométrique, permettant de suivre à la fois les variations d'amplitude et de phase de la réflectivité au cours du temps. L'expérience suivante est celle de l'IEMN, mis en place par A. Devos. Sa spécificité est son accordabilité, c'est-à-dire que la longueur d'onde de l'impulsion lumineuse est modifiée ouvrant la technique sur de nouveaux horizons, notamment les propriétés électroniques des échantillons.

Dorénavant, de nombreuses équipes exploitent la technique acoustique picoseconde à travers le monde : C.K. Sun à Taipei (NTU), K. Nelson dans le Massachusetts (MIT), A. Kent à l'université de Nottingham et bien d'autres encore.

Enfin dans les années 2000, une variante de la technique, utilisant non plus un, mais deux lasers est mise au point à la fois à l'université de Konstanz en Allemagne et à Bordeaux. Il est à noter que cette variante avait déjà été proposée par H.J. Maris dans son brevet de 1987.

### 1.1.2 Principe

Le principe de l'acoustique picoseconde réside dans l'utilisation d'une impulsion lumineuse pour générer des ondes acoustiques. Cependant, étant donné la rapidité des processus mis en jeu, il est impossible de pouvoir suivre temporellement ces ondes. Pour pallier à cette limitation, on va utiliser une détection stroboscopique. C'est le principe d'un montage pompe-sonde. Nous utilisons un laser impulsionnel, les impulsions durent une centaine de femtosecondes et le taux de répétition est de 80 MHz. Le faisceau lumineux est alors scindé en deux parties. La première sert à générer l'onde acoustique, elle est appelée pompe. La seconde peut être retardée temporellement grâce à une ligne à retard, on l'appelle la sonde. Il est ainsi possible de connaître avec une grande précision (∼13 fs) le retard qu'a la sonde sur la pompe. On peut alors suivre temporellement la réflexion du faisceau sonde par l'échantillon. Cette réflexion dépend de l'indice optique du matériau, et celui-ci est modifié par les ondes acoustiques. Ainsi nous pouvons avoir un suivi temporel des ondes acoustiques. Sur la figure 1.1, nous avons schématisé une expérience d'acoustique picoseconde.

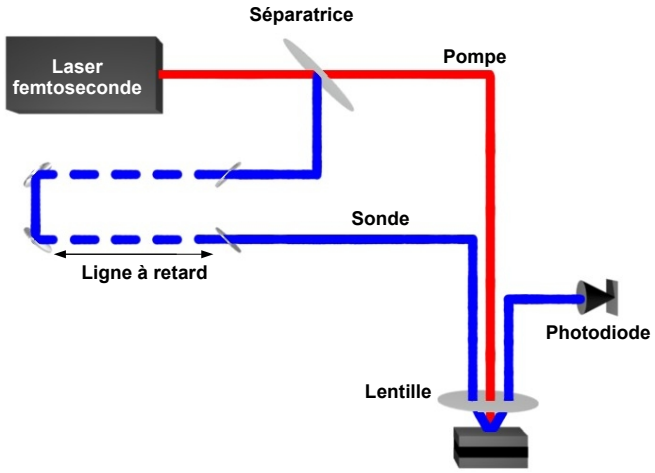


FIGURE *1.1: Représentation schématique d'une expérience d'acoustique picoseconde.*

Grâce à la technique acoustique picoseconde, on va être capable de suivre spatialement et temporellement les ondes acoustiques. Sur la figure 1.2, nous schématisons la propagation d'une onde acoustique. L'échantillon est constitué de trois couches (1, 2 et 3). La couche en surface (1) permet la génération de l'onde acoustique qui se propage ensuite dans la couche 2. Lorsqu'elle atteint l'interface 2/3, une partie de l'onde acoustique va être transmise et va se propager dans le milieu 3, l'autre partie est réfléchie et retourne vers le film 1. Lorsque l'onde acoustique réfléchie arrive dans le film 1, elle va modifier les

propriétés optiques du film et l'intensité réfléchie de la sonde.

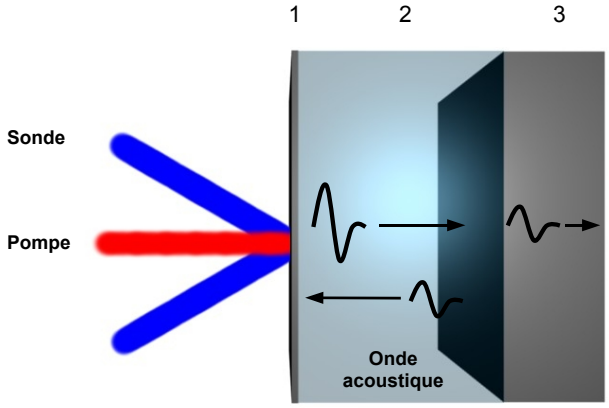


FIGURE *1.2: Propagation d'une onde acoustique dans un multi-couches.*

Les variations de réflectivité subies par la sonde sont très faibles ($\Delta R \ll R$). Pour être capable de détecter ces variations, on a recourt à la détection synchrone. Grâce à un modulateur acousto-optique, on va moduler le faisceau pompe (autour de 100 kHz). Les changements de réflectivité causés par l'impulsion acoustique générée par la pompe vont également être modulés. On va donc démoduler le faisceau sonde réfléchi pour obtenir les changements de réflectivité causés par l'onde acoustique.

La spécificité de l'expérience de l'IEMN est son accordabilité. L'avantage de la longueur d'onde est de pouvoir voir différents aspects des matériaux. En effet, les propriétés optiques des matériaux sont fonctions de la longueur d'onde, comme l'indice optique. Ainsi l'InP, qui est un semi-conducteur, est transparent à une longueur d'onde de 900 nm, alors qu'il est très absorbant à 400 nm. Les propriétés électroniques sont aussi liées à la longueur d'onde, les transitions nécessitent une énergie qui peut se situer dans le spectre du laser, ce qui a des effets dont nous parlerons plus tard.

Les expériences que nous venons de décrire, sont dites de réflectométrie. Il existe également des expériences d'interférométrie. Dans ces expériences, on place un interféromètre sur la sonde. [48, 26] Si l'on n'utilise qu'un seul bras de l'interféromètre, on obtient une expérience de réflectométrie, et si l'on utilise les deux bras, il va être possible de détecter les changements de phase qui sont reliés aux déplacements des interfaces.

Nous allons maintenant décrire les expériences mises au point à Bordeaux et à Konstanz et qui sont généralement décrites comme des expériences asynchrones. [6] L'idée est de se soustraire du bruit mécanique, ainsi que de la divergence des faisceaux engendrés par

la ligne à retard. Une représentation schématique du principe d'une expérience asynchrone est décrite sur la figure 1.3.

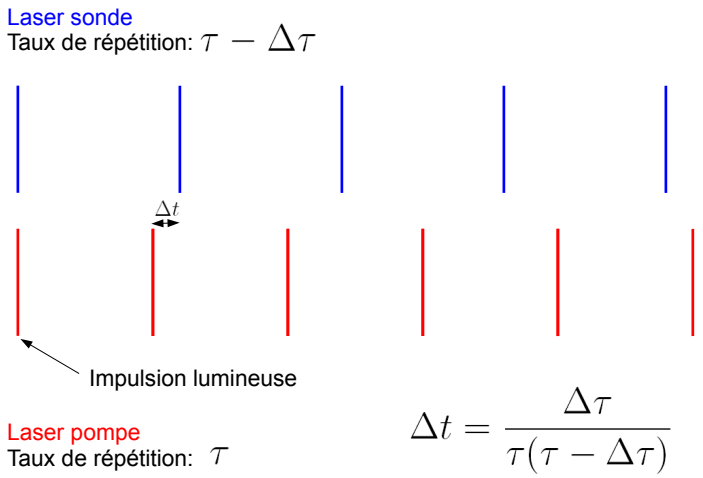


FIGURE *1.3: Principe des expériences asynchrones.*

On utilise deux lasers qui ont des taux de répétition très voisins $\Delta\tau \simeq 10\ kHz$. Si les premières impulsions issues de chaque lasers sont synchrones, les prochaines impulsions seront décalées de $\Delta t = \Delta\tau/\tau(\tau - \Delta\tau)$. Ainsi, à chaque nouvelle impulsion, le décalage temporel entre les deux lasers augmente, jusqu'à ce que les lasers soient de nouveau synchrones. On peut ainsi explorer tous les temps entre 0 et $1/\tau$. Le décalage temporel $\Delta t$ entre les impulsions, c'est-à-dire la résolution temporelle, dépend des taux de répétitions $\tau$ des lasers. Pour un laser avec un taux de répétition de 80 MHz et une différence des taux de 10 kHz, on obtient un décalage temporel de 1.5 ps alors que pour la même différence entre les taux, mais un taux de répétition de 1 GHz, on obtient un décalage temporel de 10 fs. En contrepartie, il n'est possible d'explorer que 1 ns avec un taux de répétition à 1 GHz, alors qu'on peut étudier 12.5 ns avec un taux de 80 MHz.

## 1.2 Génération

On s'intéresse maintenant aux mécanismes physiques responsables de la génération et de la détection d'ondes acoustiques. On présente les différents effets qui peuvent être responsables de la génération en fonction du type de matériau. On s'intéresse ensuite au principe de la détection photo-élastique, détection la plus courante en réflectométrie.

### 1.2.1 Contrainte thermo-élastique

Lors de l'absorption d'une impulsion lumineuse par un matériau, celui-ci s'échauffe. Cet échauffement est à l'origine d'une dilatation. Dans un premier temps, les processus microscopiques mis en jeu suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse seront présentés. La description d'un point de vue thermodynamique sera ensuite abordée et permettra de donner une expression analytique à cette contrainte thermo-élastique.

Nous allons décrire les différents processus mis en jeu lors de la génération d'une contrainte thermo-élastique. Nous allons prendre le cas d'un métal, où l'effet thermo-élastique est le mécanisme dominant de génération, comme indiqué sur la figure 1.4.

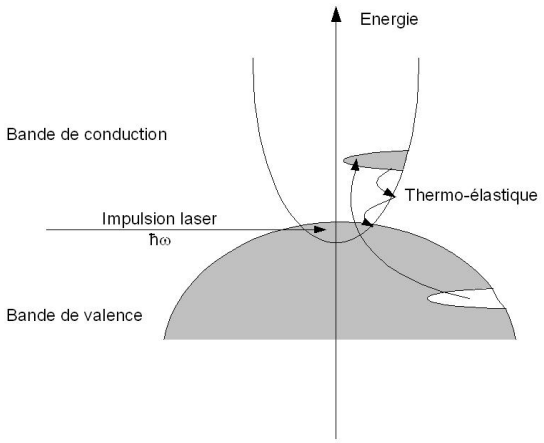


FIGURE *1.4: Dynamique des porteurs et mécanisme de génération des ondes acoustiques suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse dans un métal.*

Un photon incident, qui correspond à l'impulsion lumineuse, d'énergie $E = \hbar\omega$ est absorbé par le matériau. L'énergie absorbée va permettre aux électrons de passer dans des états excités. On obtient alors des porteurs hors équilibres avec des températures élevées. La température des porteurs est alors plus élevée que la température du réseau. Le système va alors évoluer vers l'équilibre, pour cela les porteurs doivent céder leur énergie, ce qu'ils font par interactions électrons-électrons puis électrons-phonons. Ce sont ces interactions électrons-phonons qui permettent aux porteurs de revenir dans un état de plus faible énergie, mais également la génération de phonons optiques et/ou acoustiques. C'est l'effet thermo-élastique. Cet effet est très rapide, de l'ordre de 100 fs.

Nous allons maintenant décrire l'effet thermo-élastique d'un point de vue macroscopique, ce qui permettra d'obtenir une expression analytique de la déformation.

Lorsque l'on expose la surface d'un échantillon à un faisceau lumineux, une partie

du faisceau pénètre dans l'échantillon, et une autre est réfléchie. Si la surface illuminée est $S$, l'énergie volumique déposée à la profondeur $z$ est :

$$W(z) = (1 - R)\frac{E}{S\zeta}e^{-\frac{z}{\zeta}} \tag{1.1}$$

où $R$ est la réflectivité optique de la surface de l'échantillon, $\zeta = 1/\alpha$ est la longueur d'absorption avec $\alpha$ le coefficient d'absorption et $E$ est l'énergie de l'impulsion lumineuse.

Cet apport d'énergie amène une augmentation de température, que l'on considère instantanée :

$$\Delta T(z) = \frac{W(z)}{C} = (1 - R)\frac{E}{S\zeta C}e^{-\frac{z}{\zeta}} \tag{1.2}$$

où $C$ est la capacité calorifique du milieu par unité de volume.

L'augmentation de température engendre un champ de contrainte :

$$\sigma_{ij}^{Th} = -\sum_{k,l} C_{ijkl}\beta_{kl}\Delta T(z) \tag{1.3}$$

où $C_{ijkl}$ représente les composantes du tenseur des constantes élastiques et $\beta_{kl}$ les composantes du tenseur de dilatation.

Dans notre cas, l'impulsion lumineuse possède un diamètre de l'ordre de quelques dizaines de microns, très grand devant l'épaisseur des matériaux ou les distances de propagation des ondes acoustiques. On considère que notre film est élastiquement isotrope, notre problème est unidimensionnel. La seule composante non nulle du tenseur des déformations est $\eta_{33}$ et on peut simplifier le champ de contraintes :

$$\sigma_{33}^{Th} = -\sum_{k,l} C_{33kl}\beta_{kl}\Delta T = -3B\beta\Delta T(z) \tag{1.4}$$

où $B$ est le module de compressibilité. Ce champ de contrainte donne naissance à une déformation élastique $\eta_{33}$ qui est reliée à la contrainte mécanique $\sigma_{33}^{M}$ grâce à la loi de Hooke :

$$\sigma_{33}^{M} = \rho V^2 \eta_{33} \tag{1.5}$$

où $V$ est la vitesse du son longitudinale et $\rho$ est la masse volumique. On obtient donc une contrainte totale

$$\sigma_{33} = \sigma_{33}^{Th} + \sigma_{33}^{M} = \rho V^2 \eta_{33} - 3B\beta\Delta T(z) \tag{1.6}$$

La relation fondamentale de la dynamique donne :

$$\rho\frac{\partial^2 u_3}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{33}}{\partial z} \tag{1.7}$$

où $u_3$ est le déplacement longitudinal avec

$$\eta_{33} = \frac{\partial u_3}{\partial z} \tag{1.8}$$

En combinant (1.6) et (1.7), on obtient l'équation de propagation :

$$\rho\frac{\partial^2 \eta_{33}}{\partial t^2} - \rho V^2\frac{\partial \eta_{33}}{\partial z} = -3B\beta\frac{\partial^2}{\partial z^2}\Delta T(z,t) \tag{1.9}$$

On considère que l'augmentation de température est instantanée, on approxime donc la variation de température par une fonction de Heaviside. On rappelle que le milieu est isotrope. Ainsi on peut résoudre l'équation 1.9 et on obtient :

$$\eta(z,t) = \frac{\gamma}{\alpha^2 V^2}[e^{-\alpha z}(1 - \frac{1}{2}e^{-\alpha V t} - \frac{1}{2}e^{-\alpha|z-Vt|}sgn(z-Vt)] \tag{1.10}$$

avec

$$\gamma = 3BC_{33}\beta(1-R)\frac{E}{CS\zeta}\frac{1}{\rho\zeta^2} \tag{1.11}$$

Dans l'expression (1.10), pour les temps longs, on voit apparaître deux termes. Le premier est une exponentielle décroissante à la surface de l'échantillon qui représente la déformation statique liée à l'échauffement. Le second terme correspond à l'impulsion acoustique qui se propage au sein de l'échantillon.

### 1.2.2 Contrainte électronique

Dans les semi-conducteurs, il existe une séparation énergétique, ou bande interdite, entre la bande de valence et la bande de conduction. Les différents processus qui régissent la génération d'ondes acoustiques dans les semi-conducteurs sont représentés sur la figure 1.5.

Pour qu'un photon soit absorbé par un semi-conducteur, il faut que son énergie $\hbar\omega$ soit supérieure à l'énergie entre le haut de la bande de valence et le bas de la bande de conduction $E_g$. Comme dans le cas des métaux, les porteurs vont céder leur énergie au réseau. Les porteurs vont ainsi relaxer jusqu'au bas de la bande de conduction. La grande différence par rapport au cas des métaux est qu'il existe une bande interdite. Les électrons vont pouvoir retourner dans la bande de valence grâce à une recombinaison radiative. Lors du passage des électrons de la bande de conduction à la bande de valence, il va y avoir émission d'un photon d'énergie $E = E_g$. Cette recombinaison radiative est lente

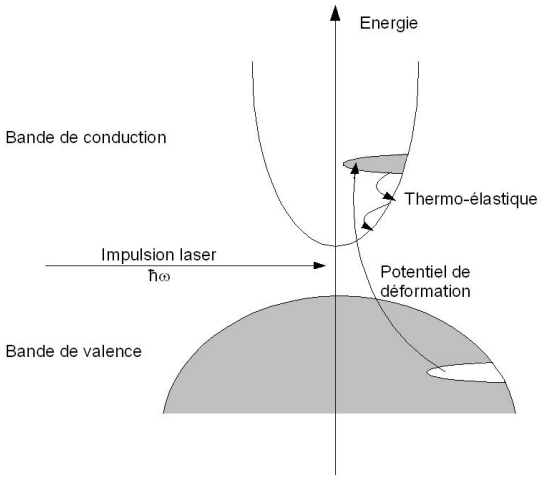


FIGURE *1.5: Dynamique des porteurs et mécanisme de génération des ondes acoustiques suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse dans un semi-conducteur.*

par rapport aux phénomènes que l'on a présenté précédemment. Le temps caractéristique d'une recombinaison radiative est de l'ordre de plusieurs nanosecondes. Les électrons se trouvent donc en bas de la bande de conduction pendant cet intervalle de temps et cela engendre des modifications du réseau. C'est la contrainte électronique.

On peut décrire brièvement ce phénomène de contrainte électronique en utilisant la méthode combinaison linéaire des orbitales atomiques (CLOA). Lorsque l'on combine plusieurs atomes, on obtient une molécule dont les niveaux d'énergie sont décrits par des orbitales moléculaires. Ces orbitales moléculaires peuvent être liantes ou anti-liantes. Lors de l'absorption d'une impulsion lumineuse, les électrons vont changer d'orbitales. Si l'électron excité se trouve sur une orbitale liante, le matériau se contracte, alors que si l'orbitale est anti-liante, le matériau se dilate.

La contraction ou la dilatation est mesurée par les potentiels de déformations. Les potentiels de déformation lient la contrainte aux porteurs. Ces potentiels de déformation dépendent de l'état dans lequel se trouve les porteurs. On peut ainsi avoir génération de phonon sous l'effet de l'excitation de porteurs, mais on peut également modifier la valeur de la bande interdite grâce à une déformation. Dans la référence, [1] A.V. Akimov *et. al.* détecte une onde acoustique qui passe à travers un puits quantique en utilisant un laser à une longueur d'onde équivalente à l'énergie de la bande interdite du puits quantique. Lorsque l'onde acoustique traverse le puits, la valeur de la bande interdite change et le faisceau laser est plus ou moins absorbé. Il est ainsi possible de détecter le passage de l'onde acoustique. L'amplitude de la contrainte est proportionnelle au nombre de porteurs excités, et dans le cas où les porteurs ont déjà relaxés au bord des bandes, c'est à dire

autour de la bande interdite $E_g$, on obtient une contrainte électronique :

$$\sigma_{33}^{El} = \frac{\partial E_g}{\partial \eta_{33}} n_c \tag{1.12}$$

Où $\frac{\partial E_g}{\partial \eta_{33}}$ est le potentiel de déformation autour de la bande interdite et $n_c$ est la densité de porteurs photo-excités.

La première observation de la génération d'une onde acoustique suite à une contrainte électronique, ou génération par potentiel de déformation a été réalisée en 1967 par W.B. Gaubster *et. al.* dans le silicium. [14] La génération de l'onde acoustique a lieu suite à l'illumination d'un échantillon de silicium par une impulsion laser nanoseconde. La détection se fait sur la face arrière de cet échantillon grâce à un système piézo-électrique. Les contributions thermo-élastique et électronique ont pu facilement être identifiées car l'excitation de paires électron-trou donne lieu à une compression, alors que l'échauffement mène à une dilatation dans le silicium.

### 1.2.3 Les autres contraintes

Dans la suite du manuscrit, nous nous restreindrons souvent aux contraintes thermo-élastique et électronique, car elles représentent le cas général de génération d'ondes acoustiques. Cependant dans certains matériaux d'autres mécanismes de génération peuvent avoir lieu.

Dans les cristaux non-centrosymétriques, l'application d'une déformation va polariser la matière. C'est l'effet piézo-électrique direct. L'effet piézo-électrique indirect est celui qui nous intéresse. Dans les matériaux piézo-électrique, le barycentre des charges positives et celui des charges négatives ne sont pas confondus, il existe un champ au sein de ce matériau. Sous l'effet d'une impulsion lumineuse, on va modifier la position des électrons et des trous, on aura donc une variation du champ électrique à l'origine d'une déformation.

La contrainte piézo-électrique $\sigma_{ij}^{piezo}$ est définie par l'écriture tensorielle : [38]

$$\sigma_{ij}^{piezo} = e_{ijk} E_i \tag{1.13}$$

Où $e_{ijk}$ est le module de piézo-électricité et $E_i$ les composantes du champ électrique. Les matériaux non-centrosymétriques sont rangés selon différentes classes de symétrie cristalline, suivant la classe, l'expression de la contrainte piézo-électrique peut être simplifiée.

D'autres contraintes peuvent être créées suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse comme une contrainte électrostrictive ou magnétostrictive. [18]

## 1.3 Détection

Quand une impulsion acoustique se propage dans un matériau, elle induit localement une variation des propriétés du matériau, notamment de l'indice optique. Ce changement des propriétés optiques va modifier la réflectivité du matériau, ce qui va nous permettre de détecter l'onde acoustique avec une impulsion lumineuse. Ce type de détection est appelé photo-élastique.

Le changement de réflectivité induit par l'onde acoustique est donné par :

$$\Delta R(t) = \int_{z=0}^{+\infty} f(z)\eta(z,t)dz, \tag{1.14}$$

où $\eta(z,t)$ est la déformation à la profondeur $z$ au temps $t$ et $f$ est la fonction de sensibilité. La fonction de sensibilité est spécifique à un matériau et est définie par :

$$f(z) = f_0[\frac{\partial n}{\partial \eta} sin(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi) + \frac{\partial k}{\partial \eta} cos(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi)]e^{-4\pi kz/\lambda}, \tag{1.15}$$

avec

$$f_0 = \frac{16\pi}{\lambda} \frac{[n^2(n^2+k^2-1)^2 + k^2(n^2+k^2+1)^2]^{1/2}}{[(n+1)^2+k^2]^2}, \tag{1.16}$$

et

$$tan\phi = \frac{k(n^2+k^2+1)}{n(n^2+k^2-1)}. \tag{1.17}$$

C'est le modèle de détection photo-élastique. [61]

### 1.3.1 Dans un milieu absorbant

Dans le cas d'un milieu absorbant, l'absorption optique $k$ est forte, la pénétration du faisceau lumineux est faible et par conséquent, on ne détecte l'onde acoustique que durant un temps très court. Si l'on prend l'exemple d'une couche de 100 nm de W sur substrat Si, le coefficient d'absorption du W à 750 nm ayant une valeur de 2.3, on obtient le signal de la figure 1.6.

Lorsque l'onde acoustique se rapproche de la surface, elle engendre une modification de l'indice optique et donc de la réflectivité. On détecte ces modifications et on les désigne par le terme écho (38, 76 et 114 ps). L'onde acoustique générée à la surface par un mécanisme thermo-élastique se propage dans la profondeur et est partiellement réfléchie

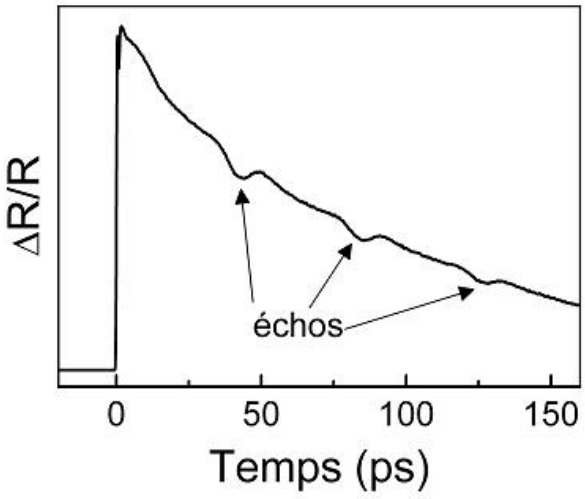


FIGURE *1.6: Changement de réflectivité obtenu sur une couche de 100 nm de W sur substrat Si à une longueur d'onde de pompe et de sonde de 750 nm*

à l'interface W/Si. Elle retourne alors à la surface et quand elle est suffisamment près de cette surface, les variations qu'elle engendre sont détectables.

On peut vérifier qu'il s'agit bien d'une onde acoustique en étudiant le temps de vol. Le temps d'arrivée du premier écho est de 38 ps, le film de W est épais de 100 nm. La vitesse de la contribution que l'on observe est donc de 2*100/38$\simeq$ 5.2 nm.ps$^{-1}$, qui est très proche de la vitesse des ondes acoustiques longitudinales dans le W.

### 1.3.2 Dans un milieu transparent

Dans le cas des milieux transparents, les signaux observés vont être différents. Comme l'impulsion lumineuse pénètre beaucoup plus profondément dans le matériau, les modifications engendrées par l'onde acoustique sont détectées pendant des temps plus longs. De plus, l'onde acoustique agit comme une interface pour l'impulsion lumineuse. Une partie de l'impulsion lumineuse qui pénètre dans le matériau va être réfléchie par l'onde acoustique. On va donc avoir une réflexion par l'onde acoustique et une autre par les interfaces de l'échantillon, comme schématisé sur la figure 1.7.

Ces deux réflexions qui interfèrent sont observées sur nos signaux. Si l'interférence est constructive, on a une augmentation de la réflectivité, par contre si les deux faisceaux interfèrent de manière destructive, on a une diminution de la réflectivité. Comme l'onde acoustique se déplace, on va enchaîner les interférences constructives et destructives et on observe des oscillations comme sur la figure 1.8(a). Ce sont les oscillations Brillouin.

Nous avons obtenu ce signal en réalisant des expériences sur un échantillon compor-

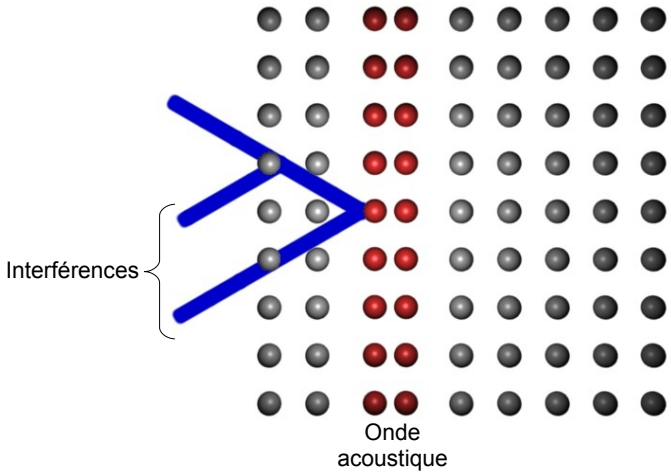


FIGURE *1.7: Détection dans les cas d'un milieu transparent. La réflexion à la surface et la réflexion par l'onde acoustiques interférent.*

tant une couche d'aluminium de 100 nm sur un substrat de $SiO_2$ de 4 mm. L'expérience est réalisée à travers la couche de $SiO_2$, comme indiqué sur la figure 1.8(b). La longueur d'onde de pompe est 800 nm et celle de sonde 400 nm. La génération est réalisée dans le film d'Al par mécanisme thermo-élastique. Comme la silice est un matériau transparent, on considère que le coefficient d'absorption $k$ est quasi-nul et on peut simplifier l'équation (1.15) par :

$$f(z) = f_0[\frac{\partial n}{\partial \eta} sin(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi) + \frac{\partial k}{\partial \eta} cos(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi)] \tag{1.18}$$

On a donc une fonction de sensibilité qui a une période en z, $T = \lambda/2n$. Si on a une onde qui se déplace à la vitesse v, le signal temporel aura alors une période $T = \lambda/2nv$=22 ps pour $SiO_2$ à 400 nm, ce qui correspond à ce que l'on observe expérimentalement. Grâce à cette formule, il est possible de mesurer la vitesse des ondes longitudinales en supposant l'indice.

## 1.4 Limitations

Nous venons de voir que la technique acoustique picoseconde permet la génération et la détection d'ondes acoustiques dont la fréquence se situe autour de quelques centaines de GHz. Néanmoins, il existe quand même des limitations. Dans cette partie nous allons détailler deux des limitations de cette technique : la génération d'ondes très hautes fréquences et d'ondes non-longitudinales. Nous verrons les solutions proposées pour pallier

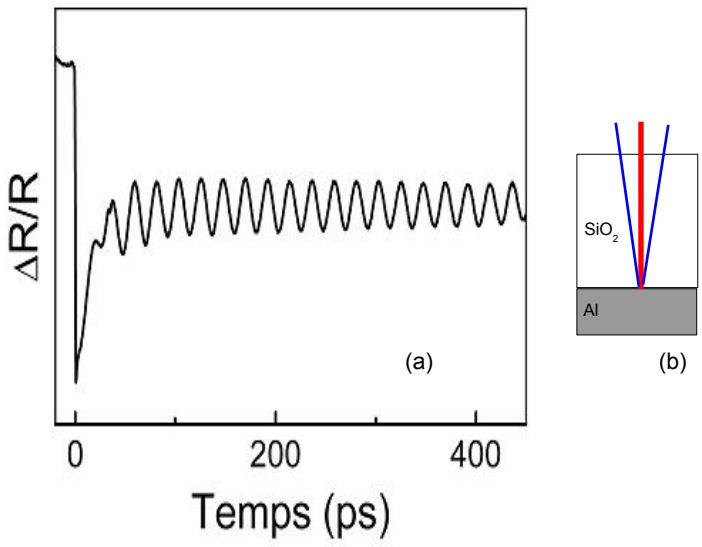


FIGURE *1.8: (a) Changement de réflectivité obtenu sur un échantillon constitué d'un film d'Al de 100 nm sur substrat silice à une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de sonde de 400 nm. (b) Représentation schématique de l'expérience.*

à ces limitations.

### 1.4.1 Les très hautes fréquences

L'impulsion acoustique étant proportionnelle à $e^{-|z-Vt|/\zeta}$, son spectre fréquentiel est proportionnel à :

$$\frac{\omega}{\omega^2 + (\frac{V}{\zeta})^2} \tag{1.19}$$

Le maximum est atteint à la fréquence $V/\zeta$. Dans le cas des métaux, $\zeta$ est compris entre 10 et 30 nm et la vitesse varie de 3 à 5 $nm.ps^{-1}$. Ce qui donne une fréquence comprise entre 100 et 500 GHz. Cependant, ce calcul néglige un phénomène qui contribue de manière importante à la diminution du contenu fréquentiel de l'onde acoustique : la diffusion des porteurs. En effet, nous avons vu que, dans le cas d'une contrainte thermo-élastique ou électronique, les porteurs jouent un rôle dans la génération. Or nous avons considéré que les porteurs sont générés dans la zone illuminée, c'est-à-dire pour une profondeur dans l'échantillon de l'ordre de $\zeta$. En réalité, les porteurs ne sont pas immobiles. La zone de génération est donc bien plus importante.

Le contenu fréquentiel des ondes acoustiques générées, bien qu'il soit tout de même élevé, se situe à la frontière d'une gamme de fréquence très intéressante : le terahertz. Les ondes acoustiques de cette gamme de fréquences possèdent des longueurs d'onde de

quelques nanomètres et vont permettre de sonder des structures très fines où d'autres phénomènes physiques sont mis en jeu (structures quantiques).

**L'aluminium**

Le transducteur le plus utilisé en acoustique picoseconde est le film mince métallique. Nous avons vu qu'à cause de la longueur de pénétration de la lumière, de la vitesse des ondes acoustiques et de la diffusion des porteurs, le contenu fréquentiel des ondes générées est limité. En réduisant la taille du film mince, on diminue artificiellement la longueur d'absorption, ainsi que la diffusion des porteurs, on peut ainsi enrichir le spectre de l'impulsion acoustique.

Les oscillations Brillouin sont une des manières de détecter les ondes acoustiques. La période des oscillations nous renseigne sur le contenu fréquentiel de l'onde acoustique. La période des oscillations est donnée par :

$$f = \frac{2nv}{\lambda} \tag{1.20}$$

Pour détecter des ondes hautes fréquences grâce aux oscillations Brillouin, il faut choisir un matériau dont l'indice et la vitesse sont suffisamment élevés. De plus, il faut que ce matériau n'ait pas un coefficient d'absorption trop fort. Le silicium est un bon exemple. Il a une vitesse relativement élevée, 8.45 nm.ps$^{-1}$ et son indice à 400 nm est 5.7. On va donc être capable grâce au silicium de détecter des composantes fréquentielles autour de 250 GHz. Pour illustrer ce propos, nous avons réalisé une expérience, visible sur la figure 1.9, sur un échantillon comportant un film de 12 nm d'Al sur une couche de 400 nm d'AlN sur substrat Si.

Sur ce signal, on observe tout d'abord un pic très abrupte qui correspond à la réponse des porteurs photo-excités. Ensuite, juste après ce pic et jusque 40 ps, les oscillations Brillouin de l'AlN sont détectées. Finalement, on observe les oscillations Brillouin qui proviennent de la propagation de l'onde acoustique dans le Si. La période de ces oscillations est de 4.2 ps, ce qui correspond à une fréquence de 240 GHz. On peut ainsi confirmer que l'onde acoustique générée par le film de 12 nm d'aluminium possède des composantes fréquentielles jusque 240 GHz. En utilisant ce principe, il a été possible de réaliser des mesures jusque 320 GHz.

Cependant, la réduction de l'épaisseur du film transducteur a des limites. En réduisant l'épaisseur, le film perd ses qualités métalliques. Il n'est donc pas possible d'atteindre le terahertz grâce à la réduction de taille du film transducteur.

**Les solitons**

Il existe néanmoins des possibilités pour atteindre des fréquences de l'ordre du terahertz. L'une d'elles consiste en la génération de solitons.

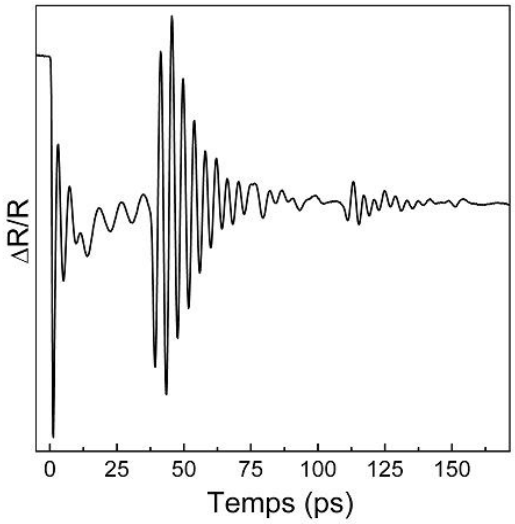


FIGURE *1.9: Changement de réflectivité obtenu sur un échantillon constitué d'un film d'Al de 12 nm sur une couche d'AlN de 400 nm sur substrat Si à une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de sonde de 400 nm*

Les solitons, ou ondes solitaires, permettent d'atteindre des fréquences très élevées, au-delà du terahertz grâce aux effets non-linéaires lors de la propagation de l'onde acoustique.

Nous avons étudié précédemment la génération d'onde acoustique, nous nous intéressons maintenant à la propagation dans un milieu cristallin. Lorsque la distance parcourue par l'onde acoustique est importante, il faut prendre en compte différents phénomènes physiques pour étudier la propagation : la dispersion, l'absorption et la non-linéarité. Chacun de ses phénomènes va modifier l'onde acoustique. L'absorption correspond à une perte d'amplitude de l'onde acoustique sous l'effet de la viscosité. Sous l'effet de la dispersion, les différentes composantes fréquentielles de l'onde acoustique ne se déplacent pas à la même vitesse. Enfin, si l'onde acoustique possède une amplitude suffisamment importante, des effets non-linéaires jouent un rôle. Sous l'effet de la non-linéarité, le maximum de l'impulsion acoustique se propage plus rapidement que le reste de l'impulsion.

L'équation de propagation qui prend en compte la dispersion et la non-linéarité est appelé équation Korteweg-de Vries : [73]

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} + \beta \frac{\partial^3 \eta}{\partial z^3} + \frac{C_3}{2 c_0 \rho_0} \frac{\partial}{\partial z} (\eta \frac{\partial \eta}{\partial z}) = 0 \tag{1.21}$$

où $\eta$ est la contrainte, $\beta$ est le coefficient de dilatation, $C_3$ est la constante non-linéaire, $c_0$ est la vitesse des ondes longitudinales et $\rho$ est la masse volumique. Les solutions

de cette équation sont appelées solitons. Un soliton, ou onde solitaire, est une onde qui se propage sans se déformer. La première observation de soliton en acoustique picoseconde a été réalisée par H.J. Maris dans Si, MgO le quartz et le saphir. [19, 60]

P.J.S. van Capel *et. al.* ont calculé la déformation générée par un film de Cr en fonction de la température, c'est-à-dire en prenant en compte l'atténuation, pour une densité de puissance de pompe de 9.7 mJ.cm$^{-2}$ suite à la traversée d'un film de 307 $\mu$m d'$Al_2O_3$. [64] Nous avons reproduit ces résultats sur la figure 1.10

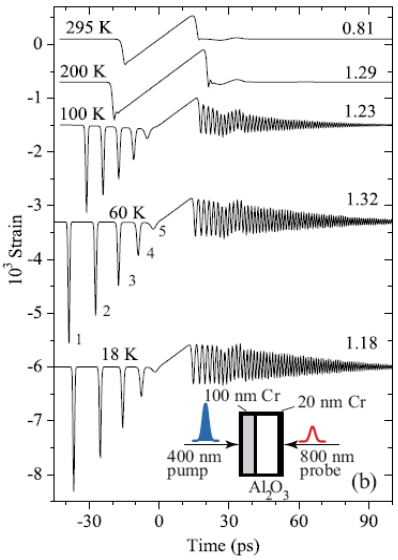


FIGURE *1.10: Forme de la déformation acoustique après la traversée d'un substrat d'$Al_2O_3$ en fonction de la température. Extrait de [64]*

Si nous nous intéressons uniquement à la déformation obtenue à 18 K, on remarque à partir de t=15 ps jusque 100 ps, une succession d'oscillations. Ces oscillations sont issues de la dispersion, les composantes basse fréquence se déplaçant plus vite que les hautes fréquences, elles traversent plus rapidement le film. On observe cinq pics entre t=-35 et 0 ps. Ces pics sont des solitons. Il est à noter que les solitons sont très courts, donc très hauts en fréquence.

La largeur et la vitesse du soliton sont entièrement déterminées par la déformation initiale, en appliquant une déformation adéquate, on va pouvoir obtenir des solitons très hautes fréquences. Par exemple, dans MgO, pour une déformation initiale $\eta$=8.10$^{-3}$, la largeur à mi-hauteur temporelle théorique du soliton est 120 fs. [73] Dans la référence [64], P.J.S. van Capel *et. al.* ont été capables de détecter des solitons avec une largeur temporelle de 200 fs dans $Al_2O_3$. La déformation initiale générée par le film de Cr est centrée autour de quelques centaines de GHz, après propagation, on obtient des solitons avec des fréquences dépassant le terahertz. Grâce aux effets non-linéaires, on a un enrichissement des hautes fréquences.

### Les super-réseaux

La dernière proposition pour obtenir des hautes fréquences que nous allons présenter est l'utilisation des super-réseaux.

Les super-réseaux ont été étudiés de manière intensive durant ces vingt dernières années. [72, 42, 7, 29] Mais, à nouveau, c'est H.J. Maris le premier à s'être intéressé à cette thématique. [17, 10] L'intérêt des super-réseaux réside dans la structuration de l'échantillon. Un super-réseau est composé d'une succession de bi-couches. On a alors une périodisation de l'échantillon, on peut donc se limiter à l'étude de la relation de dispersion des phonons acoustiques dans la première zone de Brillouin.

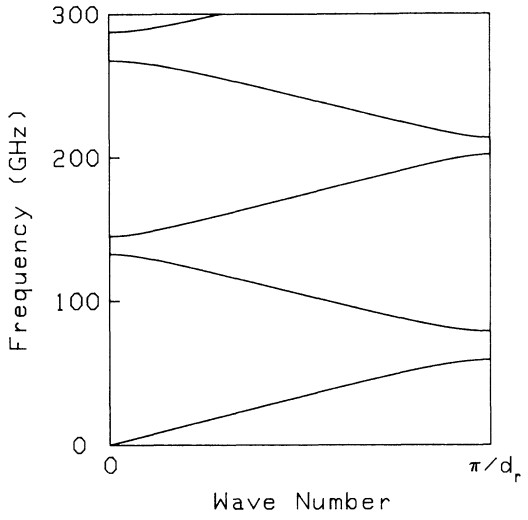


FIGURE *1.11: Relation de dispersion des phonons acoustiques longitudinaux d'un super-réseau Si/Ge.Extrait de [17].*

Comme on peut le voir sur la figure 1.11, la relation de dispersion se replie dans la première zone de Brillouin, ce qui va permettre de générer des ondes acoustiques des branches supérieures avec une fréquence élevée. De plus, cette onde est monochromatique. En choisissant judicieusement la période du super-réseau, il est possible d'atteindre des fréquences au-delà du THz.

Les super-réseaux peuvent également être utilisés pour détecter des ondes acoustiques. Néanmoins, il existe une règle de sélectivité des fréquences détectables. En utilisant un super-réseau pour la détection, on ne pourra détecter que les phonons de vecteur d'onde $q = 2k$, où $k$ est le vecteur d'onde de la sonde dans le super-réseau. Dans l'étude menée par A. Huynh *et. al.*, [28] un film d'aluminium est utilisé pour la génération. Après la traversée du substrat de GaAs, l'onde acoustique est détectée par le super-réseau. La transformée de Fourier du signal détecté par le super-réseau est présentée sur la figure 1.12.

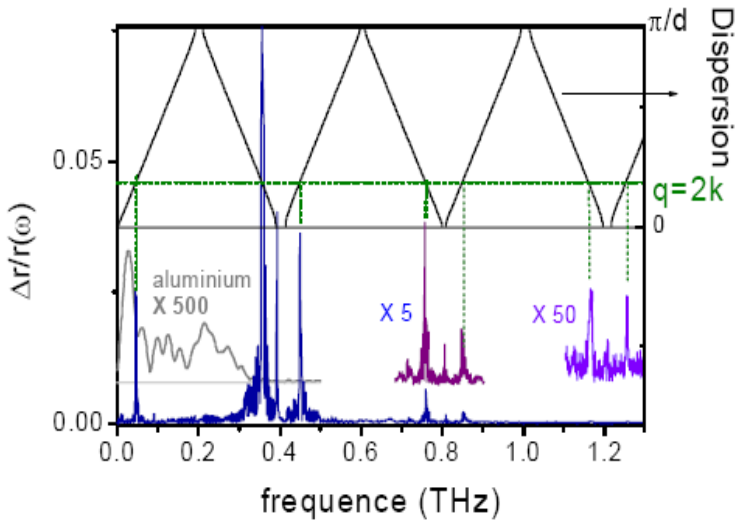


FIGURE *1.12: Transformée de Fourier du signal détecté par un super-réseau après la traversée d'un substrat de GaAs. Extrait de [28].*

Ces expériences sont réalisées à basse température (15 K), ce qui permet d'avoir une faible atténuation des hautes fréquences de l'onde acoustique. De plus, comme l'épaisseur du substrat et la déformation sont importantes, l'équation Korteweg-de Vries s'applique, et on a un enrichissement des hautes fréquences. Ainsi, la détection dans le super-réseau permet de détecter les composantes fréquentielles qui vérifient $q = 2k$. De cette manière, il est possible de détecter des contributions à 1.2 THz.

### 1.4.2 Les ondes transverses

Une autre des limitations de l'acoustique picoseconde est l'impossibilité de générer d'autres ondes que des ondes longitudinales. Cette technique permet de mesurer les propriétés mécaniques de films minces, réussir à générer des ondes non longitudinales pourrait enrichir grandement les possibilités métrologiques. Par exemple, la mesure de la vitesse transverse, combinée à la mesure de la vitesse longitudinale permet le calcul du module de Young et du coefficient de Poisson.

Lorsque nous avons présenté la contrainte thermo-élastique, nous avons vu que la génération peut être considérée comme unidimensionnelle et que seules des ondes acoustiques longitudinales peuvent se propager, c'est l'approximation en champ proche. La technique acoustique picoseconde pourrait être grandement améliorée s'il était possible de générer d'autres ondes.

La limite de validité de l'approximation en champ proche est donnée par :

$$Z_p = \frac{a^2}{\zeta} \tag{1.22}$$

où $a$ est le diamètre de la tache lumineuse au niveau de la surface de l'échantillon, $\zeta$ est la longueur d'absorption et $Z_p$ est la longueur de propagation. Dans notre cas, $a$ vaut à peu près 20 $\mu$m, $\zeta$ est de l'ordre de 10 nm, ce qui donne un rapport de quelques centimètres. Les distances de propagation dans nos échantillons sont plutôt de l'ordre de quelques micromètres, justifiant la validité de l'approximation. Nous ne pouvons générer que des ondes longitudinales.

#### Focalisation extrême

Nous avons vu précédemment que la génération d'ondes autres que longitudinales est impossible dans un montage classique. Cela est causé par la différence d'échelle entre le diamètre du faisceau, la longueur d'absorption et la longueur de propagation des ondes. Pour obtenir des ondes transverses, on peut agir sur la taille du faisceau. En réduisant la taille du faisceau à quelques micromètres, l'approximation en champ proche n'est plus valable puisque le rapport entre la tache du faisceau et la longueur d'absorption est du même ordre que la longueur de propagation.

Cette étude a été menée par C. Rossignol *et. al.*. [56] L'idée est d'étudier la possibilité de générer des ondes transverses en réduisant la taille du faisceau laser focalisé. Un modèle théorique permettant de prédire les variations de génération causées par la réduction de taille du faisceau laser sur des films d'aluminium est décrit. Grâce à ce modèle, il est possible de déterminer trois types de contributions au signal : les ondes longitudinales et transverses directement générées par effet thermo-élastique, mais également des ondes transverses issues de la conversion de mode à la réflexion. Lorsqu'une onde acoustique est réfléchie à une interface entre deux matériaux ayant des impédances acoustiques différentes et que l'angle d'incidence de l'onde n'est pas normal à cette interface, on peut avoir une conversion de modes. Ainsi quand une onde longitudinale arrive à une interface avec un angle, une onde transverse peut être créée. Une fois ce modèle présenté des expériences interférométriques, donc sensibles au déplacement, sont réalisées. Des films d'aluminium de 540 et 900 nm sont déposés sur du polyester. Le choix du polyester permet d'avoir un contraste acoustique fort et ainsi une bonne réflexion. Nous avons reproduit sur la figure 1.13 les signaux présentés dans cet article.

Expérimentalement, toutes les contributions prédites théoriquement sont présentes. Avec une focalisation faible, on n'observe que des échos issues des ondes longitudinales (L). Quand la focalisation devient plus forte, des contributions provenant des ondes transverses générées thermo-élastiquement apparaissent (T). On retrouve également entre les échos des ondes longitudinales, des échos qui sont temporellement plus long et dont l'amplitude

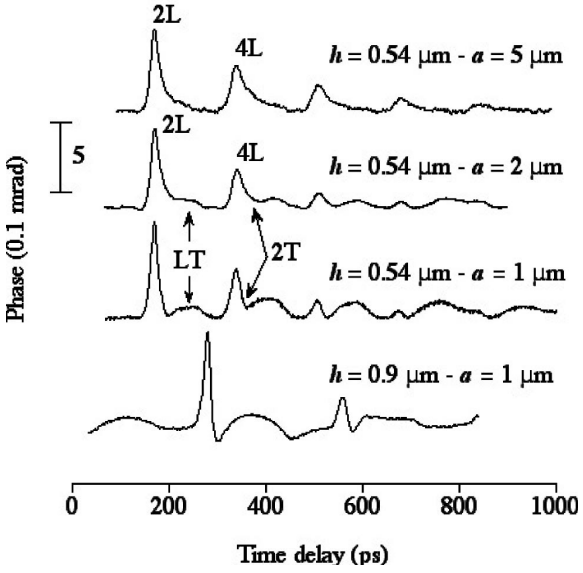


FIGURE *1.13: Signal obtenu par détection interférométrique sur un film d'aluminium sur polyester en fonction de la focalisation. Extrait de [56]*

grandit avec le temps. Ces contributions proviennent de conversion de mode lors des réflexions multiples. Chaque contribution est identifiée grâce au modèle théorique et aux temps de vol.

Il a été montré expérimentalement qu'en sortant des conditions de validité de l'approximation en champ proche, il est possible de générer des ondes acoustiques transverses.

### Anisotropie

Une autre manière de générer des ondes transverses est de profiter de l'anisotropie des matériaux. La première démonstration de la génération d'ondes transverses en acoustique picoseconde en utilisant l'anisotropie des matériaux a été réalisée par D.H. Hurley *et. al.*. [25] Lorsque l'onde acoustique longitudinale se propage et atteint en incidence normale une interface, elle va être en partie réfléchie et l'autre partie transmise. Ce schéma apparaît quand les matériaux de part et d'autre de l'interface sont élastiquement isotropes. Dans le cas d'un film isotrope sur matériau anisotrope, il va y avoir une conversion de modes lors de la réflexion. L'expérience mise en place par D.H. Hurley *et. al.* est une expérience de réflectométrie. L'incidence des faisceau est à 45° afin d'être sensible à d'éventuelles ondes transverses. Deux échantillons sont étudiés, sur le premier, on dépose une couche d'épaisseur $d$ =975 nm d'Al sur un substrat Si, l'autre échantillon comporte la même couche d'Al mais sur un substrat Zn (anisotrope) orientée à 34°. Sur la figure 1.14, nous reportons les signaux obtenus sur les deux échantillons avec une pompe centrée à 830 nm et une sonde doublée (415 nm)

Sur ces deux signaux, on observe des échos à t=305 et 610 ps. Si ces ondes

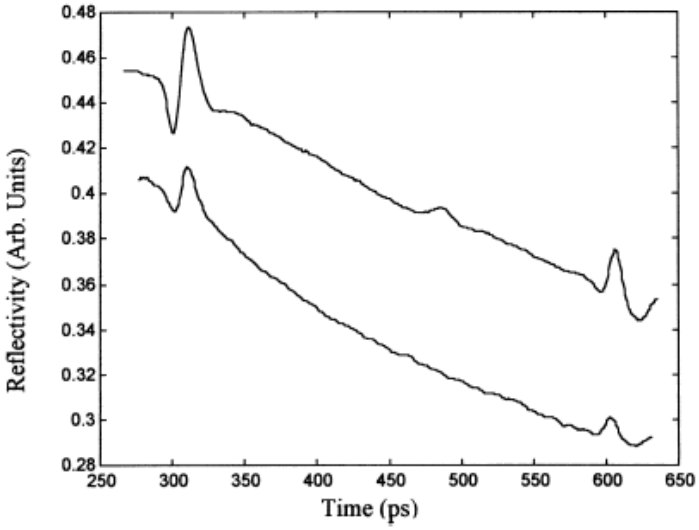


FIGURE *1.14: Changements de réflectivité obtenus sur des échantillons comportant une couche de 975 nm d'Al sur substrat Si ou Zn. Extrait de [25]*

ont fait un aller retour dans la couche d'Al, on obtient une vitesse des ondes de 2*975/305≃6.4 nm.ps$^{-1}$, proche de celle des ondes acoustiques longitudinales dans l'Al. Sur l'échantillon ayant un substrat Zn, on observe un autre écho à t=470 ps. Cet écho est attribué à une onde transverse issue de la réflexion à l'interface Al/Zn, ce temps d'arrivée de l'écho doit correspondre à la traversée de la couche d'Al par une onde longitudinale puis un retour à la surface par une onde transverse :

$$t = \frac{d}{v_l} + \frac{d}{v_t} \tag{1.23}$$

De cette manière, on obtient une vitesse $v_t$=3.1 nm.ps$^{-1}$, très proche de la vitesse des ondes transverses dans Al. Grâce à la conversion de modes, il a été possible de générer des ondes transverses. La génération d'ondes transverses directement dans un substrat anisotrope a également été réalisée. [41]

#### Nanostructures

La dernière manière d'exciter des ondes autres que longitudinales que nous allons étudier est réalisée par le biais de réseaux de nanostructures. Beaucoup d'équipes d'acoustique picoseconde s'intéressent à ce sujet. [53, 34, 16, 59, 9, 24] La raison pour laquelle ce sujet est aussi attractif est qu'il se trouve à la croisée de différents domaines. On peut par exemple travailler sur les propriétés d'une nanostructure ou sur les effets de la mise en réseau de ces nanostructures. Un réseau de nanostructures peut également être vu comme un cristal phononique, c'est-à-dire un cristal dont les propriétés acoustiques sont modulées périodiquement. Mais il est aussi un cristal photonique et de tels réseaux sont

également utilisés dans le domaine de la plasmonique.

L'utilisation de nanostructures organisées à la surface d'un échantillon a une influence sur la génération. En périodisant la surface, on va également périodiser le profil de température. On va donc avoir, dans le plan, des zones à une température plus élevée que d'autres. L'inhomogénéité de la température à la surface permet la génération d'ondes de surface. Les ondes de surface sont en général complexes, dans le sens où elles sont un mélange entre des ondes transverses et des ondes longitudinales.

L'avantage de cette technique est qu'elle permet de maîtriser la génération, et notamment le contenu fréquentiel. La période de l'organisation de nanostructures fixe la période de l'excitation et donc la longueur d'onde de l'onde de surface. En réduisant la période, on est capable de générer des ondes de surface très hautes fréquences.

Chronologiquement, les études de nanostructures ont débutées sur des lignes de quelques centaines de nanomètres de largeur pour plusieurs microns de longueur. [34] L'une des grandes difficultés de ces échantillons a été de faire la différence entre vibrations, individuelles ou collectives, et génération d'ondes de surface. Antonelli *et. al.* propose alors d'utiliser un réseau de diffraction proche de la surface plutôt que des lignes pour soustraire toutes les vibrations. [3] La difficulté à découpler entre ondes de surface et vibrations nous a amené à travailler avec des plots plutôt que des lignes.

### Synthèse

*Après un bref historique, nous avons étudié les mécanismes de génération et de détection dans les métaux et les semi-conducteurs. L'étude de ces mécanismes de génération et de détection a permis de discerner les limites de l'acoustique picoseconde : on ne peut pas générer des ondes autres que longitudinales, ni des ondes dont les fréquences sont très élevées.*

*Nous avons ensuite réalisé une étude des différentes propositions qui ont été faites pour outrepasser ces deux limitations.*

*Dans la suite de ce manuscrit, nous présentons notre approche pour dépasser ces limitations, plutôt que de modifier la technique, nous avons réalisé un travail sur les échantillons. Deux grandes voies ont été étudiées : la nanostructuration de la surface pour la génération d'ondes acoustiques non longitudinales et l'utilisation de boîtes quantiques pour la génération d'ondes acoustiques très hautes fréquences.*

# Chapitre 2

# Réseaux de Nanostructures

*L'acoustique picoseconde est une technique optique qui permet la génération et la détection d'ondes acoustiques hautes fréquences. Dans le cas de figure le plus fréquent, c'est-à-dire quand on utilise un film mince métallique comme transducteur et que le faisceau pompe focalisé mesure quelques dizaines de microns, on ne peut générer que des ondes acoustiques longitudinales, [61] c'est l'approximation en champ proche.*

*Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il existe différentes manières de contourner cet obstacle : la focalisation extrême du faisceau permet de sortir des limites de validité de l'approximation en champ proche. [56] L'utilisation d'un matériau dont l'axe de croissance n'est pas parallèle à la normale du substrat, comme le zinc sur la silice, permet également la génération d'ondes transverses. [49] Enfin, une autre possibilité, que nous allons étudier dans la suite, est la nanostructuration de la surface de l'échantillon qui va permettre de modifier le profil de l'excitation.*

*La génération d'ondes acoustiques dans les métaux se fait par effet thermo-élastique. Lors de l'illumination du métal, une quantité de chaleur est déposée, élevant la température au sein du matériau, une contrainte proportionnelle à cette élévation de température est alors créée. En réalisant un réseau périodique à la surface de l'échantillon, de lignes [9] ou de cubes, [53] le profil de température au sein de l'échantillon possède la même périodicité que le réseau, ce qui va permettre la génération d'ondes acoustiques de surface.*

*Le point de départ de cette étude était d'étudier les modes de vibrations de nanocubes et d'observer d'éventuels effets de la mise en réseau des nanostructures. Les vibrations des nanocubes ont été étudiées durant la thèse de Jean-François Robillard. [54] Nous ne discuterons donc que des effets collectifs.*

*Dans un premier temps, on s'attache à montrer le caractère collectif des vibrations que l'on observe. On présente d'abord les expériences qui permettent de connaître les conditions expérimentales nécessaires à la détection de ces vibrations. Puis on étudie plus finement l'in-*

*fluence des différents paramètres géométriques des réseaux, on en conclut qu'il s'agit d'une vibration collective des nanostructures. Ces vibrations entraînent la génération d'ondes de surface. Finalement on présente un modèle analytique qui permet de comprendre l'origine des vibrations et d'extraire la vitesse des ondes de surface.*

*La deuxième partie est consacrée à la mesure des propriétés mécaniques. Grâce à la vitesse qu'on extrait du modèle, on montre qu'il est possible de réaliser une caractérisation mécanique complète, c'est à dire obtenir le module de Young et le coefficient de Poisson, dans des films minces. On compare ensuite cette technique à la nanoindentation, qui permet également la mesure de propriétés mécaniques. Finalement, on regarde le comportement de cette technique, et donc des propriétés mécaniques, en fonction de la température.*

*La dernière partie se penche sur le mécanisme de détection de ces vibrations collectives. On passe en revue les différents mécanismes proposés dans la littérature, en essayant d'apporter un regard critique sur chaque proposition. Le lien entre les ondes de surface et la plasmonique est également abordé.*

# 2.1 Génération d'ondes acoustiques de surface par des nanostructures

La nanostructuration est sensée permettre la génération d'ondes de surface qui permettrait d'enrichir grandement la technique acoustique picoseconde.

Tout d'abord, la technique de fabrication et les diverses expériences qui ont été réalisées seront présentées. A partir de ces expériences, la nature collective des signaux sera démontrée en réalisant une étude sur les différents paramètres des réseaux. Finalement, un modèle analytique capable de prédire les fréquences des vibrations selon les paramètres géométriques du réseau sera présenté.

## 2.1.1 Présentation des échantillons et des signaux

### Fabrication

L'ensemble du processus de fabrication des échantillons a été réalisé au sein de la centrale de technologie de l'IEMN. La fabrication des échantillons est réalisée sur une couche de $SiO_2$ sur substrat Si. Dans un premier temps, on dépose une couche d'aluminium, dont l'épaisseur peut varier, sur cette couche de $SiO_2$ ; C'est sur cette couche d'aluminium que seront déposées les nanostructures, elle permet le couplage mécanique entre les cubes et le reste de l'échantillon. Afin de réaliser ces nanostructures, la lithographie électronique est utilisée. Pour cela, on a recours à une résine photosensible positive. Cela signifie que l'irradiation de cette résine la désagrège. On va donc venir irradier avec le faisceau d'électrons les zones où l'on souhaite avoir nos cubes. On réalise alors la révélation qui sert à enlever la résine irradiée. Ensuite, un deuxième dépôt d'aluminium est effectué, cette fois de 200 nm. Pour finir, la dernière étape du processus est le "lift-off" qui permet d'enlever le reste de résine et ainsi ne plus avoir que les plots métalliques. L'utilisation de la lithographie électronique permet d'obtenir une très grande résolution ($\sim$10 nm), mais également d'avoir une très faible dispersion sur la taille des motifs. Sur la figure 2.1, nous avons schématisé la structure de l'échantillon.

Par cette méthode, nous obtenons des réseaux à 2 dimensions de nanostructures organisés. Les réseaux sont carrés avec des périodes $a$ qui varient de 400 à 1400 nm. La taille des plots peut également varier de 50 à 200 nm.

### Expériences

Nous avons débuté en réalisant des expériences sur et en dehors des réseaux, pour voir l'effet de la nanostructuration. Sur la figure 2.2 sont représentés les signaux obtenus

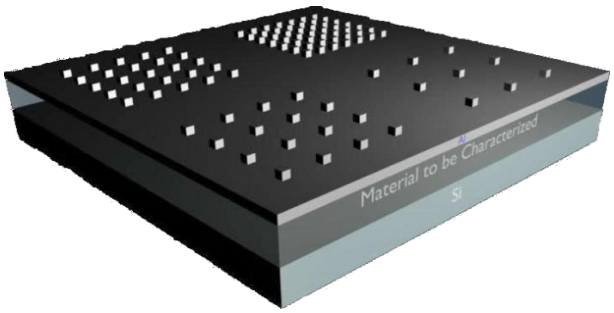


FIGURE *2.1: Représentation schématique de nos échantillons.*

sur et en dehors du réseau de période 800 nm, avec une taille de cubes de 200 nm et une épaisseur de sous-couche d'aluminium de 12 nm avec une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de sonde de 400 nm.

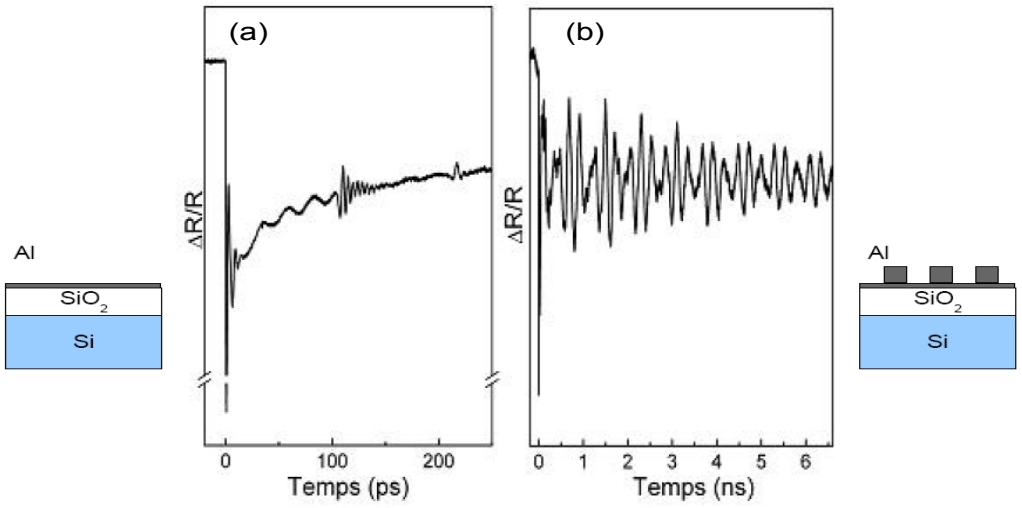


FIGURE *2.2: Changements de réflectivité d'un échantillon comportant un film d'Al de 12 nm sur un film de $SiO_2$ de 600 nm sur substrat Si obtenus sur un réseau de période 800 nm(a) et en dehors(b) avec une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de sonde de 400 nm*

Les deux signaux sont totalement différents. En dehors des plots, sur la figure 2.2(a), on obtient un signal "habituel", c'est-à-dire un pic issu des porteurs excités, puis les oscillations Brillouin de $SiO_2$ jusque t=110 ps. On a ensuite l'entrée de l'onde acoustique dans Si et on détecte donc de nouvelles oscillations Brillouin. Finalement à t=220 ps, une

partie de l'onde acoustique a fait un aller-retour dans la couche de $SiO_2$ et est détectée par la couche d'aluminium sous la forme d'un écho. Le signal obtenu en réalisant l'expérience sur le réseau de plots, figure 2.2(b), présente de grandes différences. Tout d'abord la durée de vie du signal est beaucoup plus longue, on passe de 300 ps en dehors du réseau à plus de 6 ns sur le réseau. On constate également qu'après 6 ns, les oscillations ne sont pas encore terminées. Autre différence, l'amplitude du signal. Sur les réseaux, le signal est beaucoup plus fort qu'en dehors, on peut voir cette différence sur la figure 2.3. Pour finir, on constate que les conditions de détection des signaux sont différentes.

Pour s'en rendre compte, nous avons réalisé des expériences sur ce même réseau dans deux configurations différentes. Dans le premier cas, nous utilisons une longueur d'onde de pompe de 900 nm et une sonde doublée, c'est-à-dire avec une longueur d'onde de 450 nm, plus petite que la période du réseau. Dans la deuxième configuration, la sonde n'est pas doublée, la longueur d'onde de pompe et de sonde est donc 900 nm. Dans ce cas, la longueur d'onde de sonde est plus grande que la période du réseau. Les deux signaux obtenus sont représentés sur la figure 2.3.

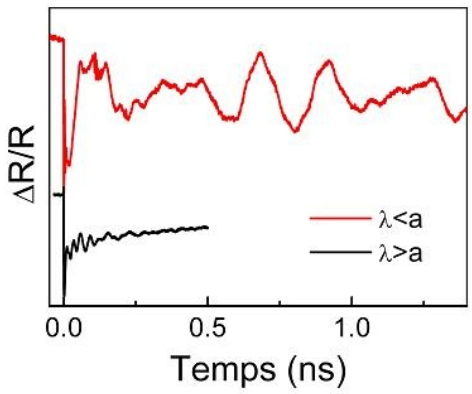


FIGURE *2.3: Changements de réflectivité obtenus sur le réseau de période 800 nm déposé sur un transducteur d'Al de 12 nm sur un film de 800 nm de $SiO_2$ sur substrat Si avec une longueur d'onde de pompe de 900 nm et une longueur d'onde de sonde de 900 nm($\lambda \geq a$) ou 450 nm($\lambda \leq a$)*

A nouveau, on obtient des signaux très différents. Dans le cas où la longueur d'onde de sonde est plus petite que la période du réseau, on obtient un signal avec une grande durée de vie et une grande amplitude. Par contre si la longueur d'onde est plus petite que le pas du réseau, on observe des oscillations très amorties. Ces oscillations ont été étudiés durant la thèse de Jean-François Robillard et correspondent à des vibrations individuelles des nanostructures.

En appliquant le même principe, c'est-à-dire des expériences avec la longueur d'onde supérieure ou inférieure à la période du réseau, à tous les réseaux, on voit apparaître un

critère pour la détection des oscillations longue durée : il faut que la longueur d'onde de sonde soit plus petite que la période du réseau, $\lambda \leq a$ pour voir ces oscillations basse fréquence. Il faut que la sonde soit diffractée par le réseau pour pouvoir détecter ces oscillations.

## 2.1.2 Des modes collectifs

### Influence de la période

Nous allons maintenant nous intéresser plus en détails à ces oscillations. Pour cela, on va étudier les changements que l'on observe en fonction de la période du réseau. Sur la figure 2.4(a), nous avons représenté les signaux obtenus sur les réseaux de période 450 et 800 nm de l'échantillon dont la sous-couche fait 100 nm d'épaisseur pour une longueur d'onde de sonde de 400 nm

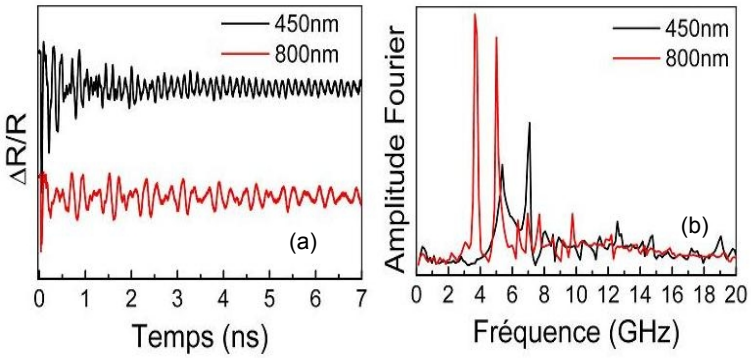


FIGURE *2.4: (a) Changements de réflectivité obtenus avec une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de 400 nm sur les réseaux de période 450 et 800 nm d'un échantillon dont la sous-couche d'Al fait 100 nm d'épaisseur déposée sur 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si.*

Chacun des signaux comporte plusieurs oscillations. Sur le réseau de période 450 nm, les oscillations sont plus rapides que dans le réseau de pas 800 nm. Cela signifie que les vibrations dépendent de la période du réseau. Afin de mieux s'en rendre compte, on réalise la transformée de Fourier des deux signaux, que l'on retrouve sur la figure 2.4(b). Comme on l'a observé précédemment, il y a bien plusieurs fréquences dans les signaux ; Ici on en discerne clairement deux pour chaque réseau. Ces fréquences ne sont pas les mêmes pour les réseaux. Plus la période du réseau est grande, plus les fréquences sont faibles.

Nous avons réalisé des mesures de ces fréquences pour les différentes périodes de réseau (400, 450, 500, 600, 700 et 800 nm) sur l'échantillon ayant une sous-couche de 100 nm d'épaisseur. Nous avons ensuite reporté ces fréquences en fonction de l'inverse de la période du réseau sur la figure 2.5. Les lignes continues sont obtenues grâce au modèle que nous détaillerons dans la partie suivante.

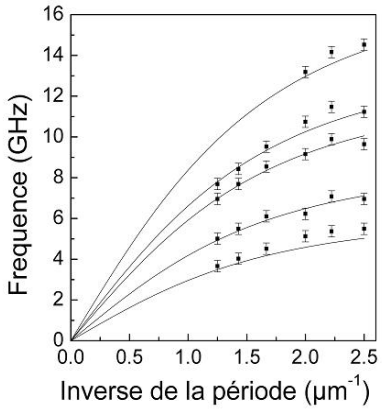


FIGURE *2.5: Fréquences extraites des signaux expérimentaux en fonction de l'inverse de la période du réseau. Les lignes continues sont issues du modèle que nous développerons plus loin.*

Si l'on ne modifie que la période du réseau, les fréquences changent, il s'agit donc bien de modes collectifs. La figure 2.5 permet d'obtenir des indices sur la nature acoustique de ces modes : lorsque $1/a$ tend vers 0, les fréquences tendent vers 0 de manière linéaire, ce qui est similaire aux branches acoustiques décrites par la relation de dispersion $\omega = ck$. De plus, cette pente est homogène à une vitesse et l'inverse du pas $1/a$ est très similaire à un vecteur d'onde. On remarque également que les branches se courbent quand $1/a$ devient plus important, cela s'assimile à un effet de chargement de la couche. Enfin, il semble que les différentes courbes puissent être déduites de la première, en d'autres termes les branches sont proportionnelles les unes aux autres. Ici les coefficients de proportionnalité sont proches de $\sqrt{2}$, 2, $\sqrt{5}$ et $2\sqrt{2}$

#### Influence de la taille des cubes

On s'intéresse maintenant à l'influence de la taille des plots sur les fréquences détectées. Nous avons donc réalisé des expériences sur des réseaux où la taille des plots est 100 nm ou 200 nm et une épaisseur de sous-couche de 100 nm. De nouveau, nous représentons les fréquences en fonction de l'inverse de la période du réseau.

Lorsque les plots sont plus gros, on remarque que la courbure est plus importante. Cela consolide une interprétation basée sur l'effet de masse des plots. Plus les plots sont gros, plus ils sont lourds et donc plus l'effet est important.

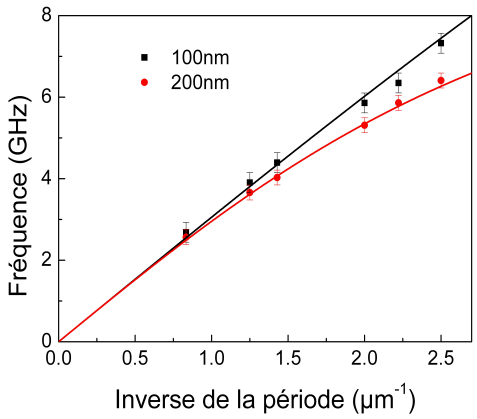


FIGURE *2.6: Fréquences obtenues expérimentalement en fonction de l'inverse de la période du réseau pour des cubes de 100 et 200 nm de côté.*

Tous ces éléments appuient la nature acoustique de ces modes. Le modèle suivant va rendre compte de cette nature.

### 2.1.3 Modèle

Suite aux expériences, deux points doivent être expliqués : l'origine des branches et des facteurs remarquables entre ces dernières, ainsi que la raison de la courbure de ces branches selon la taille des cubes. Dans le modèle qui suit, nous allons tenter de répondre à ces deux interrogations.

#### Calcul des vecteurs d'ondes

Nous partons de l'hypothèse que les fréquences observées expérimentalement sont issues de branches acoustiques, donc que l'on a la relation de dispersion :

$$\omega(\vec{k}) = c(a) \parallel \vec{k} \parallel, \tag{2.1}$$

où $\omega = 2\pi f$ est la pulsation, $c(a)$ est la vitesse du mode collectif et $\parallel \vec{k} \parallel$ est la norme du vecteur d'onde associé à ce mode. On note que la vitesse $c(a)$ est fonction de la période du réseau $a$, cela permet de rendre compte de l'effet de courbure.

Pour comprendre ces modes, il faut d'abord comprendre la génération. De part la nanostructuration, le profil de l'excitation initiale créée par l'absorption de la pompe possède la même périodicité que le réseau. Par conséquent, si on nomme $\vec{A}$ un vecteur du réseau direct, la déformation acoustique doit être $\vec{A}$-périodique :

$$\eta(\vec{r} + \vec{A}, t) = \eta(\vec{r}, t), \tag{2.2}$$

Si l'on considère que la déformation se propage parallèlement à la surface, on peut écrire :

$$\eta(\vec{r},t) = \eta_0 e^{i(w.t-\vec{k}.\vec{r})}, \tag{2.3}$$

Afin de respecter l'équation (2.3), il faut donc qu'on ait la condition sur les phases : $\vec{k}.\vec{A} = 2n\pi$, où $n$ est un entier. Par conséquent, les seuls modes propagatifs excitables sont ceux dont le vecteur d'onde est un vecteur du réseau réciproque. Dans le cas d'un réseau carré de période $a$, les vecteurs d'ondes $\vec{k}$ permis s'écrivent :

$$\vec{k} = \frac{2\pi}{a}(i\vec{u_x} + j\vec{u_y}), \tag{2.4}$$

où $i$ et $j$ sont des entiers et $\vec{u_x}$ et $\vec{u_y}$. L'onde se propage donc dans la direction $(i,j)$ et a pour nombre d'onde :

$$k_{i,j} = \sqrt{i^2+j^2}(\frac{2\pi}{a}). \tag{2.5}$$

En reportant cette expression dans l'équation 2.1, on voit apparaître différentes fréquences. Ces différentes fréquences sont toutes proportionnelles et les coefficients de proportionnalité sont donnés par $\sqrt{i^2+j^2}$. On retrouve donc les rapports $\sqrt{2}$, 2 et $\sqrt{5}$ que l'on observait précédemment entre les fréquences expérimentales. On en déduit que les différentes branches ne correspondent pas à différents modes, mais à la même onde acoustique excitée à différents vecteurs d'onde et se propageant dans différentes directions.

**Détermination de la vitesse des modes**

Nous allons maintenant mettre en place un modèle qui permet de décrire la vitesse des modes collectifs $c(a)$. Quand les plots sont de plus en plus proches, les branches que l'on voit sur la figure 2.5 ont tendance à se courber, ce qui signifie que la vitesse $c(a)$ diminue. Nous allons montrer que ceci peut être expliqué par un effet de chargement de la couche par les cubes. Comme toutes les branches peuvent être déduites de la première, nous allons nous concentrer sur les fréquences les plus basses $f_{1,0}$ et leur dépendance par rapport à la période du réseau.

On suppose que les modes collectifs sont issus de la vibration d'une maille élémentaire. On considère cette vibration comme celle d'un oscillateur harmonique de constante de raideur $K$ et de masse $M$. La maille élémentaire est composée d'un cube de côté $d$ et d'un parallélépipède de la sous-couche de côté $a$ et de hauteur $h$. On peut donc écrire que la fréquence est :

$$f_{1,0} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{K}{M}} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{K}{\rho V}}, \tag{2.6}$$

où $\rho$ est la masse volumique de l'aluminium et $V$ le volume de la maille élémentaire. Nous allons maintenant développer l'expression du volume en fonction des différents paramètres géométriques $a$, $h$ et $d$ :

$$f_{1,0} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{K}{\rho}}\frac{1}{\sqrt{ha^2+d^3}}, \tag{2.7}$$

D'après l'équation 2.1, la pulsation du premier mode est :

$$2\pi f_{1,0} = c(a)k_{1,0} = c(a)\frac{2\pi}{a}, \tag{2.8}$$

On obtient donc une formulation de la vitesse $c(a)$ :

$$c(a) = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{K}{\rho}}\sqrt{\frac{a^2}{ha^2+d^3}}, \tag{2.9}$$

Nous allons maintenant nous concentrer sur le comportement de cette vitesse quand les plots sont infiniment espacés. Nous avons vu sur la figure 2.5, que proche de zéro, les fréquences ont un comportement linéaire. Cela définit donc une vitesse constante quand $a$ est grand. Cette vitesse sera appelée $c_0$ dans la suite et est définie par :

$$c_0 = \lim_{a\to\infty} c(a), \tag{2.10}$$

En faisant tendre $a$ vers l'infini dans l'équation 2.9, on obtient l'expression de la vitesse des modes collectifs dans un réseau :

$$c(a) = c_0\sqrt{\frac{a^2}{a^2+d^3/h}}, \tag{2.11}$$

$c_0$ étant le seul paramètre ajustable de notre modèle. Lorsque $a$ devient petit, c'est à dire que les plots se rapprochent les uns des autres, la vitesse $c(a)$ diminue, confirmant l'effet de chargement de la couche.

Finalement en combinant les vecteurs d'ondes (Eq. 2.5) et la vitesse (Eq. 2.11) des modes, on obtient l'expression des fréquences des modes :

$$f_{i,j} = \frac{1}{2\pi}c_0\sqrt{\frac{a^2}{a^2+d^3/h}}k_{i,j}, \tag{2.12}$$

Il est important de noter que dans notre modèle, il n'y a qu'un seul paramètre d'ajustement qui est la vitesse $c_0$ et qui correspond graphiquement à la pente à l'origine de la première branche.

Nous allons maintenant nous intéresser à la vitesse $c_0$ et à sa signification. Nous

pouvons maintenant affirmer que les fréquences que l'on observe sont issues d'ondes acoustiques de surface. Cette vitesse dépend de l'espacement entre les plots et tend vers une valeur limite $c_0$ quand les plots sont infiniment espacés. La limite des plots infiniment espacés correspond à la propagation d'une onde surface dans une couche non nanostructurée. On trouve une valeur $c_0$ de 3.07 nm.ps$^{-1}$, pour un échantillon avec une sous-couche de 100 nm. Cette valeur se situe entre la valeur de la vitesse de Rayleigh de Al (2.88 nm.ps$^{-1}$) et celle de $SiO_2$ (3.51 nm.ps$^{-1}$).

Nous allons essayer de comprendre l'évolution de la vitesse $c_0$ en fonction de l'épaisseur de la sous-couche $h$. Du fait du faible désaccord acoustique entre la silice et l'aluminium, on peut considérer que la pénétration exponentielle de l'onde de Rayleigh $\delta$ est la même pour les deux matériaux. Si l'on écrit la vitesse en fonction de l'épaisseur de la sous-couche et de la vitesse de Rayleigh de la silice $v_R^{SiO_2}$ et celle de l'aluminium $v_R^{Al}$, on obtient : [53]

$$c(\frac{h}{\delta}) = \int_0^h v_R^{Al} e^{-\frac{z}{\delta}} dz + \int_h^{+\infty} v_R^{SiO_2} e^{-\frac{z}{\delta}} dz, \tag{2.13}$$

Ce qui donne :

$$c(h) = (v_R^{SiO_2} - v_R^{Al}) e^{-h} + v_R^{Al}, \tag{2.14}$$

Pour vérifier si l'évolution de $c$ en fonction de la sous-couche $h$ que nous venons de proposer est justifiée, nous avons réalisé des simulations basées sur la méthode des éléments finis. [4] Nous avons tout d'abord maillé la sous-couche d'aluminium, ainsi que la couche de $SiO_2$.On considère le bas de la couche de $SiO_2$ comme fixe et le plan en bout de plaque est un plan de symétrie, ce qui correspond à une réflexion totale pour les ondes. Une contrainte initiale est appliquée sur la surface pendant 1 ps puis relâchée. La déformation est intégrée sur une durée de 100 ps. On peut ainsi connaître la position de la déformation au bout de différentes durées de propagation. La vitesse est ensuite déduite du temps de vol. Sur la figure 2.7, nous reproduisons le résultat de la simulation pour une épaisseur d'aluminium de 20 nm.

Sur cette simulation, on peut voir la propagation de la déformation à la surface sur 100 ps. Nous sommes ainsi capables de connaître la vitesse des ondes. Nous avons réalisé ces expériences pour différentes épaisseurs de la couche d'aluminium et nous avons vu la vitesse de propagation de la déformation évoluer. Cette évolution reproduit parfaitement une exponentielle décroissante de $v_R^{SiO_2}$ pour une épaisseur $h$ nulle jusqu'à $v_R^{Al}$ pour une sous-couche très épaisse.

Sur la figure 2.8, nous avons placé les vitesses $c_0$ mesurées sur des échantillons avec des épaisseurs de la sous-couche d'aluminium de 20, 100 et 400 nm, ainsi que les valeurs

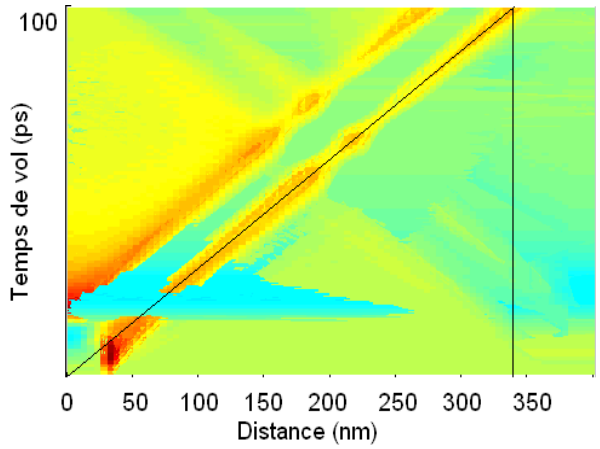


FIGURE *2.7: Simulation par éléments finis de la propagation d'une déformation de longueur d'onde acoustique 200 nm à la surface d'un empilement de 20 nm d'aluminium sur un substrat de silice.*

obtenues grâce à la modélisation par éléments finis pour différentes épaisseurs.

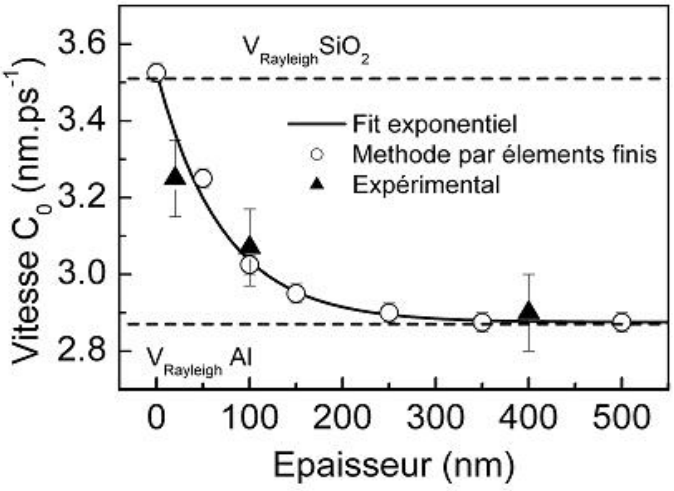


FIGURE *2.8: Vitesses des ondes de surface en fonction de l'épaisseur de la sous-couche d'aluminium obtenues expérimentalement et par simulation et ajustement par une fonction exponentielle des valeurs issues des simulations*

Nous avons réalisé un ajustement exponentiel des valeurs obtenues par la modélisation par éléments finis. Cet ajustement correspond à l'équation (2.14). On remarque un excellent accord avec les valeurs mesurées expérimentalement.

Nous avons donc mis au point un modèle qui permet de comprendre les différentes fréquences que l'on observe expérimentalement. De plus, grâce à ce modèle, il est possible de calculer la vitesse des ondes de Rayleigh dans la couche qui se situe en-dessous de la sous-couche d'aluminium. Nous allons mettre à profit cette particularité pour réaliser une

caractérisation mécanique complète de couches minces.

## 2.2 Caractérisation mécanique complète

En générant des ondes longitudinales, nous pouvons avoir accès à différentes propriétés telles que la vitesse longitudinale $v_l$ et la masse volumique $\rho$. Ces dernières sont reliées aux propriétés mécaniques des matériaux comme le module de Young $E$ et le coefficient de Poisson $\nu$ : [32]

$$v_l = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}} \tag{2.15}$$

Comme le montre l'équation (2.15), on ne peut pas obtenir toutes les propriétés mécaniques à partir de la vitesse longitudinale et de la masse volumique. On ne peut pas réaliser une caractérisation complète tant que l'acoustique picoseconde reste limitée aux ondes longitudinales. Grâce à la nanostructuration, il est possible d'obtenir des informations sur les propriétés mécaniques dans le plan. Nous allons voir comment la combinaison des informations longitudinales et dans le plan permet de réaliser une caractérisation mécanique complète de films minces.

### 2.2.1 Principe

L'étude de réseaux de nanostructures organisées révèle la propagation de modes acoustiques collectifs le long de la surface. Un modèle a été mis au point et permet l'extraction d'une vitesse de surface dans la limite d'un espacement infini entre les nanostructures. Il est ensuite possible d'extrapoler la vitesse de Rayleigh du film sur lequel est déposée la sous-couche d'aluminium. Dans le cas de matériaux isotropes, la vitesse des ondes transverses peut être extraite de la vitesse de Rayleigh. Nous sommes ainsi capables d'obtenir les vitesses longitudinales et transverses. De cette manière, il est possible de réaliser une caractérisation complète de couches minces. Nous allons décrire la méthode sur un exemple : la silice. [40]

Nos échantillons sont élaborés à partir d'une couche de silice de 600 nm sur substrat silicium. Nous avons réalisé deux dépôts d'aluminium : sur un échantillon on dépose une couche de 28 nm et sur l'autre, une couche de 140 nm. Nous avons besoin de ces deux épaisseurs pour améliorer la précision sur la mesure de vitesse. Nous effectuons alors la nanostructuration de la surface par lithographie électronique. On dispose alors de deux échantillons possédant une épaisseur d'aluminium variable sur laquelle reposent

des réseaux de cubes de 200 nm de côté. Sur notre échantillon, il existe des zones nanostructurées et d'autres où l'on a juste la couche d'aluminium, ce qui va nous permettre de réaliser des expériences dites classiques. C'est à ce type d'expérience que nous allons d'abord nous intéresser.

### Vitesse longitudinale

La première étape de la caractérisation consiste à obtenir la vitesse longitudinale et la masse volumique. Pour cela, nous avons réalisé des expériences dites "classiques" en dehors de la nanostructuration. Nous avons reproduit sur la figure 2.9, le signal obtenu sur l'échantillon avec une couche de 28 nm d'aluminium avec une pompe rouge (800 nm) et une sonde bleue (400 nm).

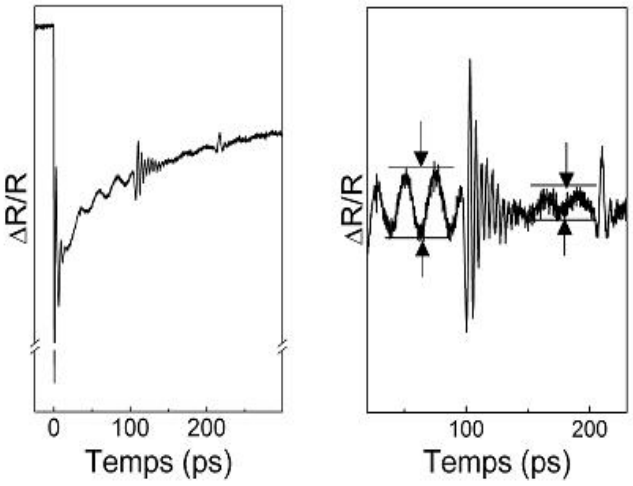


FIGURE *2.9: Changement de réflectivité obtenu hors de la zone nanostructurée sur l'échantillon ayant une sous-couche de 28 nm sur un film de 600 nm de silice sur substrat Si avec une pompe de 800 nm et une sonde de 400 nm.*

Différentes contributions apparaissent dans ce signal. Tout d'abord, juste après le pic électronique, on voit des oscillations rapides : c'est le "ringing" dans la couche d'aluminium. La période du "ringing" correspond à un aller-retour dans le film d'aluminium. On peut ainsi confirmer que l'on a bien déposé 28 nm d'aluminium. Les oscillations suivantes qui apparaissent jusque 110 ps sont des oscillations Brillouin détectées dans la couche de silice. La période de ces oscillations est donnée par $T = \lambda/2nv_l = 24$ ps. En prenant comme indice $n$ =1.47, [46] on obtient une vitesse longitudinale de 5.9 nm.ps$^{-1}$. Maintenant que nous avons obtenu la vitesse longitudinale, nous pouvons déduire l'épaisseur de silice. A t=210 ps, on observe une structure que l'on appelle écho et qui correspond au retour de l'onde acoustique à la surface de l'échantillon. L'onde acoustique a fait un

aller-retour dans la couche de silice. On connaît la vitesse et le temps de vol, on peut ainsi confirmer que l'épaisseur du film de silice est bien de l'ordre de 600 nm.

Nous allons maintenant voir comment il est possible d'extraire la masse volumique de la silice à partir de cette expérience. L'onde acoustique qui arrive à l'interface $SiO_2$/Si est partiellement réfléchie, et cette réflexion produit également des oscillations Brillouin basse fréquence, que l'on peut voir sur la figure 2.9. Le rapport de l'amplitude de ces oscillations, avant et après réflexion, nous donne le coefficient de réflexion $r \simeq 0.215$. On peut alors calculer l'impédance acoustique de la silice $Z_{SiO_2}$, à partir de celle du silicium $Z_{Si}$ connue puisqu'il s'agit d'un substrat cristallin :

$$r = \frac{Z_{Si} - Z_{SiO_2}}{Z_{Si} + Z_{SiO_2}}, \tag{2.16}$$

d'où

$$Z_{SiO_2} = \frac{1+r}{1-r} Z_{Si}. \tag{2.17}$$

On obtient ainsi l'impédance acoustique de la silice $Z_{SiO_2} = \rho v_l = 12,8$ kPa.s.m$^{-1}$ et donc une masse volumique de 2170 g.cm$^{-1}$.

La donnée de la vitesse longitudinale et de la masse volumique n'étant pas suffisante pour complètement caractériser le matériau, nous allons maintenant nous intéresser à l'obtention de la vitesse transverse.

#### Vitesse transverse

Nous avons vu précédemment que grâce à la nanostructuration de la surface de notre échantillon, nous pouvons générer des ondes de surface. Nous allons voir, comment, à partir des signaux que l'on obtient sur chaque réseau, nous sommes capables d'extraire la vitesse des ondes transverses.

Nous avons reproduit sur la figure 2.10 le signal obtenu sur le réseau de période 800 nm de l'échantillon ayant une sous-couche d'aluminium de 28 nm d'épaisseur.

Nous retrouvons bien une des caractéristiques de nos modes collectifs, c'est-à-dire la durée de vie. Nous avons été capables de détecter du signal sur plus de 6 ns. Il faut d'ailleurs remarquer que le signal n'est pas nul au bout des 6 ns, on devine même une oscillation avant zéro, ce qui démontre bien la durée de vie exceptionnelle de ces modes de vibrations, puisque le laser délivre une impulsion toute les 12 ns.

Le signal obtenu comporte différentes fréquences révélées par une transformée de Fourier visibles sur la figure 2.11.

Nous avons vu lorsque nous avons décrit notre modèle sur les modes collectifs que les différentes fréquences correspondent aux différentes directions de propagation des ondes de

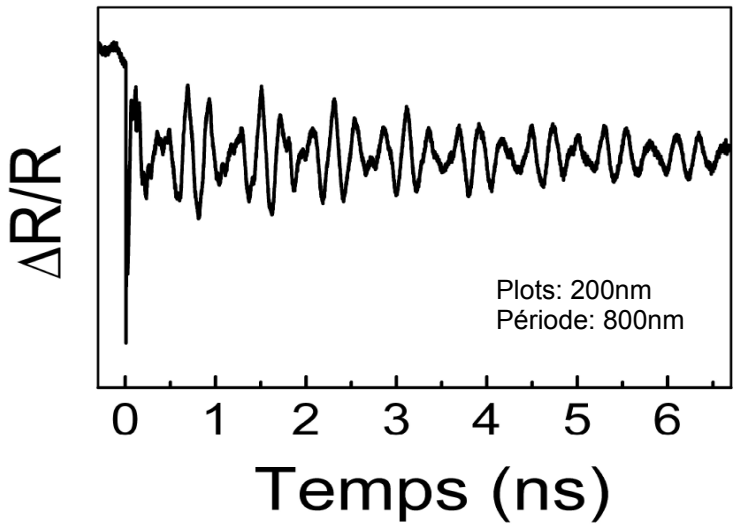


FIGURE *2.10: Changement de réflectivité obtenu sur le réseau de période 800 nm sur l'échantillon ayant une sous-couche de 28 nm d'Al déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si avec une pompe de 800 nm et une sonde de 400 nm.*

surface. [53] De ce fait, des facteurs remarquables ($\sqrt{2}$,2) apparaissent entre ces fréquences. Dans le tableau 2.1, nous détaillons ces fréquences ainsi que les rapports entre chaque fréquence et la première.

| Fréquence | Rapport |
|---|---|
| 3.6 | 1 |
| 5.1 | 1.42 |
| 7.3 | 2.03 |

TABLE *2.1: Fréquences des modes et rapport à la première fréquence*

Nous remarquons que les rapports obtenus expérimentalement sont en très bon accord avec les valeurs attendues. Nous avons réalisé ce type d'expérience pour tous les réseaux. Pour chaque réseau, nous récupérons un jeu de fréquences différent. Sur la figure 2.12, nous avons tracé ces fréquences en fonction de l'inverse de la période du réseau.

Le modèle descriptif des vibrations collectives permet de prévoir les fréquences de vibrations. Ces fréquences sont données par :

$$f_{i,j}(a) = c\sqrt{\frac{a^2h}{a^2h+d^3}}\left(\frac{\sqrt{i^2+j^2}}{a}\right), \tag{2.18}$$

où $a$ est la période du réseau, $c$ est la vitesse du mode, $h$ est la hauteur de la sous-couche, $d$ est le côté du cube et $i$ et $j$ sont des coordonnées entières des vecteurs du réseau réciproque. Le seul paramètre qui n'est pas fixé par la géométrie de l'échantillon est la vitesse du mode $c$. Nous allons donc l'utiliser comme variable d'ajustement pour trouver

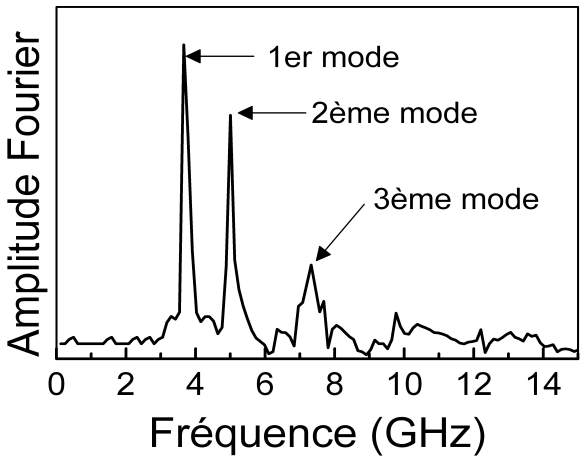


FIGURE *2.11: Transformée de Fourier du signal obtenu sur le réseau de plots de période 800 nm avec une sous-couche d'Al de 28 nm déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si.*

le meilleur agrément entre les points expérimentaux et le modèle. Sur la figure 2.12, les différentes courbes correspondent aux différentes branches obtenues après avoir ajusté la vitesse des modes $c$, qui est la pente à l'origine de la première branche. Le meilleur ajustement est réalisé pour une vitesse $c$ de 3.35 nm.ps$^{-1}$. Rappelons que physiquement, $c$ est la vitesse dans la limite de plots infiniment espacés.

Cette valeur de la vitesse n'est pas exploitable ainsi. En effet cette vitesse correspond à la vitesse dans l'empilement Al/$SiO_2$. Il faut réussir à extraire la contribution de l'aluminium à cette vitesse. On remarque d'ailleurs que cette valeur de la vitesse se situe entre la vitesse de Rayleigh de l'aluminium (2.88 nm.ps$^{-1}$) et celle de la silice (3.51 nm.ps$^{-1}$). C'est pour cette raison que nous avons réalisé des échantillons ayant différentes épaisseurs d'aluminium.

Sur la figure 2.13, nous avons placé les vitesses mesurées pour les couches de 28 et 140 nm. Nous avons alors appliqué notre modèle (Eq. 2.14) en utilisant la vitesse de Rayleigh de la silice comme paramètre d'ajustement.

Ainsi, nous sommes capables d'extraire la vitesse de Rayleigh de la silice, et nous trouvons $v_R^{SiO_2} = 3.4\ nm.ps^{-1}$.

#### Calcul des propriétés mécaniques

Nous avons maintenant réussi à extraire la vitesse longitudinale, la masse volumique et la vitesse de Rayleigh. Afin de pouvoir réaliser une caractérisation complète, nous devons calculer la vitesse transverse. Pour cela nous allons utiliser l'approximation de Viktorov, qui relie la vitesse longitudinale, la vitesse transverse et la vitesse de Rayleigh

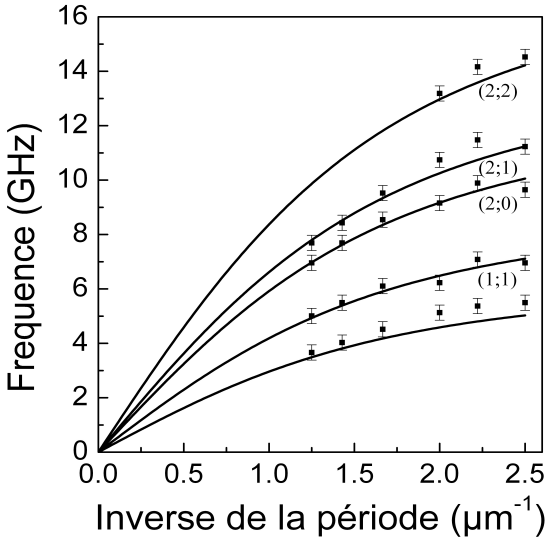


FIGURE *2.12: Fréquences des modes en fonction de l'inverse de la période du réseau et modèle théorique.*

dans le cas des matériaux isotropes : [32, 57]

$$\frac{v_R}{v_t} = \frac{0.718 - (\frac{v_t}{v_l})^2}{0.75 - (\frac{v_t}{v_l})^2} \tag{2.19}$$

Ensuite, en utilisant l'équation (2.16) et la relation : [32]

$$v_t = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}} \tag{2.20}$$

Nous sommes capables de calculer le module de Young et le coefficient de Poisson, ainsi la caractérisation mécanique complète est réalisée. Nous avons également appliqué cette méthode à d'autres matériaux comme $Si_3N_4$ et AlN. L'ensemble des résultats est reporté dans le tableau 2.2.

| | Vitesse longitudinale | Vitesse de Rayleigh | Vitesse transverse | Module de Young | Coefficient de Poisson |
|---|---|---|---|---|---|
| $SiO_2$ | 5.9 nm.ps$^{-1}$ | 3.4 nm.ps$^{-1}$ | 3.7 nm.ps$^{-1}$ | 72 GPa | 0.16 |
| $Si_3N_4$ | 8.9 nm.ps$^{-1}$ | 5.0 nm.ps$^{-1}$ | 5.4 nm.ps$^{-1}$ | 227 GPa | 0.20 |
| AlN | 11.2 nm.ps$^{-1}$ | 6.2 nm.ps$^{-1}$ | 6.7 nm.ps$^{-1}$ | 360 GPa | 0.21 |

TABLE *2.2: Récapitulatif des propriétés mesurées ou extraites par sur $SiO_2$, $Si_3N_4$ et AlN*

Dans le cas de la silice, on remarque un très bon accord avec la littérature. [31] A l'heure actuelle, il n'existe que peu de méthodes capable de réaliser une caractérisation complète dans les films minces. On peut citer la diffusion Brillouin qui permet la me-

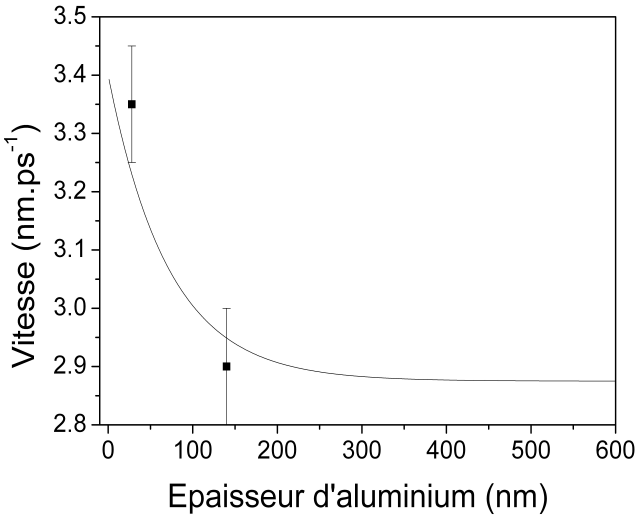


FIGURE *2.13: Vitesses mesurées expérimentalement sur les échantillons avec 28 et 140 nm d'épaisseur d'aluminium déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si et l'ajustement à partir du modèle théorique (Eq. 2.14).*

sure de vitesse des ondes acoustiques longitudinales et transverses. Cependant l'un des inconvénients de la diffusion Brillouin est que la mesure doit se faire dans des échantillons transparents ou semi-transparents. D'autres techniques permettent la mesure du module de Young ou du coefficient de Poisson, [8] et la plus répandue est la nanoindentation.

### 2.2.2 Comparatif avec la nanoindentation

Afin de juger de la qualité des résultats obtenus grâce à notre technique, nous l'avons comparée avec la technique de caractérisation mécanique la plus répandue : la nanoindentation. L'une des différences entre ces deux techniques est que nous sommes capables de calculer à la fois le module de Young et le coefficient de Poisson, alors que la nanoindentation suppose l'un pour connaître l'autre.

#### La nanoindentation

En indentation, en utilise une pointe dure, dont les propriétés mécaniques sont connues. On enfonce la pointe dans le matériau à caractériser en lui appliquant une charge. Ensuite on retire la pointe, et on observe une surface résiduelle d'indentation. On peut obtenir ainsi la dureté du matériau $H$, qui est le rapport entre la charge maximum $P_{max}$ et la surface résiduelle d'indentation $A_r$ :

$$H = \frac{P_{max}}{A_r} \tag{2.21}$$

En nanoindentation, on applique des charges faibles et les pointes sont très petites. La surface résiduelle est donc également très restreinte, ce qui cause des problèmes pour déterminer précisément la dureté. C'est pour cette raison que nos mesures ont été réalisées avec une pointe Berkovich dont la géométrie est particulièrement bien connue, une pyramide à trois côtés. Durant l'expérience d'indentation, un relevé de la profondeur de pénétration de la pointe est réalisé, et comme on connaît la géométrie de la pointe, on est capable de calculer la surface d'indentation résiduelle.

Le suivi de la profondeur de pénétration en fonction de la charge donne accès au module réduit $E_r$, [45] qui dépend des caractéristiques de la pointe ($E_p$,$\nu_p$) et du matériau ($E_m$,$\nu_m$) :

$$\frac{1}{E_r} = \frac{1-\nu_p^2}{E_p} + \frac{1-\nu_m^2}{E_m} \tag{2.22}$$

Ainsi, si l'on considère les propriétés mécaniques de l'indenteur connues et que l'on suppose le coefficient de Poisson, on est capable de calculer le module de Young

**Comparatif des deux techniques**

Pour réaliser cette étude nous avons étudié trois échantillons composés de silice sur silicium. La différence entre ses trois échantillons réside dans l'épaisseur de la couche de silice. Nous avons étudié des couches de 200, 300 et 650 nm. Nous avons appliqué les deux techniques sur ces échantillons. Les expériences de nanoindentation ont été réalisées par G. Raymond et J.P. Gonchond à ST-Microelectronics à Crolles et les expériences d'acoustique picoseconde à Lille. Nous avons récapitulé les modules de Young et coefficients de Poisson obtenus par acoustique picoseconde (AP) et par nanoindentation (NI) dans le tableau suivant :

| | Module de Young (AP) | Coefficient de Poisson (AP) | Module réduit (NI) | Module de Young (NI) |
|---|---|---|---|---|
| $SiO_2$ (650 nm) | 72 GPa | 0.16 | 65 GPa | 66 GPa |
| $SiO_2$ (300 nm) | 72 GPa | 0.16 | 68 GPa | 69 GPa |
| $SiO_2$ (200 nm) | 72 GPa | 0.16 | 68 GPa | 69 GPa |

TABLE *2.3: Récapitulatif des propriétés mécaniques mesurées par acoustique picoseconde et nanoindentation*

La première chose que l'on remarque est la différence de valeurs obtenues entre ces deux techniques. On peut expliquer cela par différents facteurs. Tout d'abord, le module mesuré par nanoindentation dépend des propriétés de la silice, mais également des propriétés mécaniques de l'indenteur, si celles-ci ne sont pas fiables le résultat final ne l'est pas non plus. En nanoindentation, afin de mesurer le module de Young, il faut connaître le coefficient de Poisson. Pour réaliser les calculs de module de Young par nanoinden-

tation, nous avons utilisé la valeur obtenue par acoustique picoseconde. Si l'on compare maintenant les différentes épaisseurs, on voit que l'acoustique picoseconde est très stable, on n'observe aucune différence entre les épaisseurs. Les fréquences de vibrations sont sensiblement les mêmes. Par contre, pour la nanoindentation, il semble que les valeurs augmentent en dessous de 600 nm, ce qui est une caractéristique connue de la nanoindentation, puisqu'en dessous de 500 nm, l'indenteur est sensible à la couche que l'on veut caractériser ainsi qu'au substrat.

La technique acoustique picoseconde semble plus fiable, car elle nécessite moins de suppositions et permet d'extraire plus de valeurs. De plus si l'on avait uniquement réalisé les expériences par nanoindentation, on aurait pu conclure à un effet de durcissement causés par la réduction de taille, ce que dément l'acoustique picoseconde.

### 2.2.3 Effet de température

La réalisation d'expériences d'acoustique picoseconde sur des réseaux à différentes températures va permettre de mesurer l'évolution de la vitesse de Rayleigh et donc de la vitesse transverse. En ayant obtenu ces variations ainsi que celle de la vitesse longitudinale, nous serons en mesure de calculer le module de Young et le coefficient de Poisson à différentes températures.

Pour ces expériences, nous avons utilisé deux échantillons constitués d'une couche de 600 nm de silice sur substrat silicium. On dépose ensuite une couche d'aluminium. Sur le premier échantillon, elle a une épaisseur de 28 nm tandis que sur le second, elle est de 140 nm. L'étape suivante est la réalisation des réseaux de nanostructures cubiques. Sur chaque échantillon, on réalise des réseaux avec des périodes de 400, 450, 500, 600, 700 et 800 nm comportant des cubes de 200 nm de côté.

#### Expériences

Nous avons tout d'abord réalisé les expériences sur l'échantillon ayant une couche de 140 nm d'aluminium, afin d'isoler l'influence de l'aluminium. Sur cet échantillon, la pénétration des ondes dans la silice est moins importante que dans l'échantillon avec une couche de 28 nm. Ainsi nous serons capables de soustraire l'influence de l'aluminium sur les variations observées. Sur la figure 2.14, nous avons reproduit les signaux expérimentaux obtenus à température ambiante et à 185°C, ainsi que la transformée de Fourier de ces deux signaux.

On remarque que les signaux sont quasiment identiques, de même que leurs transformées de Fourier. Les fréquences ne varient pas avec la température, on en déduit que la vitesse des modes ne varie pas non plus. Comme l'onde de surface est presque entièrement

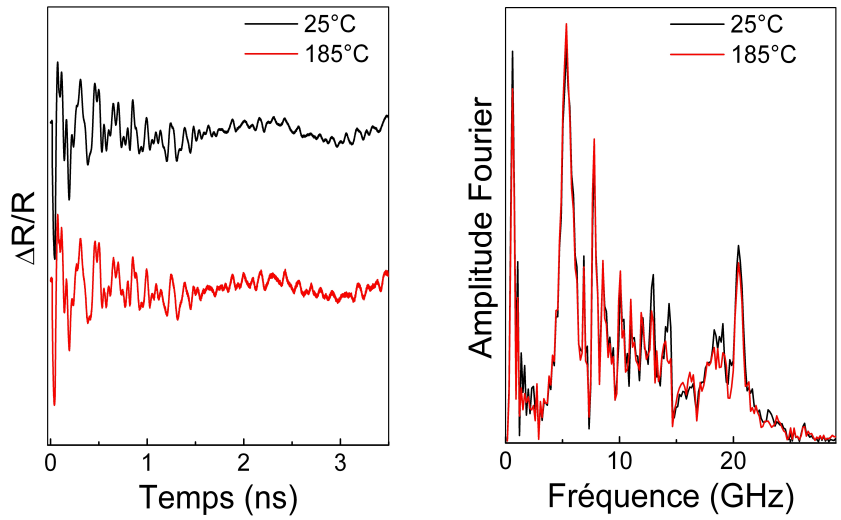


FIGURE *2.14: Changements de réflectivité obtenu à 20˚C et 185˚C sur le réseau de période 450 nm de l'échantillon avec une épaisseur d'aluminium de 140 nm déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si et les transformées de Fourier de ces signaux.*

contenue dans le film d'aluminium, le fait que l'on observe aucune variation signifie que les propriétés de l'aluminium ne sont pas modifiées. Les variations que l'on va observer seront donc uniquement attribuées à la silice.

Nous nous intéressons maintenant au second échantillon, qui comporte une couche de 28 nm d'aluminium. Nous avons réalisé des expériences en dehors des réseaux de plots, dans un schéma « classique ». Dans ce schéma, une impulsion acoustique est générée par le film d'aluminium et se propage dans la profondeur de l'échantillon. Nous avons reproduit les signaux obtenus à 25˚C et 185˚C sur la figure 2.15.

Différentes contributions apparaissent sur ces signaux. Tout d'abord, le premier pic correspond à la réponse électronique de l'échantillon. Ensuite nous voyons des oscillations de 0 à 100 ps, ce sont les oscillations Brillouin de la silice. D'autres oscillations à plus haute fréquence sont visibles à partir de t=110 ps, celles-ci correspondent à l'entrée de l'impulsion acoustique dans le silicium. Finalement, vers 220 ps, on peut voir l'écho, qui correspond à l'aller-retour de l'onde acoustique dans la couche de 600 nm de silice. On se rend compte que le temps d'arrivée de l'écho est sensible à la température. On peut ainsi mesurer la variation de la vitesse longitudinale induite par l'échauffement. A température ambiante, nous avons une vitesse de 5,90 $nm.ps^{-1}$ alors qu'à 185˚C nous mesurons la vitesse à 5,95 $nm.ps^{-1}$. On remarque la spécificité de la silice, quand la température augmente, la vitesse augmente également. Une autre particularité que l'on peut observer est l'absorption optique du silicium qui est plus importante à haute température. Si l'on se

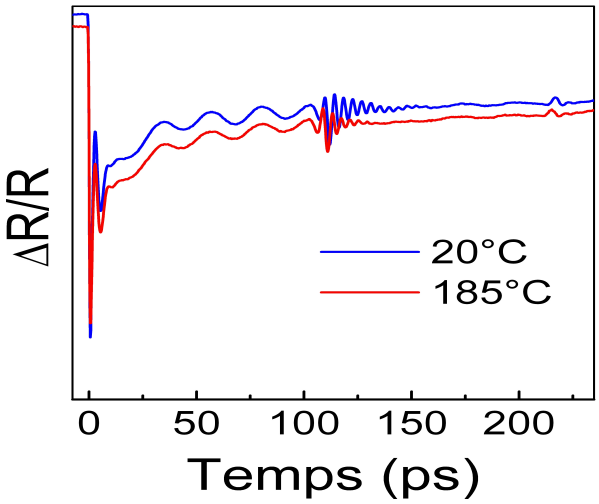


FIGURE *2.15: Changement de réfléctivité de l'échantillon avec une épaisseur d'aluminium de 28 nm déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si à 25°C et 185°C.*

concentre sur les oscillations Brillouin du silicium, on remarque qu'elles durent beaucoup moins longtemps à 185°C, comme l'absorption est plus forte, la sonde pénètre moins profondément et les oscillations Brillouin sont plus courtes.

Nous avons obtenu la variation de la vitesse longitudinale avec la température, nous nous intéressons maintenant aux réseaux de nanostructures. Nous avons montré que grâce à la nanostructuration il est possible de générer des ondes de surface. Nous pourrons ainsi obtenir la variation de la vitesse de Rayleigh. Sur la figure 2.16, on trouve les signaux expérimentaux obtenus sur le réseau de période 800 nm à 25°C et 185°C.

Tout d'abord, on remarque sur les signaux expérimentaux, une diminution plus rapide de l'amplitude des oscillations à haute température. On peut expliquer cette diminution par l'augmentation de l'atténuation. Sur la seconde partie, à partir de 1 ns, des signaux expérimentaux, on observe un décalage entre les oscillations aux deux températures. Ce décalage provient d'une variation de la période et donc de la fréquence. Sur les transformées de Fourier, on observe une augmentation de la fréquence de ces oscillations. La raison de cette augmentation est la variation de la vitesse de Rayleigh.

En reportant les valeurs de fréquences en fonction de l'inverse de la période du réseau, comme sur la figure 2.17, nous sommes capables de calculer la vitesse de Rayleigh.

En utilisant plusieurs réseaux, on obtient une sensibilité suffisante pour séparer les branches correspondant aux deux températures. La pente correspond à la vitesse des modes dans chaque réseau. Les fréquences étant légèrement différentes avec la température, la pente l'est également. Ce qui nous permet de conclure à une variation de la vitesse de Rayleigh. Nous mesurons donc une vitesse de 3.4 $nm.ps^{-1}$ à température

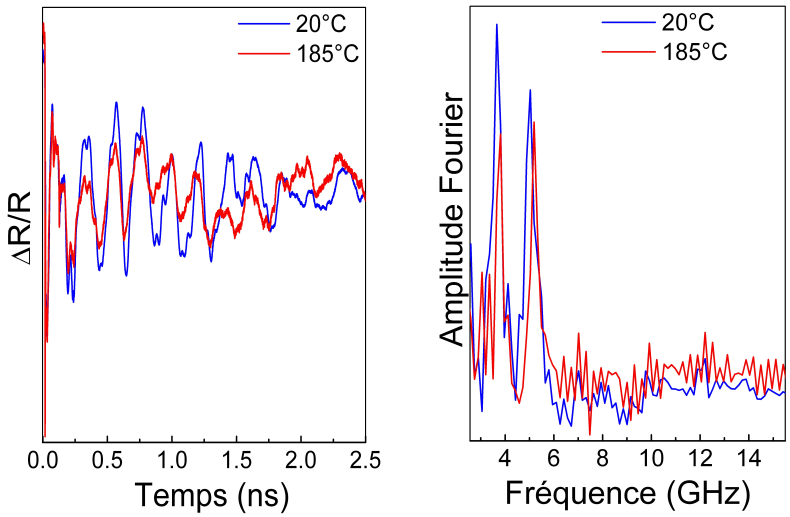


FIGURE *2.16: Changement de réflectivité obtenu à 20˚C et 185˚C sur le réseau de période 800 nm de l'échantillon avec une épaisseur d'aluminium de 28 nm déposée sur un film de 600 nm de $SiO_2$ sur substrat Si et les transformées de Fourier de ces signaux.*

ambiante et de 3.5 nm.ps$^{-1}$ à 185˚C.

#### Propriétés mécaniques

Nous avons vu que sous l'effet de la température, les vitesses sont modifiées. Connaissant les valeurs de la vitesse longitudinale et de la vitesse de Rayleigh, nous pouvons calculer la vitesse transverse, ainsi que le module de Young et le coefficient de Poisson à cette température. Les différentes valeurs sont récapitulées dans le tableau 2.4.

| | Vitesse longitudinale | Vitesse de Rayleigh | Vitesse transverse | Module de Young | Coefficient de Poisson |
|---|---|---|---|---|---|
| $SiO_2$ (25˚C) | 5.9 nm.ps$^{-1}$ | 3.4 nm.ps$^{-1}$ | 3.76 nm.ps$^{-1}$ | 72 GPa | 0.16 |
| $SiO_2$ (185˚C) | 5.95 nm.ps$^{-1}$ | 3.5 nm.ps$^{-1}$ | 3.85 nm.ps$^{-1}$ | 76 GPa | 0.17 |
| $SiO_2$ (25˚C)* | 5.97 nm.ps$^{-1}$ | | 3.77 nm.ps$^{-1}$ | | |
| $SiO_2$ (185˚C)* | 6.1 nm.ps$^{-1}$ | | 3.83 nm.ps$^{-1}$ | | |

TABLE *2.4: Récapitulatif des différentes valeurs mesurées et calculées et des valeurs de la littérature*. [5]*

### 2.2.4 Conclusion

Nous avons vu au début de ce chapitre que pour des raisons de géométrie de nos échantillons, il n'est a priori possible de générer que des ondes longitudinales en acoustique picoseconde. Cette limitation a pour effet de ne rendre accessible que certaines propriétés

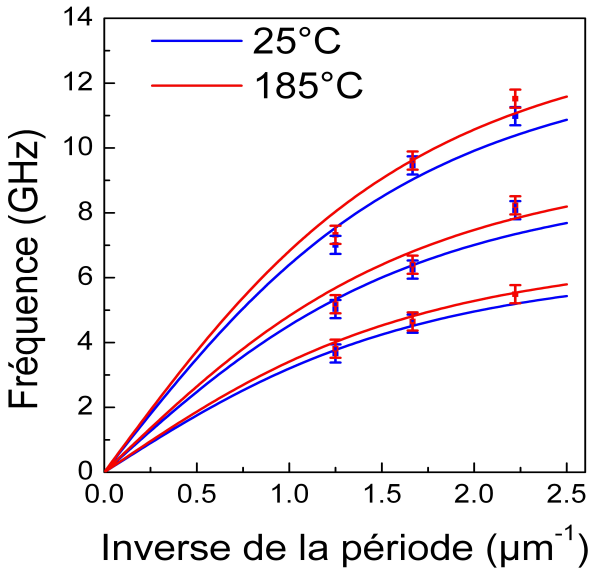


FIGURE *2.17: Fréquences des modes en fonction de l'inverse de la période du réseau pour différentes températures et modèle théorique.*

des matériaux. Nous avons montré qu'en réalisant une nanostructuration de la surface de nos échantillons, il est possible de générer des ondes de surface.

La génération de ces deux types d'ondes a rendu possible le développement d'une technique de caractérisation mécanique complète de couches minces, que nous venons de détailler. Il est à noter que cette technique est compatible avec un équipement standard. Nous avons appliqué cette technique à différents matériaux ($SiO_2$, $Si_3N_4$, AlN) et nous l'avons comparée à la technique de "référence" dans ce domaine : la nanoindentation. Nous avons même poussé la caractérisation plus loin en appliquant cette technique à des échantillons à différentes températures.

Cette technique semble donc être une excellente alternative à la nano-indentation. Cependant, il existe encore des limites. Par exemple, pour l'instant, elle n'est encore applicable qu'aux matériaux isotropes car nous sommes obligés d'utiliser l'approximation de Viktorov. On pourrait se défaire de cette limite en étant capable de déposer les réseaux suivant les axes du matériau.

Une autre limitation est l'épaisseur de matériau caractérisable. En effet, la pénétration de l'onde de surface est de $a/2\pi$, où $a$ est la période du réseau, pour caractériser des films plus minces, il faut réaliser des réseaux de période plus faible. Ceci soulève deux difficultés : une d'ordre technologique, il faut être capable de réaliser ces réseaux. La seconde difficulté est qu'il faut être capable de détecter les modes collectifs, il faut donc une longueur d'onde de sonde plus petite que la période du réseau. Cette deuxième difficulté semble maintenant réalisable grâce au triplage ou à d'autres tech-

niques. [63]

## 2.3 Mécanisme de detection

Nous avons vu de quelle manière des ondes acoustiques de surface peuvent être générées par acoustique picoseconde grâce à la nanostructuration de la surface de l'échantillon. Mais la question du mécanisme à l'oeuvre lors de la détection de ces ondes reste en suspens. Le signal issu des ondes de surfaces que l'on détecte possède différentes caractéristiques : une durée de vie très grande et une amplitude importante. De plus, il faut que la longueur d'onde de sonde soit plus petite que la période du réseau, $\lambda \leq a$. Le mécanisme de détection doit être capable d'expliquer toutes ces caractéristiques.

L'une des difficultés pour déterminer le mécanisme de détection est de faire la différence entre les modes de vibrations individuelles des nanostructures et les modes de vibrations du réseau à l'origine des ondes de surface. En effet, dans la référence[34], H.J. Maris utilise des réseaux de lignes d'or sur substrat de quartz avec des périodes de 400, 600 et 800 nm qui sont sondés par un laser de longueur d'onde 596 nm. Dans tous les réseaux, des oscillations longue durée ($\geq$1 ns) sont détectées. Toutefois, ces signaux sont attribués à des modes de vibrations des lignes d'or. Car il n'y a pas de variation de la fréquence de vibration avec la période du réseau. Dans d'autres travaux menés par D.H. Hurley *et. al.*, [24] des vibrations sont détectées et attribuées à des vibrations collectives. Cependant, la durée de vie de ces oscillations est plus proche de celle des modes individuels. De plus, ils n'ont réalisé leurs expériences que sur un seul réseau, il est donc difficile de juger du caractère collectif ou non sans connaître la variation de la fréquence en fonction de la période des réseaux.

Depuis la première observation de modes de surface en acoustique picoseconde divers mécanismes ont été proposés, on peut citer le modèle photo-élastique, [9] la modulation de l'intensité diffractée par le réseau sous l'influence des vibrations [16] ou la détection du déplacement de la surface provoqué par les ondes. [59] Nous avons voulu, pour notre part nous intéresser à une autre possibilité qui est le couplage des ondes acoustiques avec un plasmon de surface, phénomène qui a déjà été observé en diffusion Brillouin. [44]

Ici nous allons détailler ces mécanismes, en essayant d'avoir un raisonnement critique sur les raisons pour lesquelles il faut, ou non, les inclure dans la discussion sur la détection.

### 2.3.1 Le mécanisme photo-élastique

Lors de la première observation de modes de surface, [9] Bonello *et al.* ne s'intéressent pas au mécanisme de détection, ils attribuent la détection au mécanisme le plus répandu en acoustique picoseconde, c'est-à-dire le modèle photo-élastique. [61] L'une des particularités de ce mécanisme est la forte dépendance de la réponse à la longueur d'onde de sonde. [12, 11] Par exemple, des expériences sur la réponse en longueur d'onde ont été réalisées dans un transducteur de 10 nm d'aluminium sur une couche de nitrure de silicium sur un film de tungstène. L'écho qui provient de l'interface $Si_3N_4$/W et qui est détecté par le transducteur d'aluminium est très dépendant de la longueur d'onde de sonde. De part et d'autre de 850 nm, l'écho change de signe. Dans le cas des réseaux de nanostructures, si le critère de diffraction est vérifié, c'est-à-dire $\lambda \leq a$ et que l'on détecte donc les modes collectifs, si on fait varier la longueur d'onde de sonde autour de la transition à 850 nm, on n'observe pas de changement du signal, cela permet d'écarter le modèle photo-élastique de la discussion. Il est à noter que les modes individuels dont on a parlé au début de ce chapitre, Fig. 3, subissent une inversion de signe autour de 850 nm ce qui confirme qu'ils sont détectés par le mécanisme photo-élastique. [52]

### 2.3.2 La diffraction

Comme nous l'avons vu précédemment, il existe une condition pour pouvoir détecter les modes collectifs : la longueur d'onde de la sonde doit être plus petite que la période du réseau, $\lambda \leq a$. Cette condition est également une condition pour que la sonde soit diffractée par le réseau. Dans l'étude menée par C. Gianetti *et al.*, [16] le mécanisme de détection est attribué à une variation de l'intensité diffractée sous l'influence des modes de vibrations des nanostructures. Celles-ci sont des disques de permalloy sur un substrat de silicium.

Dans ces travaux, la détection acoustique est vue comme une modulation de l'intensité diffractée sous l'influence de la variation du rayon des disques. C'est pourquoi toutes les expériences sont réalisées sur l'ordre 1. Il est expliqué que l'on observe plus de signal sur le premier ordre de diffraction que sur l'ordre 0. L'intensité du signal est calculée pour chaque ordre, et pour l'ordre 0, ils obtiennent :

$$\frac{\delta I_{Refl}}{I_{Refl}} = \frac{(R_{Py} - R_{Si})2\pi a \delta a}{R_{Si}D^2 + (R_{Py} - R_{Si})\pi a^2} \simeq 0.28\frac{\delta a}{a} \tag{2.23}$$

où $a$ est le rayon des disques de permalloy, $D$ est le pas du réseau, $\delta a$ est la variation du rayon en fonction du temps et $R_{Py}$ et $R_{Si}$ sont respectivement le coefficient de réflexion

optique de l'interface air/permalloy et de l'interface air/silicium. Nous avons représenté sur la figure 2.18 le changement de diamètre des disques de permalloy sur silicium sous l'influence du faisceau pompe.

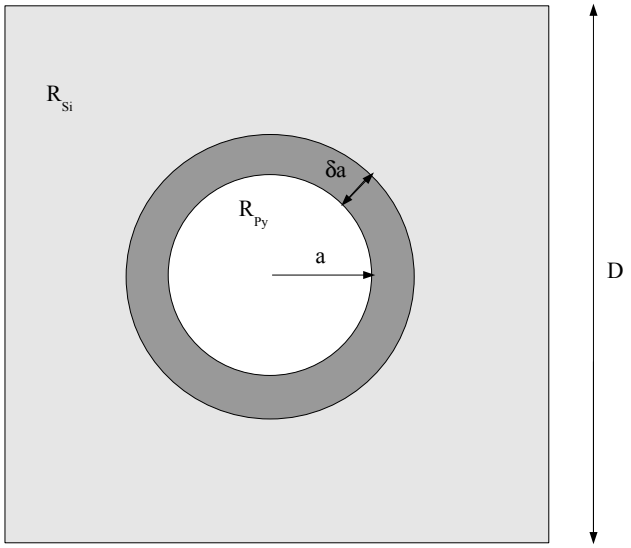


FIGURE *2.18: Représentation schématique du changement de diamètre des disques de permalloy sur silicium sous l'influence du faisceau pompe*

On peut essayer d'expliquer physiquement l'équation 2.23, ce résultat consiste à dire que comme le permalloy et le silicium ont des réflectivités optiques différentes, si le rapport entre l'aire de la surface de permalloy et celle de la surface de silicium change, la réflectivité globale change. Nous allons voir plus tard que ce résultat est remis en question dans le cadre de nos expériences.

En ce qui concerne l'ordre 1, ils obtiennent :

$$\frac{1}{I_{1,diff}}\frac{\partial I_{1,diff}}{\partial a}\delta a = 2G\frac{J_0(Ga)}{J_1(Ga)}(R_{Py}+R_{Si})\delta a \simeq 2.5\frac{\delta a}{a} \tag{2.24}$$

où G est un vecteur du réseau réciproque et $J_0(Ga)$ et $J_1(Ga)$ sont des fonctions de Bessel. Ici, le signal est dû à une variation de l'intensité diffractée causée par la modification de la taille des disques.

D'après ces calculs, l'intensité du signal obtenu sur l'ordre 1 est améliorée d'un facteur $2.5/0.28 = 9$ par rapport à l'ordre 0. Afin d'améliorer notre propre intensité du signal, nous avons également voulu effectuer des expériences sur le premier ordre de diffraction. Sur la figure 2.19, nous avons représenté les signaux obtenus sur les différents ordres de diffraction. Afin de pouvoir comparer les rapports signal sur bruit, nous avons normalisé les signaux par rapport à l'intensité de sonde.

Il semble que les intensités des signaux soient sensiblement les mêmes entre l'ordre 0

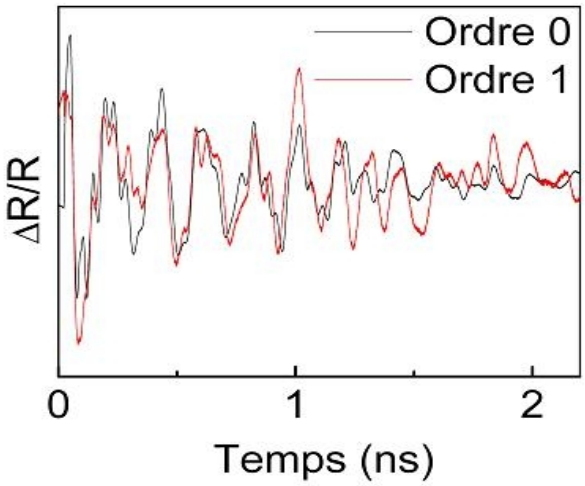


FIGURE *2.19: Signaux normalisés obtenus sur les différents ordres de diffraction sur un réseau de période 500 nm sur une sous-couche d'Al de 28 nm déposée sur un film de $SiO_2$ de 600 nm sur substrat Si.*

et l'ordre 1 dans le cadre de notre échantillon. Afin de comprendre l'origine des différences entre ces expériences, nous avons appliqué les calculs de Gianetti à notre structure. Dans le cas de l'équation (2.24), le facteur de forme, ainsi que les réflectivités sont modifiés. Nous obtenons une intensité du signal qui est dépendante des changements de tailles de nos plots. Si l'on applique maintenant l'équation (2.23) à notre échantillon, où les plots et la sous-couche sont tous deux en aluminium, on obtient un signal nul sur l'ordre 0, car la réflectivité optique est la même pour les plots et la sous-couche, ce qui n'est pas le cas expérimentalement, comme on peut le voir sur la figure 2.19. Les différences obtenues entre les ordres dans les travaux de Gianetti *et. al.* proviennent de l'utilisation de matériaux différents pour la réalisation de la structure et de la sous-couche.

Le fait que l'on obtienne le même signal sur les différents ordres de diffraction permet de conclure que la diffraction ne joue pas le rôle escompté par Gianetti *et al.* dans la détection des modes collectifs.

### 2.3.3 Le déplacement

Nous allons maintenant nous pencher sur un autre mécanisme de détection qui a été proposé : la détection acoustique est due à une mesure du déplacement de la surface sous l'effet des vibrations collectives.

#### Des expériences similaires

Une autre possibilité qui a été émise est la détection du déplacement de la surface sous l'influence des ondes. [59] Ces expériences ont été menées dans le groupe de K. Nelson. Les échantillons sont constitués de lignes de Nickel sur un substrat de saphir. La particularité de cette expérience est que la sonde utilisée est une sonde UV extrême. Tout comme nous, les expériences sont réalisées sur l'ordre 0. La longueur d'onde de la sonde est de 29 nm, ce qui permet de vérifier le critère de diffraction pour des réseaux beaucoup plus petits. Dans ces expériences, il étudie des réseaux de lignes de 80 nm de largeur et de 160 nm de période, obtenant des modes collectifs à une fréquence de 40 GHz. Le mécanisme invoqué pour la détection des ondes de surface est la mesure du déplacement de cette surface. En effet, à ces longueurs d'onde, les variations de réflectivité provoquées par la détection photo-élastique sont 50 fois plus faibles que celles causées par le déplacement. [63] Toutefois, il faut également remarquer que le critère de diffraction est en permanence vérifié, il est donc normal de détecter les modes collectifs, et ceci même avec un système uniquement sensible au changement de réflectivité. Ces résultats sont donc compatibles avec les nôtres et la mesure du déplacement de la surface comme mécanisme de détection n'est donc pas prouvée.

#### Une détection interférométrique

D'autres expériences laissent penser que la mesure du déplacement de surface pourrait être à l'origine de la détection des ondes de surface. Ces expériences ont été réalisées par D.H. Hurley *et al.*, la particularité de toutes ces expériences est qu'elles sont réalisées avec un dispositif interférométrique qui permet d'être sensible au déplacement de la surface.[23, 22] Ces travaux ont été réalisés avec des réseaux de lignes de période plus faible que la longueur d'onde, on ne vérifie donc pas le critère nécessaire à la détection des modes collectifs, $\lambda \leq a$. Cependant des modes collectifs sont détectés, ce qui est contradictoire avec nos expériences, sauf si cela est propre à la détection interférométrique. Or l'interférométrie permet d'être sensible aux déplacements des interfaces. Ces expériences laissent donc penser que la mesure du déplacement joue un rôle dans la détection des modes collectifs.

#### De nouvelles pistes

Le déplacement est donc a priori un candidat sérieux pour expliquer la détection. Les expériences menés par K. Nelson *et. al.*, [63, 59] où la sonde est soi-disant uniquement sensible au déplacement, ont montré la détection de modes collectifs. Dans les études menées par D.H. Hurley, [23, 22] la détection de modes collectifs a été possible bien que le critère $\lambda \leq a$ ne soit pas vérifié. Ceci est peut être causé par la détection interférométrique qui est sensible au déplacement. Pourtant nous arrivons à détecter des modes collectifs

bien que notre dispositif expérimental ne permette de réaliser que des expériences de réflectométrie, puisque nous n'utilisons pas d'interféromètre. Le critère de diffraction est peut-être la raison de la détection du déplacement en réflèctométrie. En effet, si ce critère est vérifié, notre sonde peut être réfléchie par les plots, mais également par la sous-couche, ce qui n'est pas possible hors du critère de diffraction, où la sonde ne "voit" qu'une seule couche. Nous sommes donc peut-être sensibles, non pas au déplacement de la surface, mais au déplacement relatif d'une surface par rapport à l'autre.

Pour confirmer le rôle de la mesure du déplacement il serait intéressant d'effectuer diverses expériences sur les réseaux. Par exemple, on peut effectuer des expériences sur différents réseaux de plots où seule la hauteur des plots serait modifiée. Ainsi, si l'on est sensible au déplacement relative de la surface supérieure des plots par rapport à la surface de la sous-couche, on espère observer des modifications du signal, par exemple, un déphasage des modes collectifs. Une autre expérience que l'on peut imaginer serait de générer une onde acoustique d'un côté de l'échantillon, où la surface est plane et de détecter cette onde sur l'autre face qui serait nanostructurée. Ainsi, nous avons une impulsion acoustique longitudinale qui est bien connue, et une détection différente suivant la longueur d'onde, quand le critère $\lambda \leq a$ est vérifié ou pas.

### 2.3.4 La plasmonique

La dernière possibilité que nous allons étudier est la plasmonique. Un plasmon de surface est une oscillation collective des électrons libres à la surface d'un métal. Le plasmon, ainsi que les modes collectifs, étant des excitations de surface, l'idée d'un couplage n'est donc pas impossible. Ce couplage plasmon-phonon a même déjà été observé précédemment. [44, 65] Pourtant l'aluminium n'est pas un des métaux de référence de la plasmonique comme peuvent l'être l'or ou l'argent. Nous avons donc voulu améliorer notre connaissance du plasmon et voir s'il ne joue pas un rôle dans la détection des modes de surface.

#### Excitation des plasmons de surface par un faisceau lumineux

Nous allons tout d'abord nous intéresser à l'excitation, grâce à des faisceaux lumineux, de plasmon de surface. On ne peut pas exciter directement le plasmon avec de la lumière, comme on peut le voir sur la figure 2.20, les relations de dispersion de la lumière et du plasmon de surface ne s'intersectent pas, ce qui rend impossible le couplage entre les deux.

Afin de réaliser ce couplage entre lumière et plasmon, on peut avoir recours à différents subterfuges pour modifier la relation de dispersion de la lumière. Premièrement,

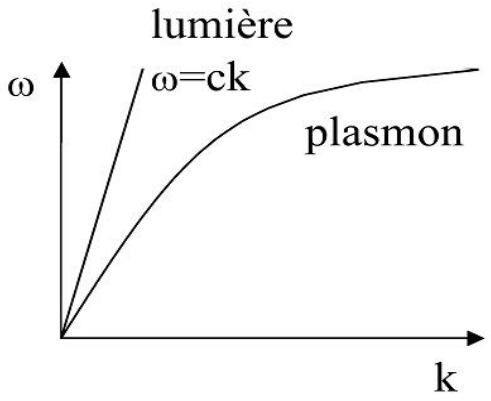


FIGURE *2.20: Relation de dispersion de la lumière et du plasmon de surface*

si l'on fait passer le faisceau lumineux par un matériau d'indice plus élevé avant d'atteindre la surface métallique, on va modifier sa vitesse. La relation n'est plus $\omega = ck$ mais $\omega = ck/n$. Graphiquement, cela va modifier la pente de la relation de dispersion de la lumière et créer un point d'intersection comme sur la figure 2.21.

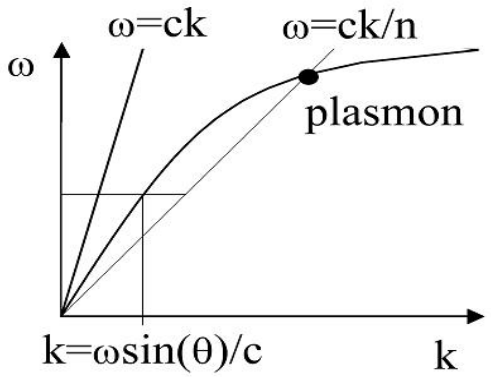


FIGURE *2.21: Relation de dispersion de la lumière en présence et absence de prisme et du plasmon de surface*

De cette manière, un plasmon est généré à l'interface métal-air. Cette technique d'excitation du plasmon est dite de Kretschmann-Raether. Il faut toutefois noter que comme le plasmon est une excitation de surface, c'est la composante parallèle à la surface du vecteur d'onde de la lumière qui est à l'origine du couplage. En incidence normale, comme l'indique le point sur la figure 2.21, il n'existe qu'une longueur d'onde où le couplage a lieu. Cependant, il est possible de trouver un angle d'incidence qui permettra à une longueur d'onde donnée de réaliser le couplage. Pour cela, il faut faire varier la projection du vecteur d'onde sur la surface ($k_{//}$), il faut donc que la polarisation du faisceau lumi-

neux appartienne au plan de rotation de l'échantillon. Il faut ensuite vérifier la relation suivante :

$$k_{//} = \frac{\omega}{c} = k_{plasmon} \tag{2.25}$$

Il est ainsi possible de réaliser le couplage photon-plasmon dans notre gamme de longueurs d'onde. Nous verrons plus précisément les conditions expérimentales ultérieurement.

La seconde méthode permettant de réaliser le couplage lumière-plasmon consiste en l'utilisation d'un réseau de diffraction, comme sur la figure 2.22. Grâce à ce réseau, nous allons obtenir différents ordres de diffraction. Pour chaque ordre, le vecteur d'onde est modifié de la manière suivante :

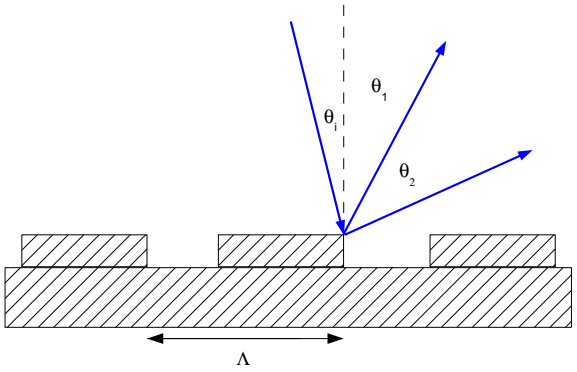


FIGURE *2.22: Reseau de diffraction de période a et diffraction de la lumière*

$$k_n sin(\theta_n) = \frac{\omega}{c} sin(\theta_i) + n\frac{2\pi}{a} \tag{2.26}$$

où $k_n$ est le vecteur d'onde du n-ième ordre de diffraction, $\theta_n$ est l'angle que forme le n-ième ordre avec la normale à la surface, $\theta_i$ est l'angle d'incidence et $a$ est la période du réseau de diffraction.

L'utilisation d'un réseau de diffraction a pour effet de périodiser la surface de l'échantillon, cela permet de limiter l'étude à la première zone de Brillouin. Si on essaye d'interpréter cela graphiquement, la périodisation replie la relation de dispersion du plasmon au sein de la première zone de Brillouin, on arrive ainsi à créer des points d'intersection, comme on peut le voir sur la figure 2.23.

On remarque qu'il existe de nombreuses similitudes entre cette seconde méthode de génération du plasmon de surface et les expériences que nous avons réalisées sur nos réseaux. Sous nos plots, nous déposons une sous-couche d'aluminium, dans laquelle un

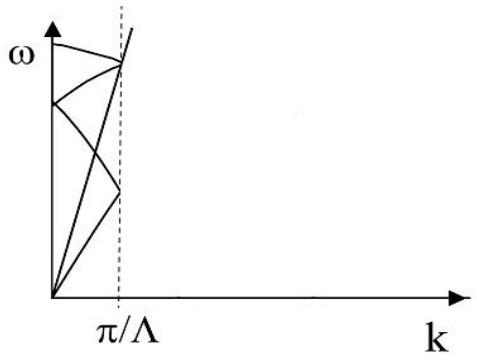


FIGURE *2.23: Relation de dispersion du plasmon et de la lumière dans le cas d'une surface périodique*

plasmon de surface peut être excité. De plus, pour exciter un plasmon, il faut que la diffraction ait lieu, donc que le critère $\lambda \leq a$ soit vérifié. On retrouve le même critère que pour la détection des modes collectifs dans nos échantillons.

### Expériences

Comme nous l'avons vu, nos expériences ressemblent à la deuxième méthode de génération du plasmon. Pour vérifier le rôle que joue le plasmon dans la détection, nous avons réalisé différentes expériences. Tout d'abord, nous avons voulu vérifier que nos échantillons ont bel et bien un caractère plasmonique. Pour cela nous devons d'abord éclaircir quelques points sur la configuration Kretschmann-Raether.

Un faisceau lumineux qui est envoyé à travers le prisme est réfléchi aux différentes interfaces. La reflectivité globale de ce faisceau est donnée par : [51]

$$R = \mid r \mid^2 = \left| \frac{r_{21} + r_{10} e^{2ik_{z1}d}}{1 + r_{21} r_{10} e^{2ik_{z1}d}} \right|^2 \tag{2.27}$$

Une simulation de la réflectivité d'un film de 12 nm d'aluminium à une longueur d'onde de 520 nm en fonction de l'angle d'incidence est représenté sur la figure 2.24.

On observe pour une certaine valeur de l'angle d'incidence une rapide chute de la réflectivité. Cette chute correspond à la résonance de plasmon de surface où la quasi-totalité de la lumière se couple avec le plasmon.

Afin de vérifier que nos échantillons sont bien plasmoniques, nous avons effectué cette expérience de mesure de réflectivité sur un échantillon constitué d'un substrat de pyrex, sur lequel on a déposé une couche de 12 nm d'aluminium. On place ensuite un prisme semi-sphérique sur le substrat de pyrex. Cette expérience est représentée sur la figure 2.25(b).

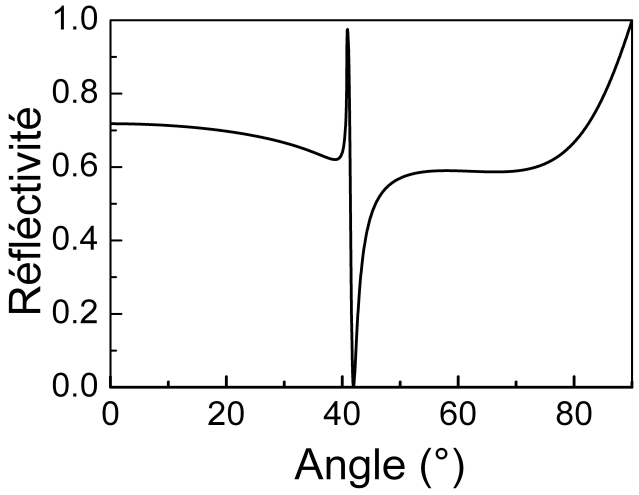


FIGURE *2.24: Simulation de la réflectivité dans la configuration Kretschmann-Raether d'un film d'aluminium de 12 nm d'épaisseur sur substrat Pyrex en fonction de l'angle d'incidence à 520 nm.*

Nous avons représenté sur la figure 2.25(b), la résonance plasmon simulée, ainsi que les variations de réflectivité obtenues expérimentalement à 520 nm. Nous avons choisi de réaliser cette expérience à une longueur d'onde de 520 nm car, comme on peut le voir sur la simulation, la résonance plasmon est très prononcée à cette longueur d'onde.

On voit qu'expérimentalement la résonance a bien lieu à l'angle attendu. Cependant, on remarque que la chute de réflectivité est moins prononcée. Notre laser étant impulsionnel, notre faisceau n'est pas monochromatique. C'est cette largeur spectrale qui a pour effet d'atténuer la chute de réflectivité. Néanmoins, nous avons bel et bien montré le caractère plasmonique de nos échantillons.

Nous avons alors mis au point une expérience pour mettre en évidence le rôle du plasmon dans la détection des modes de vibrations collectifs. Il a fallu pour cela modifier le montage expérimental. Dans les expériences "classiques" sur les réseaux, le faisceau pompe et le faisceau sonde arrivent tous les deux directement sur les plots. De cette manière, la sonde est diffractée par le réseau et un plasmon est excité. Maintenant, si nous voulons dissocier le réseau et le plasmon, il faut exciter le plasmon sans avoir recours au réseau, c'est-à-dire avec la sonde dans une configuration Kretschmann-Raether. De cette manière, nous conservons exactement la même génération. En ce qui concerne la détection, nous sommes toujours dans une configuration plasmonique, mais sans avoir besoin d'utiliser de réseau. Nous avons représenté sur la figure 2.26 la nouvelle configuration expérimentale.

Nous avons tout d'abord effectué des expériences en plaçant les faisceaux pompe et sonde en dehors des réseaux. Cela nous a permis de reproduire les résultats obtenus par

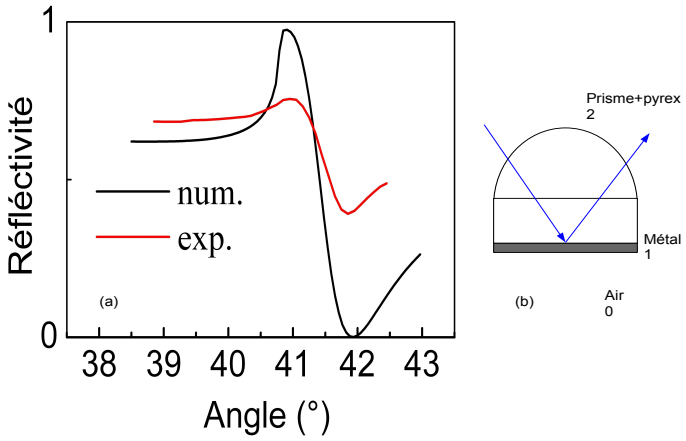


FIGURE *2.25: (a) Réflectivité simulée et expérimentale dans la configuration Kretschmann-Raether d'un film d'aluminium de 12 nm d'épaisseur sur substrat Pyrex en fonction de l'angle d'incidence à 520 nm. (b) Représentation schématique de la configuration de Kretschmann-Raether*

Wang et al. [69] Dans ces travaux, ils réalisent des expériences pompe-sonde dans un film d'or déposé sur un prisme. Il utilise alors la même configuration que celle de la figure 2.27 et sont capables de détecter le "ringing" de la couche d'or. L'intérêt de l'application de ces expériences à nos échantillons est de confirmer l'utilisation d'un film d'aluminium, qui n'est pas un matériau de référence en plasmonique. Dans cette étude, il est montré que le signe et l'amplitude du pic électronique sont modifiés par le plasmon. Si l'on se place avant, après ou en résonance la sensibilité est modifiée comme nous le montrons sur la figure 2.27, où le pic électronique est deux fois plus fort en résonance.

Ceci peut s'expliquer en considérant les changements de réflectivité en fonction de la partie réelle et la partie imaginaire de la constante diélectrique :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{1}{R}\left(\frac{dR}{d\epsilon_r}\Delta\epsilon_r + \frac{dR}{d\epsilon_i}\Delta\epsilon_i\right) \tag{2.28}$$

La pompe va induire une quantité fixe de $\Delta\epsilon_r$ et de $\Delta\epsilon_i$, et l'intensité et la forme du signal sont déterminées par $\left(\frac{dR}{d\epsilon_r}\right)$ et $\left(\frac{dR}{d\epsilon_i}\right)$. Il a été montré, [30] que $\left(\frac{dR}{d\epsilon_r}\right)$ et $\left(\frac{dR}{d\epsilon_i}\right)$ subissent des variations très importantes autour de la résonance plasmon. Ce qui explique ce changement de signe du pic électronique et la sensibilité accrue à la résonance. Cependant, du point de vue de l'acoustique, aucun changement n'est observé.

Nous avons ensuite réalisé les mêmes expériences, mais en plaçant le faisceau pompe sur les réseaux de plots. Étant donné l'épaisseur de la couche d'aluminium (12 nm), le faisceau sonde atteint tout de même le réseau. Pour supprimer les effets de génération du plasmon de surface par le réseau, il faut que la sonde ne soit pas diffractée, donc que $\lambda \leq a$. Nous avons choisi d'utiliser une longueur d'onde de sonde de 450 nm sur un réseau

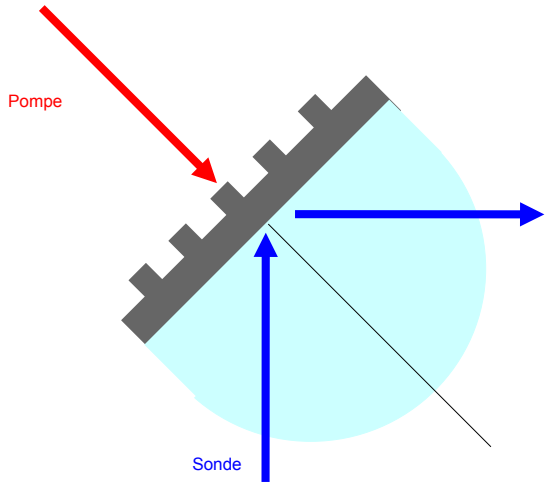


FIGURE *2.26: Représentation schématique de la configuration permettant de dissocier réseau et plasmon*

de plots de période 400 nm. Nous avons également utilisé une lame demi-onde afin de pouvoir faire tourner la polarisation de la lumière : quand la polarisation de la lumière est horizontale (i.e. dans le plan de rotation de l'échantillon), il est possible de générer un plasmon, alors qu'en polarisation verticale, le couplage n'a pas lieu. On a représenté sur la figure 2.28 les signaux obtenus pour les différentes polarisations à la résonance plasmon.

On remarque l'inversion du pic pour la polarisation horizontale, qui est la signature du plasmon. Cependant, il semble que les signaux soient identiques au signe près et que l'on arrive à détecter les modes collectifs, bien que ces derniers soient beaucoup plus faibles. Il existe alors deux possibilités pour appréhender ce résultat : soit le plasmon ne joue aucun rôle dans la détection, soit notre critère en longueur d'onde n'est pas vérifié et la détection a lieu de la même manière que dans les expériences "classiques". Et c'est cette deuxième possibilité qu'il faut retenir. En effet, avant d'atteindre le réseau, la sonde doit traverser le prisme de silice et au sein de la silice, la longueur d'onde n'est plus $\lambda = 450$ nm mais $\lambda/n = 300$ nm. Ainsi la sonde est diffractée par le réseau et la détection a lieu comme dans les expériences "classiques". Il faudrait fabriquer des réseaux de période inférieure à 300 nm, pour pouvoir réaliser cette expérience. Cependant, il devient alors difficile de faire également les expériences en configuration "classique".

### L'expérience fatale

Bien que l'excitation d'un plasmon améliore la sensibilité de la détection d'un point de vue électronique, comme nous l'avons vu précédemment, nous ne pouvons pour l'instant rien conclure sur le rôle du plasmon dans la détection des modes collectifs. Nous avons

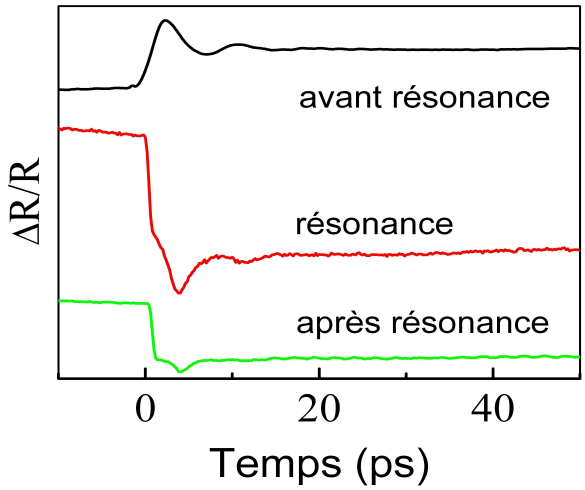


FIGURE *2.27: Dépendance de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence au voisinage de la résonance plasmon de surface à une longueur d'onde de sonde 400 nm et une longueur d'onde de pompe de 800 nm sur un échantillon comportant un film de 12 nm d'Al sur substrat Pyrex*

alors mis au point un nouvel échantillon permettant de peut-être exclure le plasmon de la détection. Le plasmon de surface étant généré dans une couche de métal, si nous obtenons des vibrations collectives dans un échantillon qui ne contient pas de sous-couche d'aluminium, nous pourrons exclure le plasmon de la discussion sur la détection.

Nous avons fabriqué un échantillon constitué de plots d'aluminium directement déposés sur un substrat de silicium. La figure 2.29(a), représente le signal obtenu sur le réseau de période 800 nm avec une longueur d'onde de sonde de 400 nm

On voit apparaître le signal caractéristique des modes collectifs, c'est-à-dire une grande amplitude et une durée de vie exceptionnelle. On retrouve également les facteurs remarquables entre les différents modes.

Sur la figure 2.29(b), nous avons reporté les fréquences observées sur les différents réseaux en fonction de l'inverse de la période. On remarque, qu'il n'y a pas de courbure des branches, en effet, comme il n'y a pas de sous-couche, il n'y a pas d'effet de chargement. On peut ainsi directement obtenir la vitesse de Rayleigh du silicium : $v_R^{Si}$=4.6 nm.ps$^{-1}$

Le plasmon de surface n'est donc pas responsable de la détection des modes de surface. Pourtant, l'utilisation de la résonance plasmon de surface en acoustique picoseconde n'est pas à exclure. Nous avons vu que cela permet d'augmenter la sensibilité de la détection. Bien que ces expériences nécessitent une structure d'échantillon spécifique, on peut imaginer avoir recours au plasmon en acoustique picoseconde. La résonance plasmon de surface est également très répandue en biologie pour la détection de molécule. [20] Le plasmon de surface pourrait se révéler d'un grand intérêt entre ces deux disciplines. [55]

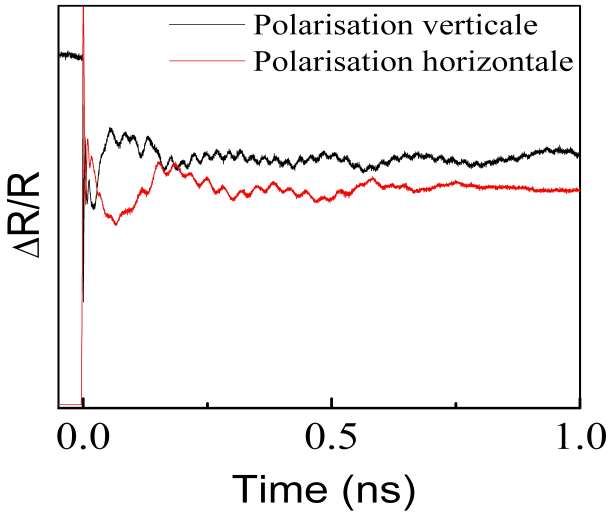


FIGURE *2.28: Réflectivité obtenue avec une polarisation horizontale (avec plasmon) et avec polarisation verticale (sans plasmon) sur un réseau de période 400 nm sur un échantillon comportant un film de 12 nm d'Al sur substrat Pyrex avec une longueur d'onde de sonde de 450 nm et une longueur d'onde de pompe de 900 nm*

## 2.3.5 Conclusion

Nous avons donc réalisé une étude sur les possibles mécanismes de détection des modes collectifs dans des échantillons nanostructurés. Nous avons été capables d'exclure des possibilités comme la diffraction ou la plasmonique de la discussion. Le déplacement semble être le mécanisme responsable de la détection, toutefois une étude plus détaillée, permettant de conclure définitivement est encore nécessaire.

### Synthèse

*Ce chapitre avait pour but de montrer la possibilité de générer des ondes de surfaces en acoustique picoseconde grâce à la nanostructuration. Grâce à la lithographie électronique, des réseaux de nanostructures de très petites dimensions ont été réalisés. Il a ensuite été démontré que la génération d'ondes acoustiques de surface est possible grâce à des vibrations collectives des motifs du réseau. La petite taille des réseaux permet d'atteindre des fréquences élevées (une dizaine de GHz). Un modèle analytique a ensuite été décrit, celui-ci permet de comprendre l'origine des vibrations observées, mais*

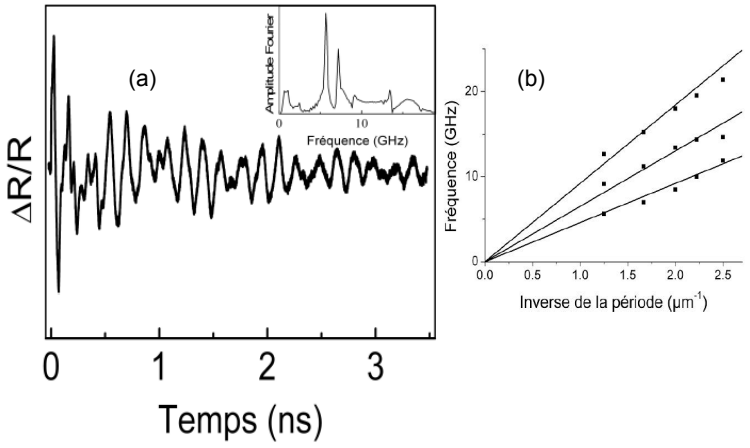


FIGURE *2.29: Changement de réflectivité obtenue sur un réseau de plots d'aluminium de période 800 nm directement déposé sur un substrat de silicium à une longueur d'onde de sonde de 400 nm et une longueur d'onde de pompe de 800 nm*

*également de prédire les fréquences des vibrations ainsi que la vitesse des ondes de surface. En combinant l'acoustique picoseconde sur transducteur "classique" et nanostructuré, une technique de caractérisation mécanique complète a été développée. Cette technique permet d'extraire simultanément le module de Young et le coefficient de Poisson dans des films minces. Cette technique a ensuite été confrontée à la nanoindentation, qui est à l'heure actuelle la technique de caractérisation mécanique la plus répandue. Contrairement à la nanoindentation, les effets de substrat ne sont pas présents en-dessous de 500 nm, bien que ces derniers se fassent ressentir pour des épaisseurs plus fines (en dessous de 200 nm). La technique de caractérisation mécanique complète a ensuite été utilisée pour suivre l'évolution des propriétés mécaniques de films minces suivant la température. Il est possible de suivre l'évolution du module de Young et du coefficient de Poisson suivant la température. Finalement le mécanisme de détection des ondes acoustiques de surface a été étudié. Les différentes hypothèses proposées dans la littérature ont été passées en revue. Il a été possible d'exclure certaines de ces hypothèses (mécanisme photo-élastique, diffraction, plasmonique). La mesure du déplacement de la surface semble être le mécanisme de détection, bien que des études complémentaires doivent être menées. L'étude du caractère plasmonique des échantillons, bien qu'elle ne permette pas de comprendre la détection des ondes de surface, a permis de voir que les domaines de l'acoustique picoseconde et de la plasmonique peuvent interagir.*

# Chapitre 3

# Les Boîtes Quantiques

*Plus la fréquence d'une onde acoustique est élevée, plus l'onde est sensible à des petites variations au sein du matériau qu'elle traverse. Grâce aux techniques d'épitaxie, il est maintenant possible d'obtenir des films ultra-minces et même des films d'épaisseur de l'ordre de quelques monocouches atomiques comme le graphène. Pour qu'une onde acoustique soit sensible à de telles structures, il faut que sa fréquence soit supérieure au terahertz, d'où le besoin d'une source acoustique terahertz. Actuellement, il a été démontré que l'on peut générer et détecter des ondes acoustiques terahertz grâce aux super-réseaux. [67, 27] Un super-réseau est une succession périodique de couches minces, la longueur d'onde de l'onde acoustique générée est donnée par la période du super-réseau. Néanmoins, la détection des ondes hautes fréquences dans ces structures n'a été observée qu'à basse température, là où l'atténuation est la plus faible. De plus, l'utilisation d'une telle structure complexifie les échantillons. Nous allons voir dans quelle mesure il est possible de générer des ondes acoustiques hautes fréquences avec une structure plus simple.*

*Les travaux présentés dans ce manuscrit font suite à la thèse de Fanny Poinsotte, [50] où la possibilité de génerer des ondes acoustiques grâce aux boîtes quantiques avait été démontrée.*

*Dans le premier chapitre, nous avons parlé du contenu fréquentiel des impulsions acoustiques générées par un faisceau lumineux : la déformation possède une fréquence principale théorique à une valeur $v/\zeta$, où $v$ est la vitesse des ondes acoustiques et $\zeta$ est la longueur de pénétration du faisceau lumineux dans le matériau. Cette fréquence théorique se situe entre 100 et 500 GHz.*

*On peut maintenant imaginer des transducteurs, dont l'épaisseur $h$ serait inférieure à la longueur de pénétration $\zeta$. La fréquence principale devient alors $v/h$. C'est dans ce cas de figure que se trouve l'intérêt des boîtes quantiques. En effet, il est possible de réaliser des boîtes quantiques d'InAs de quelques monocouches atomiques d'épaisseur. [21] Pour des boîtes quantiques*

*d'InAs de 2 nm d'épaisseur, dont la vitesse est de 3.83 nm.ps$^{-1}$, on va obtenir une fréquence centrale de l'ordre de 970 GHz.*

*Dans un premier temps, nous nous intéressons à la capacité des boîtes quantiques à générer des ondes acoustiques suite à l'illumination par une impulsion laser. On réalise une étude sur différents systèmes et on confirme que la génération a bien lieu dans le plan de boîtes quantiques. On s'intéresse également aux caractéristiques, comme l'amplitude, de l'onde générée.*

*Ensuite, on se focalise sur la détection du contenu haute fréquence généré par les boîtes. Grâce à un modèle que nous avons mis au point, nous sommes capables de connaître les conditions qui permettent la détection des hautes fréquences par mécanisme photo-élastique. La généralité de ce modèle est illustrée par une étude sur les échos du tungstène.*

*Pour finir, on synthétise l'ensemble des expériences qui ont été réalisées pour proposer un mécanisme de génération. On suit la dynamique des porteurs à l'origine de l'émission de l'onde acoustique et on s'intéresse à la zone d'émission exacte de l'onde acoustique.*

# 3.1 Génération d'ondes acoustiques par des boîtes quantiques

Une boîte quantique est un agrégat de matière confiné dans les trois dimensions. Cette petite taille lui confère des propriétés spécifiques. En ce qui nous concerne, cela doit permettre la génération d'ondes acoustiques très hautes fréquences. Mais avant de s'intéresser au contenu fréquentiel, il faut d'abord montrer que les boîtes quantiques peuvent générer des ondes acoustiques.

On va d'abord étudier différents échantillons comportant des boîtes quantiques semiconductrices. On s'attachera ensuite à justifier que l'émission provient bien du plan de boîtes et non pas de la surface ou d'une autre couche. Enfin, on se focalisera sur les boîtes quantiques d'InAs, qui ont la particularité de générer une onde acoustique avec une très grande amplitude.

## 3.1.1 Expériences

### InAs dans InP

Chronologiquement, les boîtes quantiques d'InAs dans InP sont les premières boîtes de type III-V à avoir été étudiées au laboratoire. [13] Les boîtes quantiques d'InAs ont été fabriquées, à l'INSA Rennes par O. Dehaese et N. Bertru, par la méthode Stranski-Krastanov sur de l'InP et sont ensuite recouvertes d'une autre couche d'InP. [47] Nous avons étudié un échantillon comportant deux plans de boîtes quantiques espacés de 460 nm et recouvert de 320 nm d'InP. Sur la figure 3.1, on peut voir le signal obtenu sur cet échantillon avec une pompe de 800 nm et une sonde de 400 nm.

On observe différentes contributions dans ce signal. Tout d'abord, à t=0 ps, on reconnaît le pic électronique issu des porteurs photogénérés. Juste après le pic, entre 5 et 10 ps, on observe une première oscillation. Ensuite, centrée à 70 ps, débute une seconde oscillation avec une amplitude exceptionnelle, puisque l'oscillation est plus grande que le pic électronique. On retrouve une contribution d'amplitude plus faible vers 140 ps. Puis de nouveau une oscillation importante autour de 170 ps. Il nous faut maintenant essayer de comprendre l'origine de chaque contribution. Pour cela nous allons étudier les différents temps de vol.

La vitesse des ondes acoustiques longitudinales dans l'InP est 4.58 nm.ps$^{-1}$ et l'épaisseur du cap 320 nm, si on a une génération par la surface et détection par les boîtes ou inversement, le temps de vol est t=320/4.58$\simeq$70 ps. La contribution très forte à

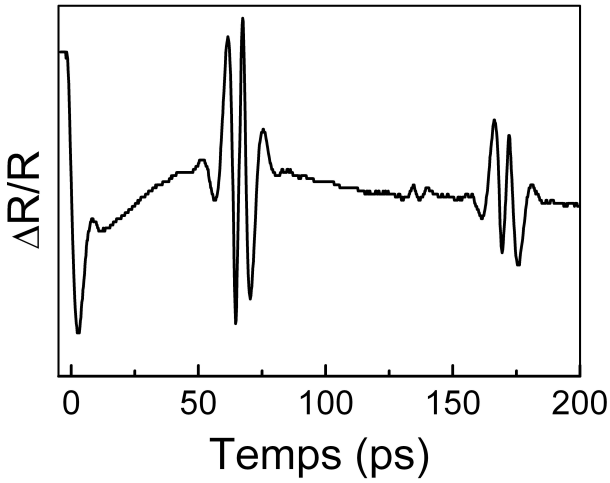


FIGURE *3.1: Changement de réflectivité obtenu sur un échantillon comportant deux plans de boîtes quantiques d'InAs séparés par 460 nm d'InP et recouvert par 320 nm d'InP pour une pompe à 800 nm et une sonde à 400 nm.*

70 ps correspond à la traversée de la distance surface-boîtes. Si on considère maintenant la contribution à 140 ps, ce temps de vol correspond au double du temps de vol précédent, on peut donc penser qu'il s'agit d'un aller-retour entre le plan de boîtes et la surface. Enfin la contribution à 170 ps est très similaire à celle de 70 ps, si l'on considère que l'on a un trajet entre la surface et le deuxième plan de boîtes, on obtient un temps de vol t=(320+460)/4.58≃170 ps.

En résumé, on est capable de connaître les distances parcourues par les ondes acoustiques, mais il reste toujours une incertitude sur la zone de génération puisque ces résultats peuvent être interprétés de deux manières différentes. Tout d'abord, on peut séparer les échos en deux types, ceux avec une très grande amplitude qui sont détectés à 70 et 170 ps et les autres avec une amplitude plus faible à 5 et 140 ps. On suppose que les contributions de chaque type ont une origine similaire. Les échos à 5 et 140 ps correspondent respectivement à la détection juste après la génération et après un aller-retour entre la surface et le premier plan de boîtes. Malheureusement, on ne peut pas dire si l'onde acoustique provient d'une génération par les boîtes ou par la surface. En ce qui concerne le premier type d'écho, on a vu que les temps de vol correspondent aux distances entre les plans de boîtes et la surface. Deux cas de figure se présentent, soit la génération a lieu à la surface et la détection a lieu dans les plans de boîtes quantiques, auquel cas, la détection par les plans est très efficace, soit la génération a lieu dans les boîtes et la détection se fait à la surface, ce qui voudrait dire que la génération est très forte. Nous verrons dans la prochaine partie quelle est la bonne interprétation.

### InAs dans GaAs

Nous avons étudié d'autres systèmes de boîtes quantiques de types III-V. A nouveau, il s'agit d'un échantillon, réalisé au LPN par J.M. Gérard, comportant un seul plan de boîtes d'InAs qui sont cette fois ci enfouies dans du GaAs. L'épaisseur du cap est de 180 nm. Étant donné les similarités entre cet échantillon et le précédent, nous avons décidé de faire des expériences dans les mêmes conditions. Le changement de réflectivité obtenu avec une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une sonde à 400 nm est représenté sur la figure 3.2.

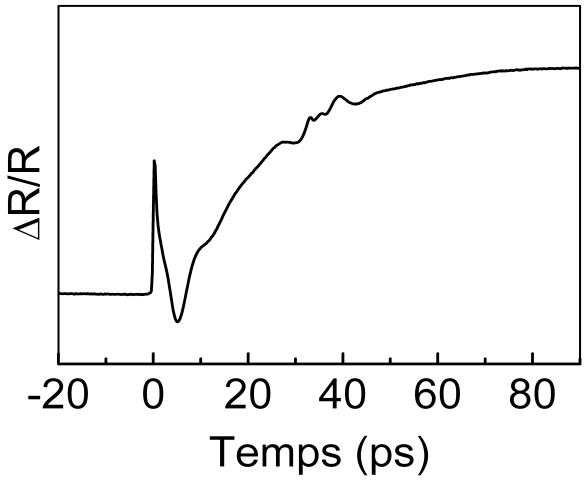


FIGURE *3.2: Changement de réflectivité obtenu sur un échantillon comportant un plan de boîtes quantiques de InAs recouvert par 180 nm de GaAs à une longueur d'onde de pompe de 800 nm et de sonde de 400 nm.*

Cette fois-ci, deux contributions sont discernables : une première juste après le pic électronique, qui comme dans le cas de l'InP est issue de la détection de l'onde acoustique juste après sa génération. La seconde est à nouveau plus forte que la première, le temps de vol est 38 ps, comme la vitesse de GaAs est de 4.73 nm.ps$^{-1}$, la distance parcourue est 180 nm. Il s'agit d'une traversée entre la surface et le plan de boîtes quantiques, mais nous ne pouvons toujours pas déduire l'origine de l'émission de l'onde acoustique. On peut signaler la grande similitude entre les expériences menées dans les échantillons d'InAs dans GaAs et ceux d'InAs dans InP.

### GaN dans AlN

Le dernier système de type III-V que nous avons étudié est constitué de boîtes quantiques de GaN enfouies dans l'AlN. Les échantillons de GaN dans AlN ont été fabriqués par B. Damilano au CHREA à Nice. La particularité des semiconducteurs nitrurés est que ces derniers possèdent des grandes bandes interdites. Nous avons décidé de réaliser

des expériences avec une pompe et une sonde bleues, qui ont donc des grandes énergies. Le changement de réflectivité obtenu avec une longueur d'onde de pompe et de sonde de 400 nm est représenté sur la figure 3.3.

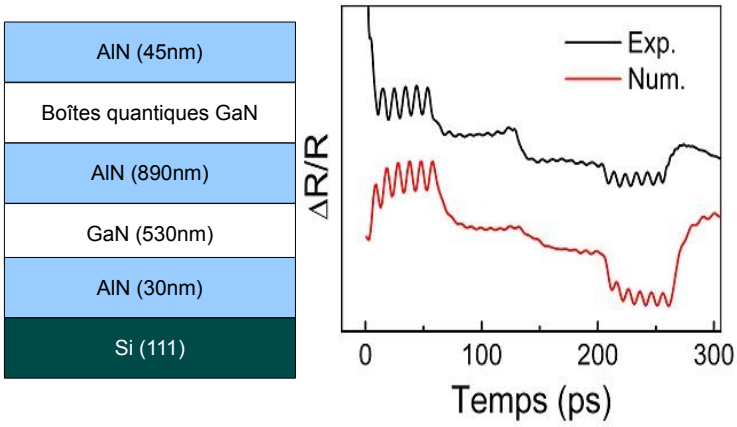


FIGURE *3.3: Changements de réflectivité expérimental et simulé obtenu sur un échantillon comportant un plan de boîtes quantiques de GaN dans AlN à des longueurs d'onde de pompe et de sonde de 400 nm.*

Ce signal possède de nombreuses contributions. En effet, comme les semiconducteurs nitrurés ont de grandes bandes interdites, pour qu'un photon soit absorbé, il doit posséder une énergie $\hbar\omega$ plus grande que cette bande interdite $E_g$. Les valeurs des bandes interdites sont respectivement 6.2 eV (200 nm) pour l'AlN et 3.4 eV (360 nm) pour GaN. Le GaN et l'AlN sont transparents à 400 nm (3.1 eV) et donne lieu à des oscillations Brillouin et à des sauts de réflectivité. Bien que ce signal soit complexe, nous avons des informations qui permettent de le comprendre plus facilement. Nous savons, par exemple, qu'à cette longueur d'onde, il est possible d'avoir une génération d'onde acoustique dans le Si, contrairement à l'AlN et le GaN, puisque ces derniers sont transparents. L'inconnu, à nouveau, est le rôle des boîtes quantiques. Afin de mieux comprendre ce signal, nous avons réalisé des simulations. Le signal de simulation numérique de la figure 3.3, reproduit très bien le signal expérimental, toutefois il existe une différence importante. L'échantillon que nous avons simulé ne possède pas de couches de boîtes quantiques, mais uniquement des couches d'AlN et de GaN sur substrat Si. Cela signifie que la génération provient du Si, que les premières oscillations Brillouin jusque t=70 ps, sont détectées dans le GaN, on a alors un saut de réflectivité causé par le passage du GaN à l'AlN. Ensuite jusqu'à t=140 ps, l'onde acoustique traverse la couche d'AlN jusqu'à la surface où elle est réfléchie. Le plan de boîtes quantiques est traversé mais ne laisse aucune trace sur le si-

gnal expérimental. La réflexion de l'onde acoustique à la surface libre provoque un second saut de réflectivité et l'onde parcourt de nouveau la couche d'AlN jusqu'à t=210 ps. On retrouve un saut de réflectivité puis les oscillations Brillouin du GaN. Il est possible de reproduire numériquement le signal expérimental sans donner de rôle aux boîtes quantiques, ni en génération, ni en détection. Cette simulation a donc permis de montrer que dans le cas des boîtes quantiques de GaN dans AlN, celles-ci ne jouent absolument aucun rôle à ces longueurs d'onde.

Nous avons vu que les boîtes quantiques ne jouent aucun rôle dans cet échantillon. Ceci peut provenir du fait que dans cette configuration l'énergie du faisceau pompe est inférieure aux énergies des bandes interdites de l'AlN, du GaN et des boîtes quantiques.

**SiGe dans Si**

Finalement, le dernier système étudié est composé de boîtes quantiques de type IV-IV, à savoir SiGe, enfouies dans du Si, fabriqué par O.G. Schmidt. L'épaisseur du cap de Si est de 160 nm. L'intérêt d'utiliser un tel système est que la détection dans le silicium est très efficace et très dépendante de la structure électronique. Il existe une transition électronique dans le silicium à 375 nm. On espère donc qu'en effectuant des expériences à cette longueur d'onde de sonde, nous serons capables de profiter d'une détection améliorée. Le changement de réflectivité obtenu avec une longueur d'onde de pompe de 750 nm et une longueur d'onde de sonde de 375 nm sur cet échantillon est représenté sur la figure 3.4.

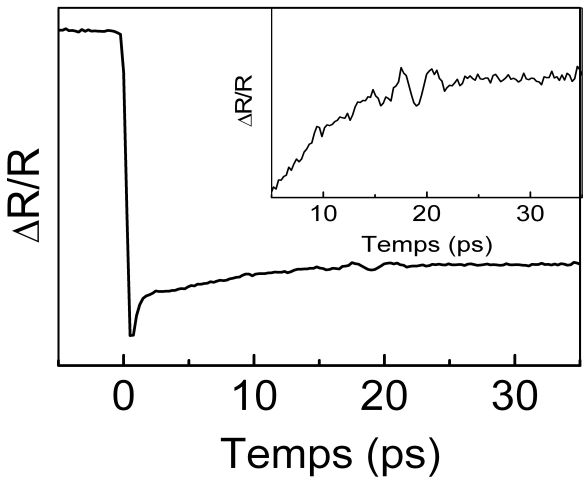


FIGURE *3.4: Changement de réflectivité obtenu sur un échantillon comportant un plan de boîtes quantiques de SiGe recouvert par un film de 375 nm de Si à une longueur d'onde de pompe de 750 nm et de sonde de 375 nm.*

Cette fois-ci, on détecte uniquement un écho à 19 ps. La vitesse du Si étant 8.43 nm.ps$^{-1}$, on obtient une distance parcourue de 160 nm, ce qui correspond à nou-

veau à la traversée de la distance séparant le plan de boîtes de la surface. Cependant, il existe des différences importantes entre cet échantillon et les précédents : on ne voit pas d'oscillations juste après le pic et le ratio entre le pic électronique et l'amplitude de l'écho est beaucoup plus faible.

Dans la prochaine partie, nous allons voir en quoi cette constatation permet de conclure sur l'origine des différentes contributions détectées dans les échantillons.

### 3.1.2 Génération par les boîtes

Nous venons de voir que dans le cas des boîtes quantiques de SiGe dans Si, on ne voit pas apparaître d'oscillations juste après le pic électronique. Cela est dû aux propriétés de Si. En effet, dans ces expériences nous utilisons une pompe dont la longueur d'onde est 750 nm. A cette longueur d'onde, la génération d'onde acoustique dans Si n'est pas suffisamment haute fréquence pour être détectée avec une sonde bleue. Nous avons vu que le contenu fréquentiel de l'onde acoustique est centré autour d'une valeur $v/\zeta$, or à une longueur d'onde de 750 nm, la longueur de pénétration $\zeta$ est très grande (3424 nm), le contenu fréquentiel est centré à 2.5 GHz et n'est donc pas assez haute fréquence pour être détecté par une sonde bleue. En effet, à 375 nm, les oscillations Brillouin sont attendues à une fréquence $f$ =288 GHz. L'écho détecté à 19 ps n'étant pas issu d'une génération dans le silicium, la seule origine possible est le plan de boîtes quantiques. Le temps de vol de 19 ps correspond bien à la traversée de la distance entre le plan de boîtes et la surface. Des résultats similaires, c'est-à-dire un temps de vol correspondant à la distance boîtes/surface, ont été observés sur un échantillon contenant 5 plans de boîtes quantiques de SiGe espacés par des épaisseurs variables de Si.

On peut également conclure sur la zone de génération en étudiant la détection. La longueur de pénétration dans le Si est de 20 nm à une longueur d'onde de 375 nm, comme le cap de Si a une épaisseur de 160 nm, la détection ne peut pas avoir lieu dans le plan de boîtes quantiques, mais à la surface de l'échantillon. Le temps de vol correspondant à la distance entre le plan de boîtes et la surface de l'échantillon, on peut affirmer que la génération provient bien du plan de boîtes. On a donc été capable de générer une onde acoustique dans le plan de boîtes quantiques de SiGe, cependant, on ne peut pas encore conclure pour les boites d'InAs.

Nous allons maintenant nous focaliser sur l'échantillon de boîtes quantiques d'InAs dans InP. Afin de pouvoir mieux discerner les effets de la pompe à 800 nm sur chaque partie de l'échantillon, nous avons réalisé des expériences de photoluminescence sur nos échantillons. Sur la figure 3.5, sont représentés les spectres de photoluminescence des

différentes parties de l'échantillon.

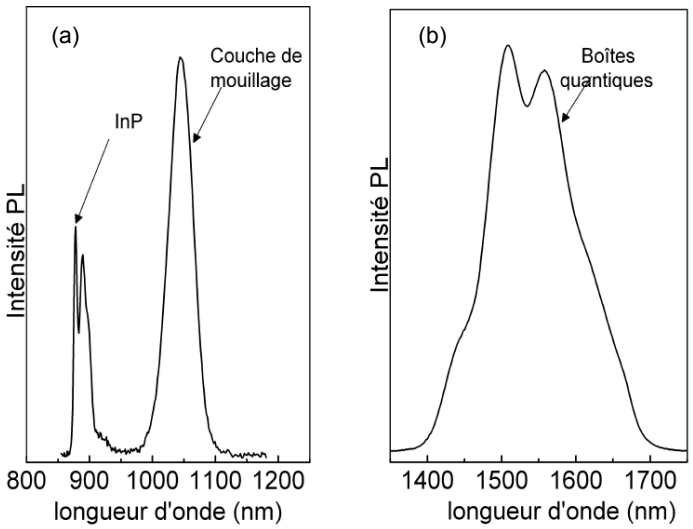


FIGURE *3.5: Spectre de photoluminescence obtenu sur un échantillon de boîtes quantiques comportant deux plans de boîtes quantiques d'InAs séparés par 460 nm d'InP et recouvert par un film de 320 nm d'InP*

Sur la figure 3.5(a), on peut distinguer deux contributions, celle de l'InP à 878 nm, et celle de la couche de mouillage à 1044 nm. Sur la figure 3.5(b), on voit la photoluminescence des plans de boîtes quantiques à 1510 et 1564 nm. On remarque que le spectre de photoluminescence des boîtes quantiques est beaucoup plus large que celui de la couche de mouillage et de l'InP. Cela peut s'expliquer par la dispersion en taille des boîtes quantiques.

D'après ces spectres, si l'on travaille à une longueur d'onde de pompe de 800 nm, on se situe très au-dessus de l'énergie de la bande interdite des boîtes quantiques et de la couche de mouillage. Le faisceau pompe va donc être absorbé dans ces deux régions. Par contre, pour l'InP, la longueur d'onde de pompe est assez proche de la valeur de la bande interdite. Le faisceau pompe va donc être partiellement absorbé par l'InP, mais cela n'empêche pas le faisceau d'atteindre le plan de boîtes. La longueur de pénétration d'un faisceau lumineux à 810 nm dans InP dépasse 1 $\mu$m. [13]

Si l'on s'intéresse maintenant aux effets de la sonde à 400 nm, on remarque que cette fois-ci l'énergie du faisceau lumineux est très supérieure à toutes les bandes interdites. La sonde bleue est donc fortement absorbée par l'InP. Si l'on fait une application numérique, la valeur du coefficient d'extinction de l'InP à 400 nm est $k = 1.735$, [46] la longueur de pénétration est donc : $\xi = \lambda/4\pi k \simeq$18 nm. Cette valeur est très faible devant l'épaisseur du cap, 320 nm, la sonde bleue n'atteint donc pas le plan de boîtes quantiques et la détection a donc uniquement lieu à la surface de l'InP.

Si l'on observe de nouveau les signaux obtenus à l'éclairage de ces considérations, on est maintenant capable de conclure sur l'origine de toutes les contributions. Comme la détection n'a lieu qu'à la surface, les premières oscillations entre 5 et 10 ps sont issues d'une détection à la surface de l'onde acoustique générée dans l'InP et qui se propage vers le substrat. De même, l'écho à 140 ps correspond à la détection de la même onde acoustique qui a été réfléchie par le premier plan de boîtes quantiques. Les deux échos ayant une forte amplitude sont eux générés par les boîtes et détectés à la surface. On peut tenir le même raisonnement sur l'échantillon de boîtes d'InAs dans GaAs pour démontrer que la génération a lieu dans le plan de boîtes. De plus, le mécanisme de détection est identique pour les ondes générées dans l'InP ou dans les boîtes, mais l'amplitude des échos est très différente. Cela suggère que la génération dans les boîtes est très efficace.

Nous avons donc vu qu'il est possible de générer des ondes acoustiques à l'aide de boîtes quantiques. De plus, cela semble être un résultat assez général, puisque la génération a été possible dans trois échantillons différents. Néanmoins, ils possèdent chacun leurs particularités, comme par exemple l'échantillon des boîtes d'InAs dans InP où l'amplitude des échos détectés est très grande. Nous allons maintenant nous intéresser à la génération et notamment l'amplitude de l'onde acoustique générée.

### 3.1.3 Génération forte

Nous venons donc de voir que la génération a lieu dans les plans de boîtes quantiques et que, dans le cas des boîtes d'InAs dans InP, l'amplitude de l'écho détecté est très grande. Nous allons essayer de donner une valeur quantitative de l'efficacité de la génération par les ondes acoustiques, tout d'abord en comparant la génération à celle de l'InP au sein du même échantillon. Ensuite, on comparera les efficacités de génération des boîtes et d'un film d'aluminium qui est notre transducteur usuel.

On va comparer l'efficacité de la génération par les plans de boîtes quantiques et celle par l'InP. Afin de pouvoir réaliser cette comparaison, nous avons effectué des simulations du signal expérimental. Nous avons représenté sur la figure 3.6, le signal expérimental, ainsi que diverses simulations.

Dans un premier temps, nous avons simulé la génération uniquement dans l'InP, en imposant une génération nulle dans les plans de boîtes quantiques. Le critère pour avoir un bon accord, est la reproduction des oscillations au début du signal. En effet, nous avons vu que ces oscillations proviennent de la génération en surface d'une onde acoustique dans l'InP. Le graphe désigné "Num. InP" sur la figure 3.6 correspond à cette simulation. On remarque que l'on obtient également des échos provenant des plans de boîtes, bien que l'on

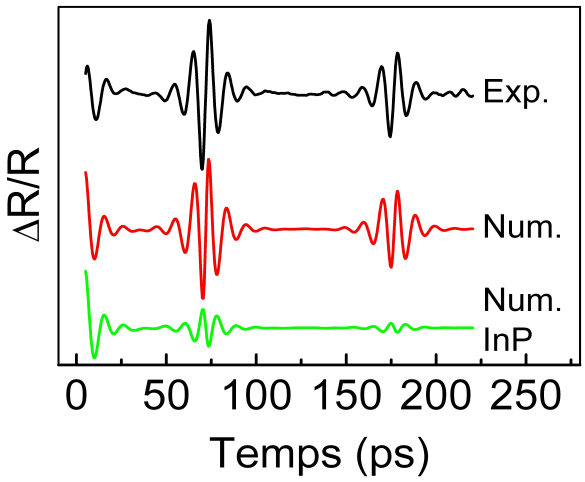


FIGURE *3.6: Changement de réflectivité expérimental à 810 nm obtenu sur un échantillon de boîtes quantiques comportant deux plans de boîtes quantiques d'InAs séparés par 460 nm d'InP et recouvert par un film de 320 nm d'InP, simulation avec génération dans les boîtes et l'InP et simulation avec génération uniquement dans l'InP*

y ait imposé une génération nulle. Cela provient en fait de la discontinuité introduite par les plans de boîtes dans le profil d'absorption et donc de génération. Ce profil d'absorption est décrit sur la figure 3.7. La déformation résultante de ce profil va également avoir des discontinuités qui sont détectées par mécanisme photo-élastique. Néanmoins ces échos ne peuvent pas correspondre aux structures détectées expérimentalement. Si l'on compare les échos provenant de la simulation et ceux obtenus expérimentalement, on remarque qu'ils sont de signes opposés. Pour reproduire les échos, il faut introduire une génération dans le plan de boîtes quantiques.

Une fois qu'on a simulé la génération dans l'InP, on s'attache à simuler la génération dans les boîtes. Le graphe désigné "Num." sur la figure 3.6 correspond à cette simulation. Le profil d'absorption correspondant est lui dessiné sur la figure 3.7. Pour réussir à obtenir les mêmes amplitudes des échos qu'expérimentalement, il faut considérer que la génération par le plan de boîtes quantiques est beaucoup plus forte que la génération dans InP. En effet, il faut introduire une génération forte pour compenser l'effet de la génération dans l'InP. Dans nos simulations, nous pouvons faire varier différents paramètres, ainsi pour modifier l'efficacité de la génération, nous jouons sur la dilatation de la couche. Si l'on compare les valeurs utiliser pour l'InP et pour les boîtes quantiques, on a un facteur 130 entre ces deux valeurs. Cela signifie donc que la génération dans les boîtes quantiques est 130 fois plus efficace que celle de l'InP.

Nous avons vu que l'efficacité de génération est nettement plus grande dans les boîtes

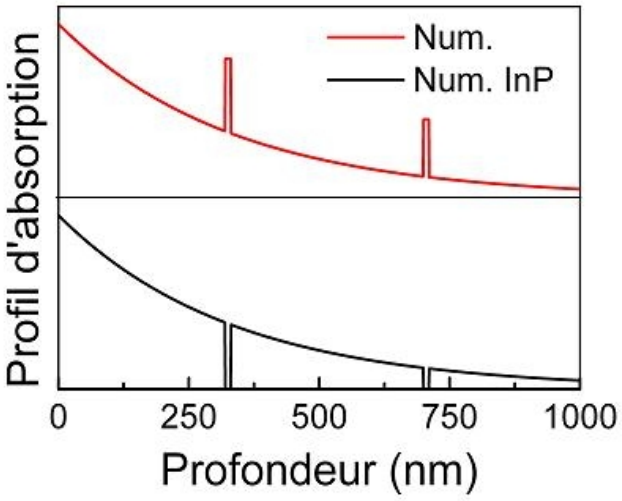


FIGURE *3.7: Profil d'absorption de l'échantillon de boîtes quantiques comportant deux plans de boîtes quantiques d'InAs séparés par 460 nm d'InP et recouvert par un film de 320 nm d'InP si l'on considère une génération dans la plan de boîtes ou pas.*

que dans l'InP. Néanmoins, nous n'utilisons pas habituellement l'InP comme transducteur, mais plutôt des films minces d'aluminium. A nouveau, si l'on fait le rapport entre la valeur de la dilatation pour les boîtes quantiques d'InAs et la valeur habituelle que l'on utilise pour l'aluminium, on obtient un rapport égal à 20. On peut donc considérer que la génération par les boîtes quantiques est 20 fois supérieure à celle d'un film mince d'aluminium. Il est donc envisageable d'utiliser les boîtes quantiques comme transducteur, malheureusement, la fabrication des boîtes quantiques n'est possible que sur des échantillons épitaxiés, ce qui limite fortement l'utilisation d'un tel transducteur.

### 3.1.4 Synthèse

Nous avons montré que les systèmes de boîtes quantiques permettent la génération d'ondes acoustiques. Dans trois systèmes différents, nous avons démontré que les boîtes quantiques étaient bien à l'origine de l'émission d'une impulsion acoustique courte. De plus, dans le cas des boîtes quantiques d'InAs dans InP, l'amplitude des échos montre que la génération par les boîtes quantiques d'InAs est très efficace. Si l'on compare la génération dans les boîtes à celle de l'aluminium, qui est le transducteur le plus utilisé, on constate que la génération est vingt fois plus efficace. On peut donc envisager l'utilisation de boîtes quantiques comme transducteur d'ondes acoustiques pour des échantillons épitaxiés.

## 3.2 Hautes fréquences

### 3.2.1 Limitations et améliorations

Nous avons vu dans la partie précédente que la détection des ondes acoustiques générées par les plans de boîtes avait lieu en surface, c'est à dire dans l'InP. Le signal détecté est composé d'une partie oscillante, connue en détection photo-élastique comme oscillation Brillouin, et qui proviennent d'interférences entre une partie du faisceau sonde qui est réfléchie par la surface de l'échantillon et une autre partie qui pénètre dans l'échantillon et qui est réfléchie par l'onde acoustique qui se propage. La fréquence de ces oscillations, en incidence normale, est donnée par $f = 2nv/\lambda$. [61] A une longueur d'onde de sonde de 400 nm, sachant que la vitesse de l'InP est 4.58 nm.ps$^{-1}$ et que l'indice à 400 nm vaut 4.415, [46] on obtient une fréquence des oscillations Brillouin autour de 100 GHz. La détection photo-élastique, à travers les oscillations Brillouin, favorise la détection d'une fréquence de l'onde acoustique. On peut donc conclure que l'onde acoustique possède des composantes à 100 GHz. Si l'on compare à la valeur calculée au début de ce chapitre, 970 GHz, on se rend compte que l'on est loin d'atteindre la valeur souhaitée.

En observant la formule donnant la fréquence des oscillations Brillouin, $f = 2nv/\lambda$, on remarque qu'afin d'augmenter cette fréquence, il existe différentes possibilités : on peut diminuer la longueur d'onde, mais il faut pour cela qu'il n'y ait pas de variation trop importante de l'indice, ou on peut changer la vitesse en modifiant la cristallographie de l'échantillon. Nous avons appliqué ces deux méthodes, en commençant par le changement de cristallographie.

Nos échantillons sont réalisés par épitaxie, [47] ils consistent en des plans de boîtes quantiques d'InAs enfouis dans de l'InP et il est possible de faire croître des boîtes quantiques sur de l'InP(100) ou (311). Un changement de cristallographie influe sur la vitesse des ondes acoustiques car les coefficients élastiques ne sont pas les mêmes dans les différentes directions. Nous avons donc réalisé des expériences dans les deux types d'échantillons. Sur la figure 3.8, les échos des ondes acoustiques issues des boîtes quantiques sont représentés, ainsi que leurs transformées de Fourier, dans les deux types de cristallographie de l'InP à une longueur d'onde de pompe de 900 nm et une longueur d'onde de sonde de 450 nm.

Sur la figure 3.8(a), on peut voir que les oscillations sont plus rapides dans l'InP(311) car la vitesse des ondes acoustiques y est plus grande. [32] Si l'on s'intéresse maintenant au contenu fréquentiel, on voit que l'on passe de 90 GHz pour l'InP(100) à 100 GHz pour l'InP(311). Bien que l'on observe une augmentation de la fréquence causée par le

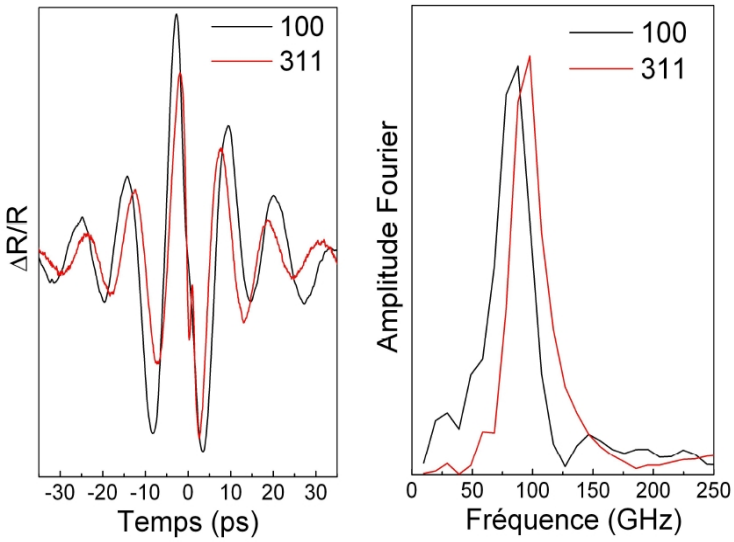


FIGURE *3.8: (a) Changement de réflectivité provoqué par l'impulsion acoustique issue des boîtes quantiques détecté à la surface de l'échantillon à une longueur d'onde de sonde de 450 nm et une longueur d'onde de pompe de 900 nm dans l'InP(100) et l'InP(311). (b) Transformée de Fourier des signaux.*

changement de vitesse, nous n'avons augmenté que de 10 GHz.

On a légèrement augmenté la fréquence des oscillations Brillouin grâce à l'utilisation d'un échantillon où l'InP est orienté selon la direction (311). Nous allons conserver cet échantillon et explorer d'autres voies pour augmenter la fréquence des oscillations. La deuxième option est la descente en longueur d'onde. Dans la réference [13], l'effet du changement de longueur d'onde sur la fréquence des oscillations Brillouin dans des échantillons de boîtes quantiques a déjà été abordé avec une sonde doublée. Si nous voulons atteindre des fréquences plus élevées, nous devons descendre encore plus bas en longueur d'onde et pour cela, nous avons mis au point un générateur de troisième harmonique, qui permet d'atteindre des longueurs d'onde dans l'UV moyen (250 nm) en régime femtoseconde. Ce dispositif est illustré sur la figure 3.9.

Le principe de ce montage tripleur réside dans la possibilité de réaliser la somme d'harmoniques dans des cristaux non-linéaires. [58] Tout d'abord, on réalise de la génération de seconde harmonique dans un cristal de LBO (le processus à l'oeuvre étant : $\omega + \omega = 2\omega$). A l'issue de cette première étape, on obtient un faisceau $2\omega$, ainsi qu'un résidu de $\omega$. Ensuite, on recombine la seconde harmonique avec la première harmonique résiduelle dans un cristal de BBO, où l'on génère de la troisième harmonique par le processus $\omega + 2\omega = 3\omega$. Il faut noter que l'on a recours à une ligne à retard pour ajuster les temps d'arrivée de chaque faisceau dans le cristal de BBO. A l'issue de ce processus, on obtient 2.5 mW d'UV pour 500 mW de rouge au départ (0.5% de rendement). Ces

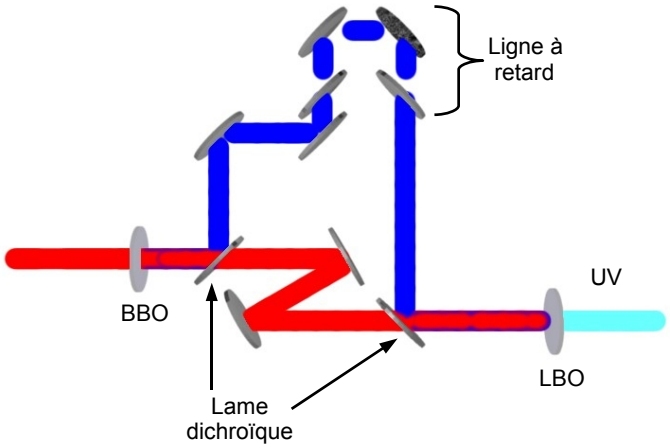


FIGURE *3.9: Représentation schématique du montage permettant la génération de troisième harmonique.*

2.5 mW sont suffisants pour réaliser une sonde, ce qui permet de réaliser des expériences d'acoustique picoseconde à des fréquences plus élevées et dans des objets plus petits.

En effet, l'utilisation de la troisième harmonique peut grandement enrichir l'acoustique picoseconde. Tout d'abord, à ces longueurs d'onde, les coefficients photo-élastiques sont plus favorables à la détection dans certains matériaux, par exemple l'argent. Dans l'argent, on peut espérer être capable de détecter des échos avec une sonde UV alors que cela n'est pas possible en utilisant une sonde rouge ou bleue. Dans le chapitre précédent, nous avons vu que pour détecter des vibrations collectives dans un réseau de nanostructures organisées, il faut que la longueur d'onde de la sonde soit plus petite que la période du réseau. L'utilisation d'une sonde UV, de longueur d'onde plus faible va rendre possible l'exploration de réseau ayant une période plus faible, donc la génération d'onde acoustique de surface à des fréquences plus élevées. Finalement, l'utilisation d'une sonde UV permet de détecter des oscillations Brillouin à des fréquences plus élevées, si l'indice optique le permet, rendant ainsi possible des mesures d'atténuation acoustique à des fréquences encore jamais atteintes.

Une fois la troisième harmonique générée, nous avons pu réaliser les expériences sur l'InP(311) dont la vitesse des ondes acoustiques longitudinales est plus élevée que celle de l'InP(100). Sur la figure 3.10, on a représenté les échos des ondes acoustiques générées par les boîtes et détectées à des longueurs d'onde de sonde de 450 et 266 nm, ainsi que les transformées de Fourier de ces échos.

Sur la figure 3.10(a), on peut faire deux constatations. Tout d'abord, si l'on compare la période des oscillations à 450 et à 266 nm, on remarque que les oscillations Brillouin

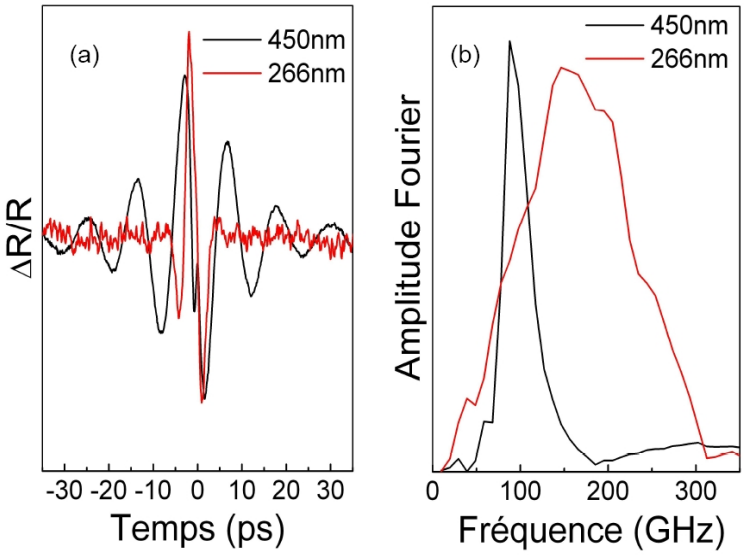


FIGURE *3.10: (a) Changement de réflectivité provoqué par l'impulsion acoustique issue des boîtes quantiques détecté à la surface de l'échantillon à une longueur d'onde de sonde de 450 nm et de 266 nm dans l'InP(311). (b) Transformée de Fourier des signaux.*

de l'écho obtenu à 266 nm sont beaucoup plus rapides, donc plus haute fréquence. Sur les transformées de Fourier des signaux, figure 3.10(b), la fréquence principale de l'écho détecté à 266 nm se situe aux environs de 150 GHz. On a donc une augmentation de 50 GHz. La deuxième remarque que l'on peut faire sur la figure 3.10(a) est la différence d'extension temporelle des deux signaux. L'écho à 266 nm est beaucoup plus court que celui à 450 nm. En effet, l'absorption optique est plus forte à 266 nm, le faisceau sonde pénètre donc moins profondément et on détecte l'onde acoustique sur un temps plus court. Cet effet se retrouve également sur la transformée de Fourier. Le signal est plus bref et donc plus riche spectralement. On remarque que le pic des oscillations Brillouin est plus large à 266 nm qu'à 450 nm. Ici, on peut deviner que l'onde acoustique contient des composantes fréquentielles jusqu'à 300 GHz. La détection est de moins en moins monochromatique et devient large bande. Nous avons donc réussi, pour l'instant, à montrer la présence de fréquences trois fois plus élevées que précédemment.

Nous avons réussi à montrer la présence de composantes à 300 GHz au sein de l'impulsion acoustique générée par les boîtes quantiques, ce qui reste, tout de même, beaucoup plus faible que la valeur théorique (∼970 GHz). Il semble donc que le mécanisme photo-élastique, et plus particulièrement les oscillations Brillouin, limite la détection des composantes hautes fréquences de l'onde acoustique.

Cependant, en observant plus en détail les différents signaux, on peut déjà discerner des plus hautes fréquences. Sur le signal obtenu dans l'échantillon InP(311) à 450 nm, on distingue au centre de l'écho une oscillation plus rapide que les oscillations Brillouin. Si

la période de cette oscillation est plus faible, cela signifie que sa fréquence est plus élevée. La différence de contenu fréquentiel devrait être visible sur la transformée de Fourier de l'écho. Sur la figure 3.11, nous avons représenté l'écho ainsi que sa transformée de Fourier, mais cette fois-ci jusqu'à 800 GHz.

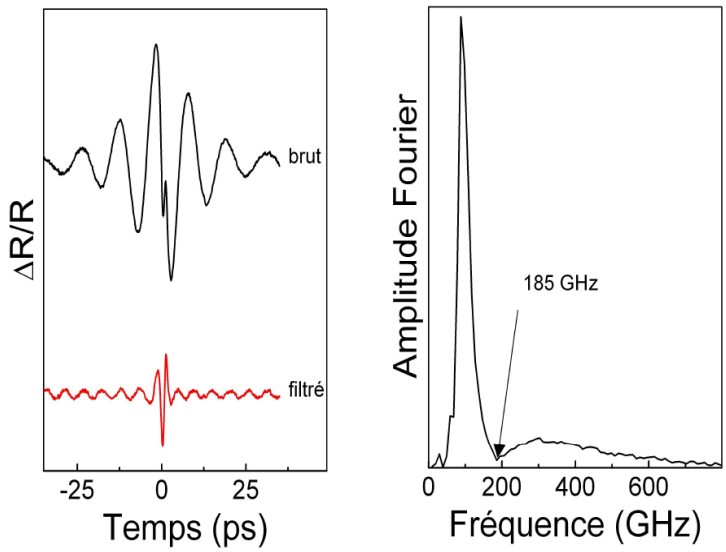


FIGURE *3.11: Changement de réflectivité obtenu à une longueur d'onde de sonde de 450 nm brut et filtré. Transformée de Fourier du signal expérimental.*

Si l'on se focalise sur la transformée de Fourier, on voit, en plus du pic correspondant aux oscillations Brillouin autour de 100 GHz, une bosse haute fréquence qui démarre vers 185 GHz et s'étend jusqu'au delà de 700 GHz. Nous aimerions pouvoir attribuer cette bosse haute fréquence sur la transformée de Fourier aux oscillations rapides sur le signal temporel. Pour ce faire, nous avons appliqué un filtre passe-haut à partir de 185 GHz au signal brut. Nous obtenons ainsi un signal dont toutes les composantes fréquentielles inférieures à 185 GHz ont été supprimées. Celui-ci est représenté sur la figure 3.11. Suite à l'application du filtre, on voit alors disparaître les oscillations Brillouin, mais la structure rapide subsiste. On peut donc faire le lien entre la bosse haute fréquence et la structure oscillante au milieu des oscillations Brillouin.

On est donc capable de détecter des composantes fréquentielles bien supérieures à la fréquence des oscillations Brillouin. Ici, on détecte des fréquences au-delà de 700 GHz. Par ce biais on voit que grâce à leur petite taille, les boîtes quantiques sont capables d'émettre des ondes acoustiques très haute fréquence. Il reste toutefois des questions en suspens. En effet, on sait que les oscillations Brillouin sont détectées grâce au mécanisme photo-élastique, mais on ne sait pas quel est le mécanisme de détection de ces contributions hautes fréquences. Nous allons, dans la prochaine partie, essayer de comprendre comment ces fréquences sont détectées.

### 3.2.2 Modèle

Nous allons maintenant nous intéresser aux raisons de la détection de ces hautes fréquences. Pour cela, nous allons revenir au principe de la détection photo-élastique.

Lorsqu'une onde acoustique se propage dans un échantillon, le changement de réflectivité détecté par la sonde à la surface de cet échantillon est égal à : [61]

$$\Delta R(t) = \int_{z=0}^{+\infty} f(z)\eta(z,t)dz, \tag{3.1}$$

où $\eta(z,t)$ est la contrainte à la profondeur $z$ au temps $t$ et $f$ est la fonction de sensibilité. La fonction de sensibilité est spécifique à un matériau et est définie par :

$$f(z) = f_0[\frac{\partial n}{\partial \eta} sin(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi) + \frac{\partial k}{\partial \eta} cos(\frac{4\pi nz}{\lambda} - \phi)]e^{-4\pi kz/\lambda}, \tag{3.2}$$

avec

$$f_0 = \frac{16\pi}{\lambda} \frac{[n^2(n^2+k^2-1)^2 + k^2(n^2+k^2+1)^2]^{1/2}}{[(n+1)^2+k^2]^2}, \tag{3.3}$$

et

$$tan\phi = \frac{k(n^2+k^2+1)}{n(n^2+k^2-1)}. \tag{3.4}$$

Dans ces expressions, $\lambda$ est la longueur d'onde de la sonde, $n$ est l'indice optique, $k$ est le coefficient d'extinction, $\partial n/\partial \eta$ et $\partial k/\partial \eta$ les coefficients photo-élastiques.

La fonction de sensibilité, définie dans l'équation 3.2, est spécifique à un matériau et comporte toutes les caractéristiques de la détection. Nous allons reprendre les résultats exposés dans la partie précédente et les analyser à la lumière de cette équation.

Tout d'abord nous avons étudié les oscillations Brillouin. Dans la fonction de sensibilité les composantes oscillantes se trouvent dans le sinus et le cosinus, qui ont une période en $z$ de $\lambda/2n$. Une impulsion acoustique qui se propage à la vitesse $v$ va donc être détectée comme une oscillation à la période $\lambda/2nv$, qui correspond bien aux oscillations Brillouin.

Nous avons ensuite remarqué qu'avec une sonde ayant une longueur d'onde dans l'UV, le signal est beaucoup plus bref. On voit, dans la fonction de sensibilité, qu'il y a un facteur en exponentielle décroissante qui dépend du coefficient d'extinction $k$. Celui-ci vaut 0.7 à 450 nm et 2.8 à 266 nm dans l'InP. [46] Il faut donc considérer la valeur de la longueur de pénétration $\xi = \lambda/4\pi k$ à ces deux longueurs d'onde. A 450 nm on a $\xi$= 51 nm et à 266 nm, $\xi$= 8 nm. L'écho détecté à 266 nm est donc beaucoup plus bref, son contenu

spectral est beaucoup plus large. En choisissant judicieusement la longueur d'onde, et par conséquent le coefficient d'extinction, il est possible d'élargir la bande passante de la détection des oscillations Brillouin et donc d'extraire plus d'informations sur le contenu fréquentiel de l'impulsion acoustique.

Nous allons maintenant expliquer l'apparition de la bosse haute fréquence. Nous avons vu que la composante haute fréquence apparaît au milieu des oscillations Brillouin, ce qui signifie que son origine physique provient de la réflexion de l'impulsion acoustique à la surface. Comme il y a réflexion à une surface libre, il y a également changement de signe de l'impulsion acoustique. Afin d'aider à la compréhension, nous allons réaliser quelques modifications sur la fonction de sensibilité.

Lorsqu'une déformation acoustique se propage dans un échantillon et qu'elle arrive à la surface libre, elle va être réfléchie et changer de signe. Plutôt que de considérer une seule déformation acoustique qui se réfléchie, nous allons considérer deux déformations, une qui se dirige vers les valeurs de z négatives, que l'on appellera $\eta^+$ (onde incidente), et une autre qui se dirige vers les valeurs de z positives que l'on appellera $\eta^-$ (onde réfléchie). On définit $z = 0$ comme étant la surface libre. Chaque impulsion se propage pour toutes les valeurs de z mais n'est détectée que pour les valeurs de z positives. En considérant cette modification, on obtient un changement de réflectivité :

$$\Delta R(t) = \int_{z=0}^{+\infty} f(z)\eta(z,t)dz = \int_{z=0}^{+\infty} f(z)(\eta^+(z,t) + \eta^-(z,t))dz, \tag{3.5}$$

Sur la figure 3.12, nous avons représenté ce cas, (a), ainsi que les modifications que nous allons réaliser.

Chaque impulsion se propage pour toutes les valeurs de z mais n'est détectée que pour les valeurs de z positives. Nous introduisons donc l'échelon d'Heaviside $H(z)$, qui vaut 1 si $z \geq 0$ et qui vaut 0 sinon, pour rendre compte de cette détection. Grâce à cette astuce mathématique, il est maintenant possible d'intégrer l'expression, non plus sur ]0 ;+∞[, mais sur ]-∞ ;+∞[ :

$$\Delta R(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(z)H(z)\eta^+(z,t)dz + \int_{-\infty}^{+\infty} H(z)f(z)\eta^-(z,t)dz, \tag{3.6}$$

On utilise ensuite la relation qui relie $\eta^+$ et $\eta^-$ :

$$\eta^-(z,t) = -\eta^+(-z,t), \tag{3.7}$$

Dans cette relation, on passe de $z$ à $-z$ pour rendre compte des différents sens de propagation et les signes sont opposés car il y a eu changement de signe de la déformation à la surface libre. En injectant la relation (3.7) dans l'équation (3.6), on obtient :

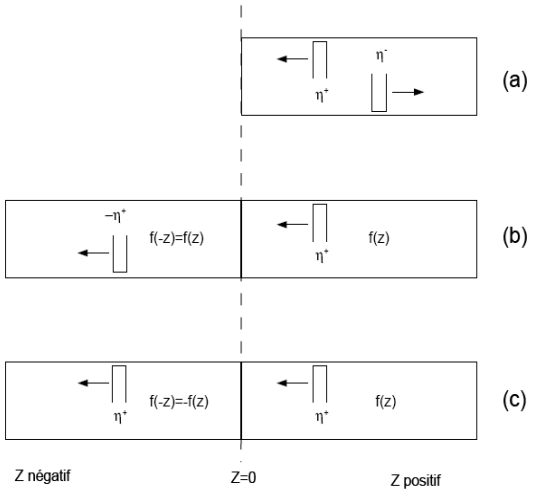


FIGURE *3.12: Différentes représentations de la propagation de l'onde acoustique. (a) Cas réel où une impulsion et sa réflexion se propagent. (b) Une impulsion se propage dans tout l'espace en changeant de signe à l'interface. (c) une seule impulsion se propage dans tout l'espace.*

$$\Delta R(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(z)H(z)\eta^+(z,t)dz + \int_{-\infty}^{+\infty} f(z)H(z)(-\eta^+(-z,t))dz, \tag{3.8}$$

En réalisant le changement de variable y=-z uniquement pour la deuxième intégrale, on obtient :

$$\Delta R(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(z)H(z)\eta^+(z,t)dz + \int_{-\infty}^{+\infty} f(-y)H(-y)(-\eta^+(y,t))dy, \tag{3.9}$$

Nous sommes maintenant dans le cas de la figure 3.12(b). On peut maintenant simplifier l'expression en réduisant les bornes des différentes intégrales :

$$\Delta R(t) = \int_{0}^{+\infty} f(z)\eta^+(z,t)dz + \int_{-\infty}^{0} f(-y)(-\eta^+(y,t))dy, \tag{3.10}$$

Nous allons introduire une nouvelle fonction de sensibilité $f_{eff}(z)$, qui vaut $f(z)$ pour les valeurs positives de z et qui est impaire. On obtient finalement :

$$\Delta R(t) = \int_{0}^{+\infty} f(z)\eta^+(z,t)dz + \int_{-\infty}^{0} -f(-y)(\eta^+(y,t))dy = \int_{-\infty}^{+\infty} f_{eff}(z)\eta^+(z,t)dz, \tag{3.11}$$

Nous sommes maintenant dans le cas de la figure 3.12(c). C'est cette nouvelle fonction de sensibilité que nous allons étudier dorénavant. Cette transformation a pour but de rendre plus visible ce qui se passe lors de la réflexion, puisque la fonction de sensibilité

va ainsi ressembler au signal expérimental duquel on aurait déconvolué la déformation.

Nous avons calculé la fonction de sensibilité effective, avec les paramètres physiques de l'InP(311), pour deux couples différents de coefficients photo-élastiques. Dans le premier cas, on a pris le couple (2 ;0.9) et dans le second cas (2 ;-0.9). Nous avons représenté les fonctions de sensibilité correspondantes sur la figure 3.13.

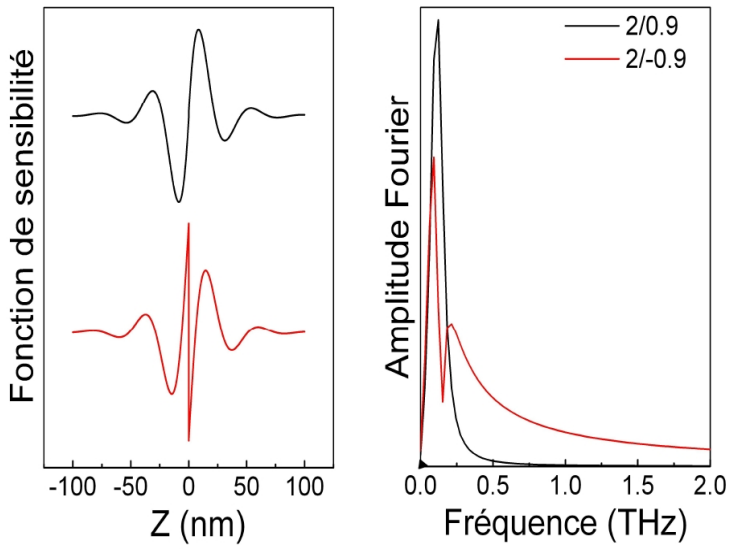


FIGURE *3.13: Fonction de sensibilité de l'InP pour deux couples de coefficients photo-élastiques (2 ;0.9) et (2 ;-0.9). Transformées de Fourier obtenues en utilisant les deux fonctions de sensibilité et une déformation qui a la forme d'un pic de Dirac*

On peut voir qu'en fonction des coefficients photo-élastiques, la fonction de sensibilité possède une discontinuité en $z = 0$. La valeur de cette discontinuité est :

$$2f(0) = 2f_0(\frac{\partial k}{\partial \eta}cos(\phi) - \frac{\partial n}{\partial \eta}sin(\phi)) \tag{3.12}$$

Nous avons ensuite calculé le changement de réflectivité causé par une déformation qui aurait la forme d'un pic de Dirac :

$$\Delta R(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f_{eff}(z)\delta(z - vt)dz, \tag{3.13}$$

Cette opération consiste à voir la bande passante de la fonction de sensibilité. En appliquant un pic de Dirac, la transformée de Fourier ne dépend que de la fonction de sensibilité. Ainsi, nous ne sommes pas limité par le contenu fréquentiel de la déformation. D'un point de vue fréquentiel, sur les transformées de Fourier de la figure 3.13, on voit qu'en l'absence de la discontinuité, on ne détecte pas de fréquence au-delà de 0.5 THz. Par contre, en présence d'une discontinuité, on continue à détecter des composantes à 2 THz. On voit que l'on a une meilleure détection des hautes fréquences lorsque la fonction de

sensibilité possède une discontinuité. Plus la discontinuité est grande, c'est-à-dire plus $2f(0)$ est grand, plus la détection des hautes fréquences est efficace. La détection photo-élastique peut donc être améliorée en choisissant judicieusement les coefficients photo-élastiques.

### 3.2.3 Ondes terahertz

Ici, nous avons joué sur les coefficients photo-élastiques pour montrer l'intérêt de la discontinuité dans la fonction de sensibilité pour la détection des hautes fréquences. Cependant, lors d'expériences, nous n'avons pas accès directement aux coefficients photo-élastiques. Ceux-ci dépendent de la longueur d'onde, il faut donc explorer toutes les longueurs d'onde afin de trouver les meilleurs coefficients photo-élastiques. On peut tout de même profiter des caractéristiques des matériaux afin de limiter la plage d'exploration en longueur d'onde. En effet, il a été démontré que les coefficients photo-élastiques subissent des variations importantes autour des transitions électroniques. [11, 12] En profitant de cet effet, il n'est plus nécessaire d'explorer une grande gamme de longueurs d'onde, mais seulement celles qui sont à proximité d'une transition électronique. Dans le cas de l'InP, la transition électronique $E_1$ se situe à 394 nm, [39] nous avons donc étudié les longueurs d'onde entre 380 et 400 nm. Sur la figure 3.14, nous avons représenté les échos détectés à chacune de ces longueurs d'onde de sonde, ainsi que les transformées de Fourier correspondantes.

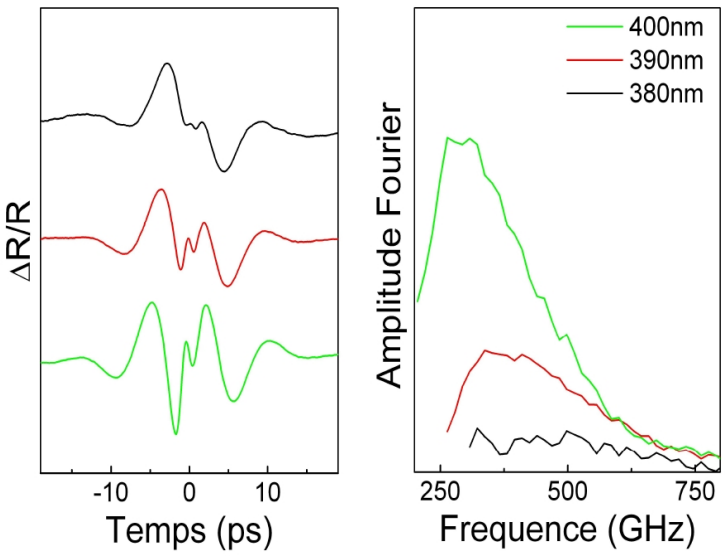


FIGURE *3.14: Changement de réflectivité obtenu pour trois longueurs d'onde de sonde 380, 390 et 400 nm sur un échantillon de boîtes quantiques comportant un plan de boîtes quantiques d'InAs recouvert par un film de 400 nm d'InP(311). Transformée de Fourier des différents signaux.*

Pour les différentes longueurs d'onde, l'importance de la structure haute fréquence est plus ou moins prononcée. On remarque sur les transformées de Fourier que la détection de haute fréquence est très dépendante de la longueur d'onde. Par exemple, sur le signal obtenu à 380 nm, on ne distingue pas de composantes hautes fréquences, du moins on ne peut pas la distinguer du bruit expérimental. A contrario sur le signal obtenu pour une longueur d'onde de sonde de 400 nm, la bosse haute fréquence est très prononcée. Cependant la fréquence principale du signal obtenu à 400 nm se situe aux alentours de 260 GHz, alors que l'on atteint 300 GHz à 390 nm. Nous avons donc choisi de réaliser nos expériences avec une longueur d'onde de sonde de 390 nm.

Nous connaissons maintenant les longueurs d'onde qui vont nous permettre de détecter les plus hautes fréquences. Mais il existe encore un dernier paramètre sur lequel on peut jouer afin d'améliorer la détection de haute fréquence et il s'agit de l'atténuation. En effet, l'atténuation des ondes acoustiques longitudinales étant proportionnelle à la fréquence au carré, celle-ci est très forte pour la gamme de fréquence qui nous intéresse, d'autant plus que nous travaillons à température ambiante. Les échantillons sur lesquels ont été réalisés les expériences précédentes possédaient une couche d'InP déposée au-dessus des boîtes quantiques de 320 nm d'épaisseur. Si l'on réduit cette épaisseur, les ondes acoustiques seront moins atténuées et on peut imaginer détecter des fréquences encore plus élevées. Nous avons donc décidé d'utiliser un échantillon avec un cap de 100 nm d'InP. Le signal obtenu avec une longueur d'onde de pompe de 780 nm et une longueur d'onde de sonde de 390 nm est représenté sur la figure 3.15.

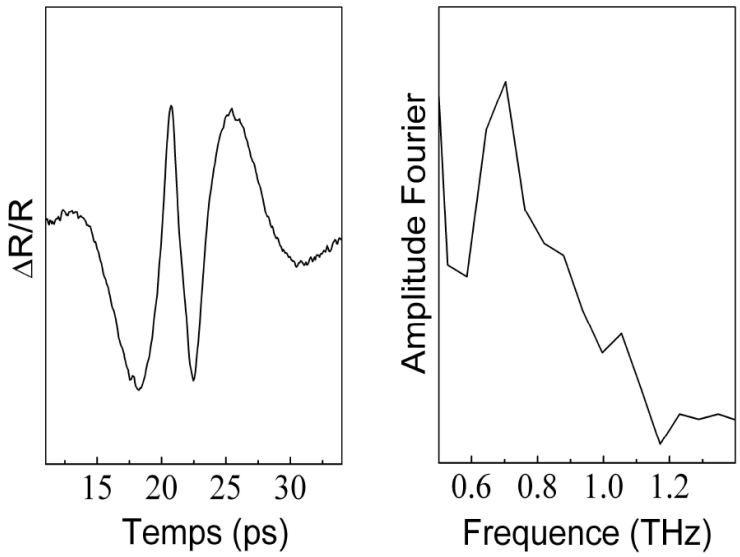


FIGURE *3.15: Echo obtenu sur un échantillon de boîtes quantiques comportant un plan de boîtes quantiques d'InAs recouvert par un film de 100 nm d'InP(311). Transformée de Fourier de l'écho.*

Sur le signal, on n'observe pas de différences flagrantes par rapport aux échantillons avec un cap de 320 nm. Par contre, la transformée de Fourier révèle des contributions hautes fréquences nettement plus élevées. La fréquence principale se situe aux alentours de 700 GHz, et on arrive à détecter des fréquences supérieures au terahertz.

Nous avons donc réussi à observer des composantes au-delà du terahertz, ce que prédisait le modèle. De plus, ces observations ont été réalisées à température ambiante, ce qui confirme l'efficacité de la génération par les boîtes quantiques que nous remarquions dans la première partie de ce chapitre. Mais le but de ces expériences n'est pas juste la génération d'onde terahertz. Nous avons vu en introduction que l'intérêt des ondes très hautes fréquences est leur sensibilité aux petites variations. Nous allons montrer que les hautes fréquences permettent d'améliorer la résolution spatiale.

Durant les expériences, nous avons remarqué des variations du signal et plus particulièrement de la composante hautes fréquences. Il semble que celle-ci change suivant la position des faisceaux sur l'échantillon où l'on réalise l'expérience. Les transformées de Fourier des signaux obtenus pour deux positions différentes sont représentées sur la figure 3.16(a).

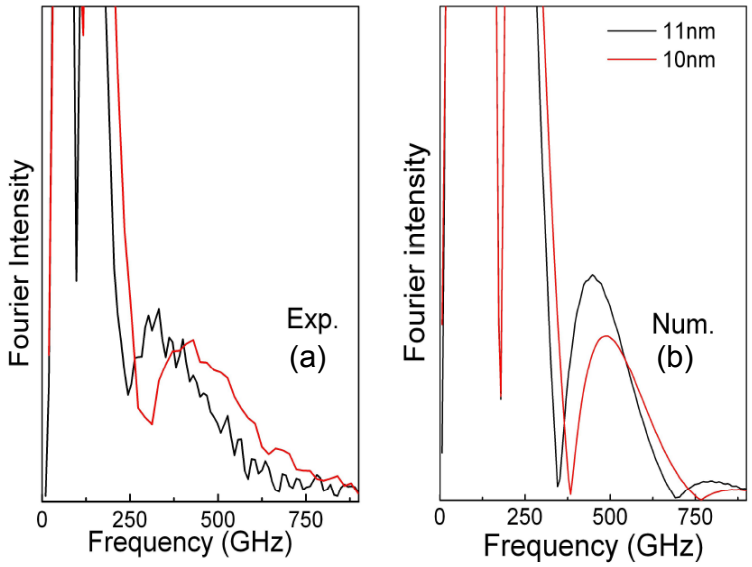


FIGURE *3.16: Transformées de Fourier des changements de réflectivité obtenus en différentes positions d'un échantillon de boîtes quantiques comportant un plan de boîtes quantiques d'InAs recouvert par un film de 400 nm d'InP(311). Simulation de la transformée de Fourier pour différentes épaisseurs de la couche de boîtes quantiques.*

On voit que la bosse haute fréquence n'est pas la même dans les deux cas. Afin de comprendre cette différence, nous avons effectué des simulations numériques de l'écho obtenu pour différentes tailles de la zone émettrice. Sur la figure 3.16(b), on a représenté les signaux simulés pour une taille de la zone émettrice de 10 ou de 11 nm. On remarque

un décalage de la bosse haute fréquence de l'ordre de 50 GHz. La haute fréquence permet donc d'avoir une excellente résolution spatiale, puisque une simple variation de 1 nm décale le contenu haute fréquence significativement.

### 3.2.4 Un modèle très général

Ce modèle n'est pas restreint à l'étude des boîtes quantiques, nous allons voir maintenant qu'il est aussi applicable à d'autres matériaux, en fait tous les matériaux où la détection est faite par le mécanisme photo-élastique, tel que le tungstène.

Le premier article du laboratoire de Lille [12] concernait les effets de longueur d'onde sur la détection d'écho d'une couche de tungstène sur silicium. La similarité entre les expériences sur tungstène et celles sur les boîtes quantiques résident dans les variations importantes de la forme de l'écho en fonction de la longueur d'onde. Dans cet article, l'étude était axée sur la forme de l'écho et sur l'explication physique de ces changements de forme. Nous allons reprendre les expériences réalisées à cette époque et les étudier d'un point de vue fréquentiel.

Nous avons réalisé de nouveau les expériences de cet article, afin d'améliorer le rapport signal sur bruit et ainsi pouvoir faire des transformées de Fourier. Pour cela, nous avons utilisé une couche de 100 nm de tungstène déposée sur substrat silicium, contrairement à l'article où la couche faisait 170 nm d'épaisseur. Nous avons réalisé des expériences sur cet échantillon avec des longueurs d'onde de pompe et de sonde de 750, 820 et 920 nm. Les échos obtenus sont reproduit sur la figure 3.17.

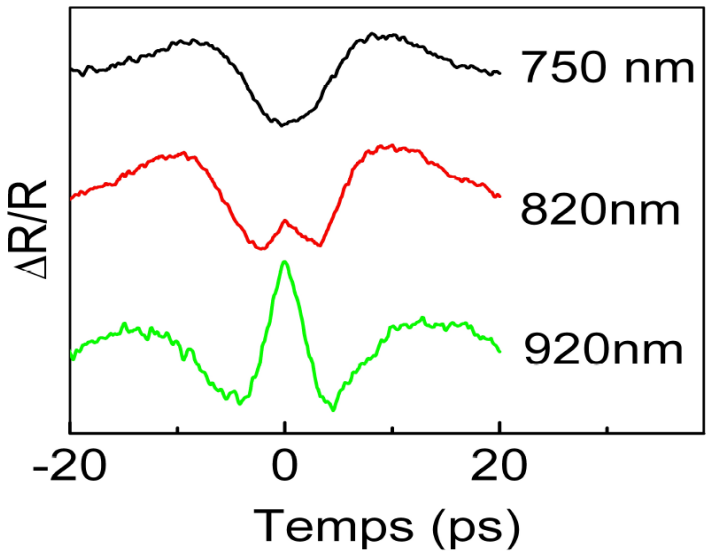


FIGURE *3.17: Echos obtenus dans une couche de 100 nm de tungstène sur substrat Si pour trois longueurs d'onde de sonde différentes (750, 820 et 920 nm)*

Entre 750 et 820 nm, on voit apparaître un pic au centre de l'écho. Il faut remarquer que les premières transitions du tungstène ont lieu à 0.43, 0.87, 1.57 et 2.25 eV. [70] La transition à 1.57 eV (790 nm), se situe exactement dans la région où l'on observe l'apparition du pic.

Grâce aux simulations, on est capable de calculer le rapport entre les deux coefficients photo-élastiques. On trouve ainsi un rapport de 1 à 750 nm, 3 à 820 nm et 20 à 920 nm. Nous avons représenté sur la figure 3.18 les fonctions de sensibilité correspondantes.

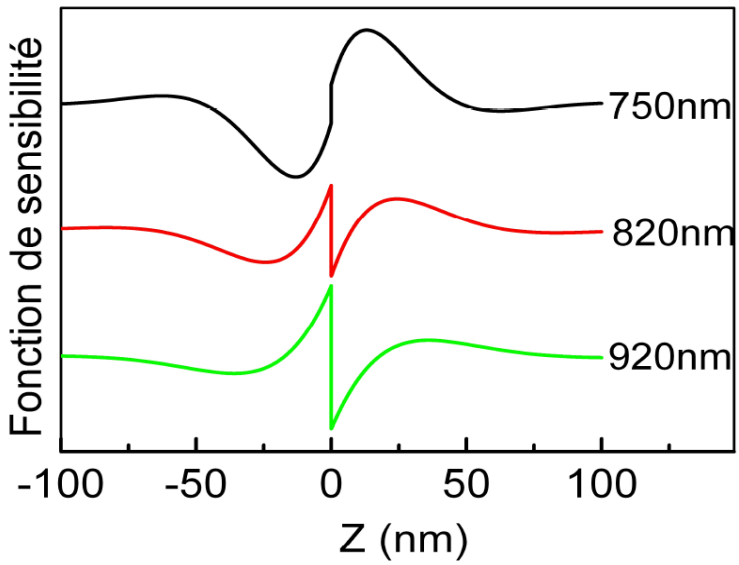


FIGURE *3.18: Fonction de sensibilité du tungstène à différentes longueurs d'ondes, le rapport des coefficients photo-élastiques est issu de simulation*

On remarque que la discontinuité est à peu près équivalente entre la fonction de sensibilité à 750 et 820 nm. Par contre cette discontinuité est beaucoup plus importante à 920 nm, on devrait donc être capable de détecter des composantes plus hautes fréquences à 920 nm. Nous avons donc réalisé la transformée de Fourier des différents échos du tungstène. Celles-ci sont représentées sur la figure 3.19.

Les plus hautes fréquences sont détectées à 920 nm, là où, comme précédemment, la fonction de sensibilité a la plus grande discontinuité. Pour 750 et 820 nm, les transformées de Fourier sont assez similaires, ce qui s'explique par la valeur de la discontinuité dans la fonction de sensibilité qui est sensiblement la même dans les deux cas.

On voit donc que le modèle qui a permis de détecter les hautes fréquences dans le cas des boîtes quantiques est également applicable dans le cas du tungstène. L'un des intérêts de ce modèle dans le cas du tungstène est qu'il est possible d'observer l'atténuation des ondes acoustiques à des fréquences beaucoup plus élevées, ici à 200 GHz. La mesure d'atténuation est réalisée en effectuant les transformées de Fourier des échos successifs. La

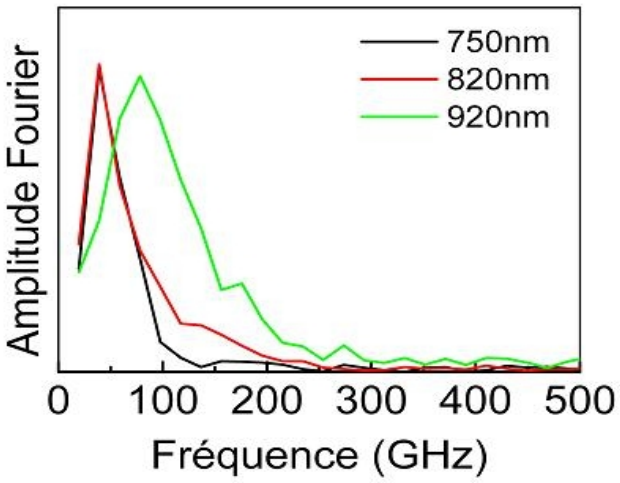


FIGURE *3.19: Transformée de Fourier des échos du tungstène à différentes longueurs d'onde.*

diminution de l'amplitude de la transformée de Fourier à une fréquence donnée entre deux échos successifs nous renseigne sur l'importance de l'atténuation à cette fréquence. [43]

Nous avons donc montré l'intérêt d'utiliser de la matière confinée pour réaliser la transduction d'ondes acoustiques très haute fréquences. Dans le cadre de nos boîtes quantiques, nous avons montré que l'onde acoustique générée contient des composantes fréquentielles supérieures au terahertz. Grâce à un modèle qui permet de choisir judicieusement les paramètres expérimentaux, nous avons pu détecter ces fréquences à température ambiante, prouvant l'amplitude exceptionnelle de l'onde acoustique issue des boîtes quantiques. Nous avons également vu que notre modèle n'est pas restreint à cet échantillon, mais que l'on peut l'appliquer à tout échantillon où la détection est photo-élastique comme le montre l'application au tungstène.

## 3.3 Mécanisme de génération

Nous allons maintenant nous intéresser au processus de génération d'onde acoustique suite à l'absorption d'une impulsion lumineuse. Nous savons dorénavant que la génération a lieu dans le plan de boîtes quantiques, mais nous ne savons pas par quel processus elle a lieu. Dans cette partie, nous allons voir de quel type de génération il s'agit. Ensuite nous proposerons une explication pour l'efficacité de la génération dans les boîtes d'InAs, contrairement aux boîtes de SiGe. Et finalement, nous verrons si l'ensemble des résultats nous donne des informations sur le lieu exact de la génération : boîtes quantiques et/ou couche de mouillage ?

### 3.3.1 Génération par potentiel de déformation

La génération d'onde acoustique dans les semi-conducteurs est différente de celle dans les métaux. [18] Il ne s'agit plus uniquement de génération par la chaleur, dite thermo-élastique, mais également par les porteurs de charge. Ce type de génération est appelé génération par potentiel de déformation. Nous allons maintenant décrire brièvement ce type de génération.

Sous l'effet d'une impulsion lumineuse avec une énergie supérieure à la bande interdite du semiconducteur, des paires électron-trou sont générées. Le passage d'un électron excité de la bande de valence à la bande de conduction va créer un trou dans la bande de valence, c'est la paire formée par l'électron dans la bande de conduction et le trou dans la bande de valence que l'on appelle exciton. Selon que l'électron qui passe dans la bande de conduction, passe dans un état liant ou anti-liant, une compression ou une dilatation du réseau a lieu. Le passage de la bande de valence à la bande de conduction va donc modifier la position d'équilibre des atomes du réseau, créant ainsi une contrainte. Ce couplage entre les porteurs de charges excités et la contrainte est gouverné par les potentiels de déformations, qui lient la contrainte appliquée au changement d'occupation des bandes d'énergies.

Si l'on compare la génération acoustique dans les métaux à celle dans les semiconducteurs, lorsque l'on calcule la contrainte totale, il faut ajouter le terme correspondant à la génération par potentiel de déformation : [61]

$$\sigma_{33} = \rho V^2 \eta_{33} - 3B\beta\Delta T(z) - BN_e \frac{\partial E_g}{\partial P}, \tag{3.14}$$

où $\sigma_{33}^{Th}$ est la contrainte thermo-élastique, $\sigma_{33}^{El}$ est la contrainte électronique (par potentiel de déformation), $N_e$ est la densité des électrons photo-excités et $\partial E_g/\partial P$ est un coefficient qui représente la variation de la bande interdite en fonction de la pression. Dans cette expression, on considère que les porteurs qui contribuent à la contrainte par potentiel de déformation se situent en bas de la bande de conduction. En effet, les électrons relaxent très vite vers le bas de la bande de conduction ($\leq$1 ps). C'est pourquoi, on considère que les porteurs qui jouent un rôle dans la contrainte électronique se trouvent en bas de la bande de conduction.

Pour connaître l'importance relative de chacune des générations, nous allons calculer le rapport entre la déformation électronique, à l'origine de la génération par potentiel de déformation et la contrainte thermique, qui représente la génération thermo-élastique $\sigma_{33}^{El}/\sigma_{33}^{Th}$. Afin de pouvoir simplifier, nous allons exprimer la déformation thermique en

fonction de l'énergie d'excitation :

$$\sigma_{33}^{Th} = -3B\beta\Delta T = -3B\beta N_e \frac{E - E_g}{C}, \tag{3.15}$$

où $C$ est la capacité calorifique par unité de volume. On peut expliquer brièvement le sens physique de cette formulation. Un photon d'énergie $E{=}\hbar\omega$ permet aux électrons de passer dans la bande de conduction. Ce passage nécessite une énergie $E_g$. L'énergie excédentaire $E - E_g$ va contribuer à l'échauffement. Cette échauffement dépend également de la densité de porteurs photo-excités. On obtient alors un rapport.

$$\frac{\sigma_{33}^{El}}{\sigma_{33}^{Th}} = \frac{-BN_eC_v}{-3B\beta N_e}\frac{\partial E_g}{\partial P}\frac{1}{E - E_g} = \frac{C_v}{3\beta}\frac{\partial E_g}{\partial P}\frac{1}{E - E_g} \tag{3.16}$$

Nous réalisons ensuite l'application numérique. Pour des boîtes quantiques d'InAs dans GaAs, on trouve un coefficient $\partial E_g/\partial P$ de l'ordre de $8.10^{-11}$ eV.Pa$^{-1}$, [37] d'après les expériences de photoluminescence, on trouve la bande interdite des boîtes quantiques à 0.8 eV. La chaleur spécifique par unité de volume $C$ d'InAs vaut $1.42.10^6$ J.m$^{-3}$.K$^{-1}$ et le coefficient linéaire de dilatation thermique $\beta$ vaut $4.52.10^{-6}$ K$^{-1}$. On obtient donc un rapport pour une longueur d'onde de pompe de 800 nm :

$$\frac{\sigma_{33}^{El}}{\sigma_{33}^{Th}} \simeq 11 \tag{3.17}$$

La contribution à la contrainte totale de la contrainte électronique est 11 fois plus forte que celle de la contrainte thermo-élastique. On peut donc considérer que la génération dans les boîtes quantiques a lieu par potentiel de déformation.

### 3.3.2 Capture des porteurs

Nous venons de voir que la génération de l'onde acoustique dans les boîtes quantiques se fait majoritairement à travers les potentiels de déformation. Dans ce schéma, la contrainte est le produit de la densité de porteurs photo-générés par le potentiel de déformation. L'amplitude de l'onde acoustique étant reliée à la contrainte, plus cette amplitude est forte, plus le nombre de porteurs photo-générés est important. L'amplitude de l'onde acoustique dépend donc du nombre de porteurs photo-excités.

Nous allons faire une application numérique pour comparer la contrainte générée par effet électronique dans les boîtes d'InAs et le film de 320 nm d'InP par une même impulsion lumineuse. Pour cela nous devons tout d'abord calculer la densité de porteurs photo-générés. La variation de cette densité en fonction du temps est donnée par l'équation de diffusion : [71]

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{1-R}{\zeta C_v} I f(t) e^{-z/\zeta} + D\frac{\partial^2 N}{\partial z^2} \tag{3.18}$$

Où $N$ est la densité de porteurs, $R$ est la réflectivité, $C_v$ est la capacité calorifique par unité de volume, $If(t)$ est la variation d'intensité de l'impulsion lumineuse et $D$ est le coefficient de diffusion ambipolaire. Dans cette équation, le premier terme du membre de droite est un terme de source qui correspond à la génération de paires électron-trou par le faisceau lumineux et le second terme est un terme de diffusion. Nous allons considérer dans la suite du calcul que la diffusion est négligeable.

$$N_{InP} = \frac{1-R_{InP}}{\zeta_{InP} C_{InP}} I e^{-h_{InP}/\zeta_{InP}} \tag{3.19}$$

et

$$N_{InAs} = \frac{(1-R_{InAs})(1-R_{InP})}{\zeta_{InAs} C_{InAs}} I e^{-h_{InP}/\zeta_{InP}} e^{-h_{InAs}/\zeta_{InAs}} \tag{3.20}$$

Pour calculer le rapport des contraintes électroniques dans InAs et dans InP suite à une impulsion lumineuse, on assimile le plan de boîtes quantiques à une couche de 10 nm d'InAs, on obtient :

$$\frac{\sigma_{InAs}}{\sigma_{InP}} = \frac{(B\frac{\partial E_g}{\partial P}(1-R)e^{-h/\zeta})_{InAs}.(\zeta C)_{InP}}{(B\frac{\partial E_g}{\partial P})_{InP}.(\zeta C)_{InAs}} \tag{3.21}$$

En réalisant l'application numérique, on obtient un rapport entre ces contraintes :

$$\frac{\sigma_{InAs}}{\sigma_{InP}} = 0.5 \tag{3.22}$$

Cela signifie que l'onde acoustique générée par les boîtes quantiques est 2 fois plus faible que celle générée par InP. Ce rapport est spécifique à ces matériaux et à cet échantillon. En effet, si l'on augmente la taille de la couche d'InAs, ce rapport va diminuer, car le terme $e^{h/\zeta}$ est propre à cet échantillon. Ce rapport montre tout de même que l'on devrait observer des contributions plus forte issues de l'InP. Or, nous avons vu, grâce aux simulations, que la génération des boîtes quantiques est très forte. La contrainte électronique $(-BN(\partial E_g)/(\partial P))$ des plans de boîtes devrait être beaucoup plus forte. Comme le potentiel de déformation est fixe, pour avoir une onde acoustique d'une grande amplitude, il faut que la densité de porteur soit très forte. Nous faisons donc l'hypothèse que les porteurs qui sont générés dans l'InP, autour des boîtes quantiques, sont capturés par ces dernières. En effet, d'un point de vue énergétique, la bande interdite des boîtes quantiques d'InAs est plus faible que celle de l'InP, elle joue donc le rôle de puits de potentiel et il y a capture des porteurs. [21] On a un alignement de bande que l'on dit de

type 1 et qui est représenté sur la figure 3.20.

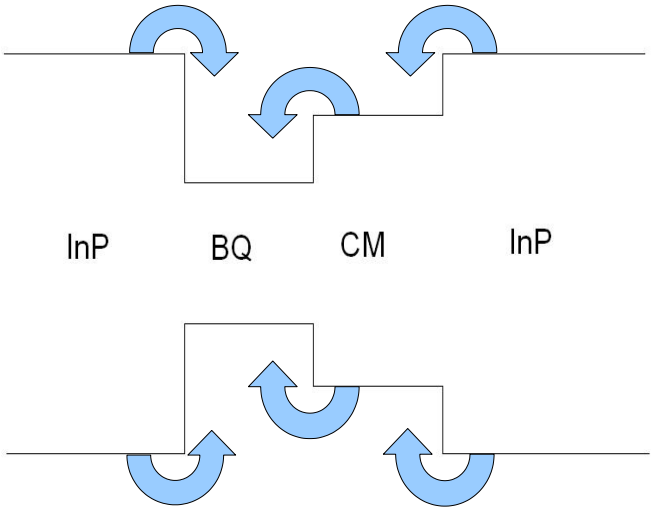


FIGURE *3.20: Alignement des bandes d'énergie pour des boîtes quantiques de type I et dynamique des porteurs*

Nous allons voir ce qu'il se passe au niveau des porteurs lors de l'excitation par une impulsion lumineuse. Dans le cas des boîtes d'InAs/InP et InAs/GaAs, l'énergie de l'impulsion lumineuse est supérieure à toutes les bandes interdites de la structure. Ainsi, on va avoir formation de paires électrons-trou dans les boîtes quantiques, la couche de mouillage et l'InP ou le GaAs. Cependant, les boîtes quantiques jouent le rôle de puits de potentiel, et les porteurs vont être piégés dans cette structure. [21] Le nombre de porteurs dans les boîtes quantiques est donc bien supérieur au nombre de porteurs générés par absorption optique directement dans les boîtes quantiques. On peut donc expliquer la génération efficace par le fait que les boîtes quantiques vont capturer les porteurs, permettant ainsi de réaliser une génération très efficace car la génération par potentiel de déformation est proportionnelle au nombre de porteurs.

Pour vérifier l'hypothèse de la capture des porteurs, nous avons réalisé des expériences où l'on change la longueur d'onde de la pompe sur l'échantillon comportant deux plans de boîtes quantiques espacés de 480 nm avec un cap de 320 nm. Dans un premier temps, on effectue une expérience avec une longueur d'onde de pompe de 800 nm et une longueur d'onde de sonde de 400 nm. La seconde expérience consiste à utiliser une longueur d'onde de pompe qui se situe énergétiquement en deçà de la bande interdite de l'InP et de la couche de mouillage, ici 1170 nm, la longueur d'onde de sonde étant toujours de 400 nm. Ces deux expériences sont représentées sur la figure 3.21(a).

Afin d'obtenir un faisceau pompe à 1170 nm, nous avons eu recours à un oscillateur paramétrique optique et ce faisceau est ensuite modulé par un chopper mécanique

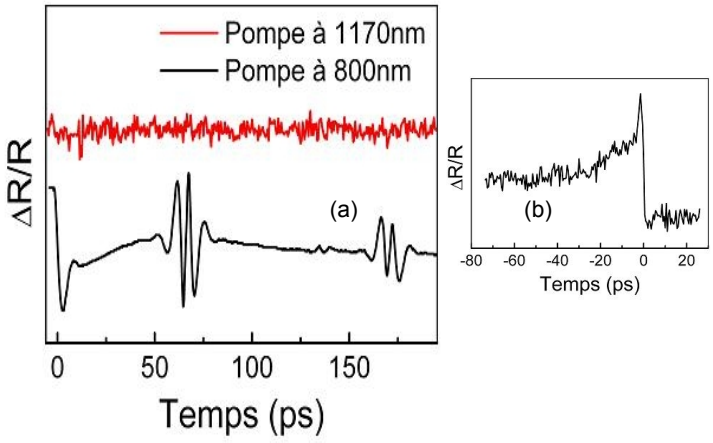


FIGURE *3.21: Changements de réflectivité obtenus sur un échantillon de boîtes quantiques comportant deux plans de boîtes quantiques d'InAs séparés par 460 nm d'InP et recouvert par un film de 320 nm d'InP à des longueurs d'onde de pompe de 800 et 1170 nm et à une longueur d'onde de sonde de 400 nm.*

à 1 kHz. Pour vérifier que les conditions expérimentales sont bonnes (le parallélisme entre les faisceau pompe et sonde, ainsi que la distance entre la lentille de focalisation et l'échantillon), nous avons placé le chopper mécanique sur la sonde bleue et nous avons réalisé une expérience avec une pompe bleue et une sonde infra-rouge à 1170 nm. Le signal obtenu est reproduit sur la figure 3.21(b).

Dans les deux expériences de la figure 3.21(a), il y a génération de porteurs dans les boîtes quantiques, mais à 800 nm, on génère également dans la couche de mouillage et dans l'InP. Le fait que l'on n'obtienne aucun signal à 1170 nm montre que le nombre de porteurs photo-excités dans les boîtes n'est pas suffisant pour obtenir une génération efficace. L'hypothèse de la capture des porteurs est donc confortée.

Une autre façon de vérifier que la capture des porteurs a bien lieu est de réaliser des expériences avec une pompe et une sonde bleues. Nous avons vu qu'à 400 nm la longueur de pénétration du faisceau est de 18 nm. On ne génère donc, en utilisant une pompe bleue, des porteurs que dans la couche d'InP. La diffusion des porteurs leur permet d'atteindre les boîtes quantiques si l'épaisseur de la couche d'InP n'est pas trop importante. On a donc réalisé des expériences avec une pompe et une sonde à 400 nm sur des échantillons de boîtes quantiques avec des caps variables. Les signaux sont reproduits sur la figure 3.22.

Le signal obtenu sur l'échantillon possédant un cap de 120 nm présente une structure centrée à t=27 ps, ce qui correspond au temps de vol d'une onde acoustique générée par les boîtes quantiques et détectée en surface : 120/4.58$\simeq$27 ps. Il y a donc eu capture des

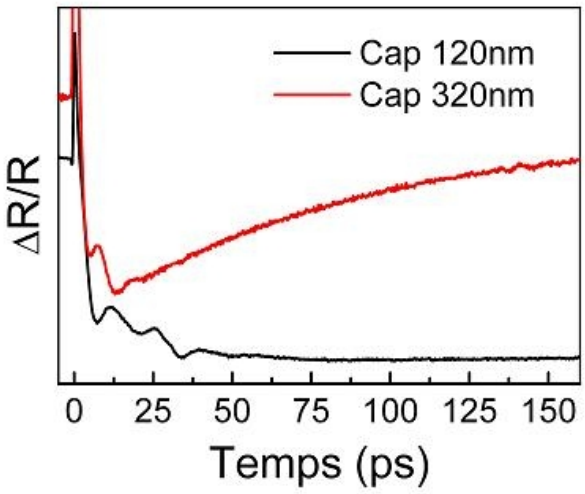


FIGURE *3.22: Changements de réflectivité obtenus sur des échantillons de boîtes d'InAs dans InP avec des caps de 120 nm et 320 nm à une longueur d'onde de pompe et de sonde de 400 nm.*

porteurs par les boîtes quantiques. Par contre, dans le cas de l'échantillon avec un cap de 320 nm, on ne voit pas apparaître de structure à t=320/4.58≃70 ps. La diffusion des porteurs n'est pas assez forte pour que les électrons atteignent les boîtes quantiques. Par contre, on voit un écho à t=140 ps, qui correspond à un aller-retour entre la surface et le plan de boîtes quantiques. De nouveau, l'hypothèse de la capture des porteurs est vérifiée.

Le mécanisme de capture des porteurs permet d'expliquer pourquoi la génération est si forte dans les boîtes d'InAs. Cependant pour les boîtes quantiques de SiGe dans Si, on ne remarque pas cette efficacité. Cela veut-il dire qu'il n'y a pas de capture dans ces systèmes ?

Pour comprendre ce qu'il se passe dans les boîtes quantiques de SiGe dans Si, on va de nouveau étudier l'alignement des bandes d'énergie. Ces systèmes ne possèdent pas le même type d'alignement, il s'agit d'un alignement de type 2, [68, 33] que nous avons représenté sur la figure 3.23.

Comme précédemment, on va s'intéresser à la dynamique des porteurs suite à une impulsion lumineuse. Dans cette configuration, l'énergie d'une impulsion lumineuse à 800 nm (1.55 eV) est supérieure aux bandes interdites du silicium, des boîtes quantiques et de la couche de mouillage, il va donc y avoir génération de porteurs dans toutes les zones. Cependant, comme cela nécessite moins d'énergie pour les électrons de se trouver dans le silicium, que dans les hétérostructures, on va avoir une migration des électrons. On va donc avoir une génération d'ondes acoustiques moins efficace, puisque les électrons vont migrer vers le silicium. Ce phénomène peut expliquer que la génération soit moins efficace dans les boîtes de SiGe que dans celle d'InAs.

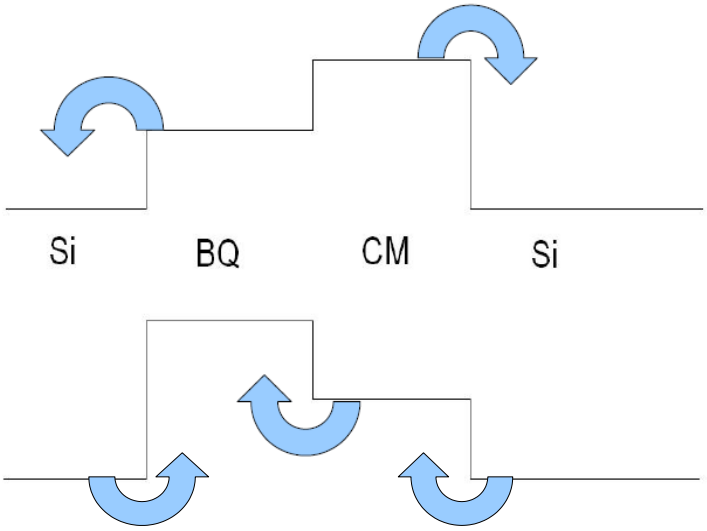


FIGURE *3.23: Alignement des bandes d'énergie pour des boîtes quantiques de type II et dynamique des porteurs*

Pour confirmer le mécanisme de capture des porteurs, on peut également envisager des expériences à basse température. Le temps de capture des porteurs est très dépendant de la température. En suivant l'évolution de l'amplitude de l'écho provenant des boîtes quantiques en fonction de la température, il devient possible d'évaluer la densité de porteurs au sein des boîtes et donc l'efficacité du processus de capture.

Nous sommes donc maintenant en mesure de comprendre l'efficacité de la génération dans les boîtes d'InAs, et pourquoi la génération est plus faible dans les boîtes de SiGe. Il nous reste encore une interrogation sur la génération. Nous savons que la génération a lieu dans le plan de boîtes quantiques, mais provient-elle des boîtes quantiques, de la couche de mouillage ou des deux ?

### 3.3.3 Boîtes quantiques ou couche de mouillage ?

Nous avons vu qu'il reste une incertitude sur la zone exacte de l'émission de l'onde acoustique. S'agit-il de la couche de mouillage et/ou des boîtes quantiques ? Dans cette partie, nous allons voir qu'expérimentalement il y a déjà des indices sur la zone d'émission. Nous verrons ensuite que la structure électronique des boîtes quantiques permet d'avoir d'autres informations.

Lors des expériences sur les boîtes quantiques de la figure 3.16, nous avons observé que le contenu fréquentiel de l'écho varie suivant la taille de la zone émettrice. Expérimentalement, on observe un décalage de la bosse haute fréquence d'une centaine de GHz. En réalisant des simulations numériques où l'on a fait varier la taille de la zone

d'émission, on est capable de réaliser un décalage d'une centaine de GHz en faisant varier la zone d'émission de 2 nm. Cela signifie que dans nos échantillons, la taille de la zone d'émission peut varier de 2 nm. Or les variations de la couche de mouillage sont de l'ordre de la monocouche atomique, contrairement aux boîtes qui peuvent avoir des variations d'épaisseur plus importantes, de l'ordre du nanomètre. On peut donc relier cette variation d'épaisseur de la zone d'émission à une variation de la taille des boîtes. On ne peut donc pas encore conclure sur la zone exacte d'émission, mais on peut déjà dire que les boîtes quantiques jouent un rôle dans la génération.

Nous avons vu que l'efficacité de la génération dépend du nombre de porteurs dans les différentes zones de l'échantillon. Une manière de savoir si la génération a lieu dans les boîtes quantiques consiste à observer l'amplitude de l'onde acoustique en fonction de la puissance de l'impulsion lumineuse. En effet, de par leur confinement, on a une discrétisation des états d'énergie au sein des boîtes quantiques. Le nombre de porteurs qui peuvent être dans un état excité est donc faible. On peut donc espérer, si la génération a lieu dans les boîtes quantiques, observer un phénomène de saturation des niveaux d'énergies des boîtes quantiques et donc de l'amplitude des ondes acoustiques. En effet, nous avons vu que dans la génération par potentiel de déformation, la contrainte, donc l'amplitude de l'écho détecté, est proportionnelle au nombre de porteurs photo-excités. Sur la figure 3.24(a), nous avons reproduit les variations de l'amplitude de l'écho acoustique en fonction de la puissance de l'impulsion lumineuse incidente dans un échantillon comportant un plan de boîtes quantiques d'InAs dans InP(311). Afin de pouvoir affirmer qu'il s'agit bien d'un effet propre aux boîtes quantiques, nous avons réalisé des expériences similaires dans d'autres échantillons : un substrat d'InP ainsi qu'un multi-couches Al/SiN/Si.

Dans cette expérience, nous mesurons l'amplitude d'une contribution acoustique en fonction de la puissance du faisceau lumineux. Pour l'échantillon de boîtes quantiques, nous avons choisi l'amplitude de l'écho (Fig 3.24(b)), pour Al/SiN/Si, l'amplitude des oscillations Brillouin dans Si (Fig 3.24(c)) et pour le substrat d'InP, nous mesurons l'amplitude des oscillations Brillouin de l'onde générée à la surface (Fig 3.24(d)). On remarque, sur la figure 3.24(a), un phénomène de saturation propre à l'échantillon de boîtes quantiques. Tout d'abord, on se trouve dans un régime linéaire, où la probabilité de générer une paire électron-trou est proportionnelle à la puissance de l'onde lumineuse incidente. Puis, à partir de 50 mW, on voit que la croissance de l'amplitude de l'écho n'est plus linéaire. Enfin, à partir de 200 mW, on a la saturation où on occupe tous les états excités des boîtes quantiques par la génération directe ainsi que la capture de porteurs. Au moment de la saturation, c'est-à-dire vers 200 mW, on a une densité de puissance de l'ordre de quelques $kW.cm^{-2}$. Un phénomène de saturation des états électroniques

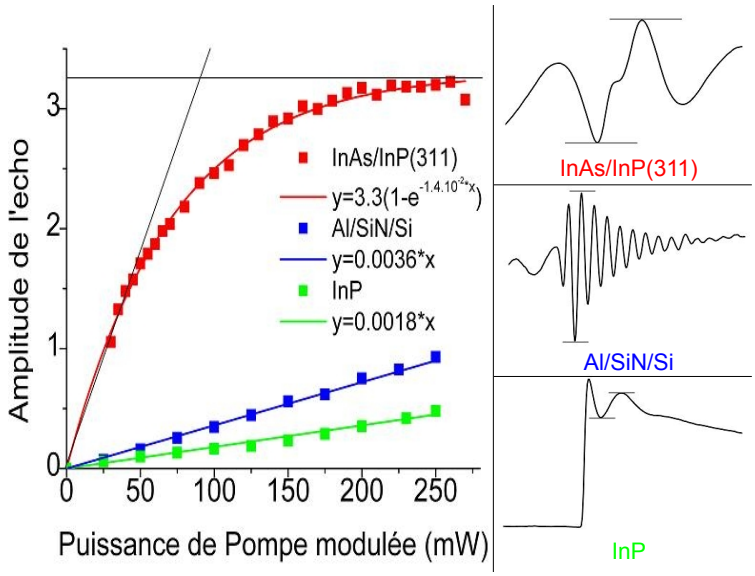


FIGURE *3.24: (a) Variation de l'amplitude de la contribution acoustique de différents échantillons en fonction de la puissance de l'impulsion lumineuse à 800 nm. (b) Echo issues des boîtes sur un échantillon de boîtes quantiques comportant un plan de boîtes quantiques d'InAs recouvert par un film de 400 nm d'InP(311). (c) Oscillations Brillouin détectées dans Si dans un échantillon ayant un transducteur de 10 nm d'Al sur un film de 400 nm de SiN sur substrat Si. (d) Oscillations Brillouin détectées à la surface d'un échantillon d'InP massif.*

des boîtes quantiques d'InAs dans InP(311) a été observé pour une densité de puissance de 1.2 kW.cm$^{-2}$ lors d'expérience de photoluminescence résolue en temps avec une puissance du faisceau laser variable sur des échantillons similaires. [66] Cependant, on peut également envisager que ce phénomène soit causé par un éventuel effet piézo-électrique de la couche d'InP(311), [35] mais un phénomène de saturation similaire est observé dans des boîtes quantiques d'InAs dans GaAs(100), non-piézo-électrique.

On observe donc un phénomène de saturation de l'amplitude des ondes acoustiques, nous avons déterminé que la génération se fait par potentiel de déformation, donc que l'amplitude des ondes acoustiques est proportionnelle à la densité de porteurs photogénérés. Cela signifie donc qu'il y a saturation des niveaux d'énergie des boîtes quantiques, qui est détecté par une saturation de l'amplitude de l'écho détecté. Ce résultat laisse penser que la génération a lieu au sein des boîtes quantiques et non pas dans la couche de mouillage.

Nous avons donc des informations qui semblent montrer que la génération se fait dans les boîtes quantiques elles-mêmes. Mais cela n'est pas suffisant pour donner une conclusion définitive. Une piste qui pourrait être envisagée, serait l'utilisation de boîtes quantiques fabriquées par la méthode Vollmer-Weber. [15, 36] La fabrication par cette méthode a l'avantage d'éviter la formation d'une couche de mouillage. S'il y a génération on pourra conclure qu'elle vient bien des boîtes quantiques.

### Synthèse

*Nous avons donc montré l'intérêt d'utiliser de la matière confinée pour réaliser la transduction d'ondes acoustiques très haute fréquences grâce à une impulsion lumineuse. Dans un premier temps, en étudiant différents systèmes, nous avons démontré la possibilité de générer des ondes acoustiques grâce à des boîtes quantiques. Cette génération est d'ailleurs extrêmement efficace pour les boîtes d'InAs, à peu près vingt fois plus que dans un film mince d'aluminium.*

*Dans le cadre de nos boîtes quantiques, nous avons montré que l'impulsion acoustique générée contient des composantes fréquentielles supérieures au terahertz. Grâce à un modèle qui permet de choisir judicieusement les paramètres expérimentaux, nous avons pu détecter ces fréquences à température ambiante, prouvant l'amplitude exceptionnelle de l'onde acoustique issue des boîtes quantiques. Nous avons également vu que notre modèle n'est pas restreint à cet échantillon, mais que l'on peut l'appliquer à tous les échantillons où la détection photo-élastique a lieu comme le montre l'application au tungstène.*

*Nous avons finalement montré que cette génération avait lieu à travers le mécanisme de potentiel de déformation. En suivant la dynamique des porteurs, il a également été possible de montrer la capture des porteurs dans les boîtes et donc l'efficacité de la génération. Cette capture est aussi responsable d'un phénomène de saturation des niveaux d'énergies des boîtes quantiques qui a permis d'attribuer la génération aux boîtes.*

# Conclusion

Ce manuscrit traite de l'acoustique picoseconde, des principes qui la régissent, de ses limitations et des moyens pour l'améliorer.

Dans un premier temps, nous nous sommes concentrés sur la technique. Nous avons décrit le modèle de la génération d'ondes acoustiques par une impulsion laser et mis en évidence les limitations au niveau des ondes acoustiques générées. Tout particulièrement, nous avons mis en évidence que seules des ondes longitudinales peuvent être excitées et que le contenu fréquentiel de ces ondes est limité, il est difficile d'atteindre le terahertz. Nous nous sommes ensuite intéressés aux différentes solutions qui permettent d'outrepasser ces limites. La réduction des faisceaux, les propriétés cristallographiques et l'utilisation de nanostructures permettent la génération d'ondes non longitudinales, tout comme les propriétés non-linéaires et les super-réseaux ouvrent la voie vers l'acoustique très hautes fréquences.

Notre choix pour permettre la génération d'ondes non longitudinales s'est porté sur l'utilisation de nanostructures. Nous avons montré expérimentalement que la nanostructuration périodique d'une surface permet la génération d'ondes de surface. Un modèle théorique a été mis au point et permet d'expliquer les modes de vibrations observés expérimentalement. Nous avons ensuite mis au point un modèle permettant de décrire le mécanisme de détection de ces ondes de surface. Les ondes de surface étant un mélange d'ondes transverses et longitudinales, nous avons profité de cette dualité pour développer une technique de caractérisation complète de couches minces.

Dans la troisième et dernière partie, la question des très hautes fréquences nous a interéssée. Les boîtes quantiques semiconductrices ont retenus notre attention pour résoudre le problème de la génération d'ondes terahertz. Dans un premier temps, nous avons montré la possibilité de générer de manière très efficace des ondes acoustiques dans des boîtes quantiques. Nous nous sommes alors penchés sur le contenu fréquentiel de l'impulsion acoustique et avons été capables d'atteindre des fréquences au-delà du terahertz à température ambiante. L'utilisation de la basse température pourrait permettre d'obtenir des fréquences encore plus élevées. Nous avons ensuite étudiés l'influence de l'organisation de boîtes quantiques entre elles sur la réponse acoustique de ces dernières.

Les réseaux de nanostructures semblent être une ressource intarissable de développement. La réalisation de réseaux de période plus petite où l'onde de surface pénètre moins profondément va permettre d'appliquer la technique de caractérisation mécanique complète à des films encore plus minces. L'identification du mécanisme de détection est un autre des défis à relever. D'autres nombreuses idées sont à développer, notamment la propagation des ondes de surfaces : peut-on utiliser un réseau pour générer et un réseau pour détecter. De plus, le fait que ces réseaux soient aussi des cristaux phononiques leur confère des propriétés particulières : existe-t-il une bande interdite acoustique ? Peut-on générer des ondes avec une vitesse de groupe négative ?

Les caractéristiques de la génération par les boîtes quantiques laissent apercevoir des applications futures de ces dernières : la haute fréquence pour pouvoir sonder des objets toujours plus petits et l'amplitude pour réaliser des solitons. Si nous voulons explorer plus en profondeur la dynamique des porteurs et donc la zone de génération, nous pouvons étudier d'autres systèmes de boîtes quantiques. Nous nous sommes restreints à l'étude de boîtes quantiques fabriquées par épitaxie par jets moléculaire par la méthode Stranski-Krastanov, qui est la méthode la plus répandue. Cependant, maintenant que la génération a été démontrée, on peut envisager l'étude de boîtes quantiques obtenues par la méthode Volmer-Weber, [15, 36] où il n'y a pas de couche de mouillage, ou par d'autres méthodes. [2]

# Bibliographie


[1] A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, D. R. Yakovlev, C. T. Foxon et M. Bayer. « Ultrafast Band-Gap Shift Induced by a Strain Pulse in Semiconductor Heterostructures ». *Phys. Rev. Lett.*, **97**(3), 037401, Jul 2006.

[2] A. P. Alivisatos. « Semiconductor Clusters, Nanocrystals, and Quantum Dots ». *Science*, **271**(5251), 933–937, 1996.

[3] G. Andrew Antonelli, Peter Zannitto et Humphrey J. Maris. « New method for the generation of surface acoustic waves of high frequency ». *Physica B*, **316**, 377, 2002.

[4] ATILA. « 6.0.0 ». *Finite Element Code*, page ISEN Lille, France.

[5] Simon Ayrinhac. « *Propagation et atténuation du son dans la silice - étude par spectroscopie Brillouin et acoustique picoseconde* ». PhD thesis, Université Montpellier II, 2008.

[6] A. Bartels, F. Hudert, C. Janke, T. Dekorsy et 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), 041117, 2006.

[7] Albrecht Bartels, Thomas Dekorsy, Heinrich Kurz et Klaus Köhler. « Coherent Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonons in Semiconductor Superlattices : Excitation and Detection ». *Phys. Rev. Lett.*, **82**(5), 1044–1047, Feb 1999.

[8] A. Boé, A. Safi, M. Coulombier, T. Pardoen et J.-P. Raskin. « Internal stress relaxation based method for elastic stiffness characterization of very thin films ». *Thin Solid Films*, **518**(1), 260 – 264, 2009.

[9] B. Bonello, A. Ajinou, V. Richard, Ph. Djemia et S. M. Chérif. « Surface acoustic waves in the GHz range generated by periodically patterned metallic stripes illuminated by an ultrashort laser pulse ». *The Journal of the Acoustical Society of America*, **110**(4), 1943–1949, 2001.

[10] Wei Chen, Yu Lu, Humphrey J. Maris et Gang Xiao. « Picosecond ultrasonic study of localized phonon surface modes in Al/Ag superlattices ». *Phys. Rev. B*, **50**(19), 14506–14515, Nov 1994.

[11] A. Devos et A. Le Louarn. « Strong effect of interband transitions in the picosecond ultrasonics response of metallic thin films ». *Phys. Rev. B*, **68**(4), 045405, Jul 2003.

[12] A. Devos et C. Lerouge. « Evidence of Laser-Wavelength Effect in Picosecond Ultrasonics : Possible Connection With Interband Transitions ». *Phys. Rev. Lett.*, **86**(12), 2669–2672, Mar 2001.

[13] A. Devos, F. Poinsotte, J. Groenen, O. Dehaese, N. Bertru et A. Ponchet. « Strong Generation of Coherent Acoustic Phonons in Semiconductor Quantum Dots ». *Phys. Rev. Lett.*, **98**(20), 207402, May 2007.

[14] W. B. Gauster et D. H. Habing. « Electronic Volume Effect in Silicon ». *Phys. Rev. Lett.*, **18**(24), 1058–1061, Jun 1967.

[15] G.E.Cirlin, N.K.Polyakov, V.N.Petrov, V.A.Egorov, D.V.Denisov, B.V.Volovik, V.M.Ustinov, Zh.I.Alferov, N.N.Ledentsov, R.Heitz, D.Bimberg, N.D.Zakharov, P.Werner et U.Gösele. « Heteroepitaxial Growth of InAs on Si : the New Type of Quantum Dots ». *Mater. Phys. Mech.*, **1**(1), 15–19, 2000.

[16] C. Giannetti, B. Revaz, F. Banfi, M. Montagnese, G. Ferrini, F. Cilento, S. Maccalli, P. Vavassori, G. Oliviero, E. Bontempi, L. E. Depero, V. Metlushko et F. Parmigiani. « Thermomechanical behavior of surface acoustic waves in ordered arrays of nanodisks studied by near-infrared pump-probe diffraction experiments ». *Phys. Rev. B*, **76**(12), 125413, Sep 2007.

[17] H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc et B. Abeles. « Time-resolved study of vibrations of a-Ge :H/a-Si :H multilayers ». *Phys. Rev. B*, **38**(9), 6066–6074, Sep 1988.

[18] V. E. Gusev et A. A. Karabutov. *Laser Optoacoustics*. Institute of Physics, Woodbury, New-York, 1993.

[19] H.-Y. Hao et H. J. Maris. « Experiments with acoustic solitons in crystalline solids ». *Phys. Rev. B*, **64**(6), 064302, Jul 2001.

[20] Ha Minh Hiep, Tatsuro Endo, Kagan Kerman, Miyuki Chikae, Do-Kyun Kim, Shohei Yamamura, Yuzuru Takamura et Eiichi Tamiya. « A localized surface plasmon resonance based immunosensor for the detection of casein in milk ». *Science and Technology of Advanced Materials*, **8**(4), 331–338, 2007.

[21] S. Hinooda, S. Loualiche, B. Lambert, N. Bertru, M. Paillard, X. Marie et T. Amand. « Wetting layer carrier dynamics in InAs/InP quantum dots ». *Applied Physics Letters*, **78**(20), 3052–3054, 2001.

[22] D. H. Hurley. « Optical generation and spatially distinct interferometric detection of ultrahigh frequency surface acoustic waves ». *Applied Physics Letters*, **88**(191106), 2006.

[23] D. H. Hurley, R. Lewis, O. B. Wright et O. Matsuda. « Coherent control of gigahertz surface acoustic and bulk phonons using ultrafast optical pulses ». *Applied Physics Letters*, **93**(113101), 2008.

[24] D. H. Hurley et K. L. Telschow. « Picosecond surface acoustic waves using a suboptical wavelength absorption grating ». *Phys. Rev. B*, **66**(15), 153301, Oct 2002.

[25] D. H. Hurley, O. B. Wright, O. Matsuda, V. E. Gusev et O. V. Kolosov. « Laser picosecond acoustics in isotropic and anisotropic materials ». *Ultrasonics*, **38**(1-8), 470 – 474, 2000.

[26] David H. Hurley et Oliver B. Wright. « Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer ». *Opt. Lett.*, **24**(18), 1305–1307, 1999.

[27] A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual-Winter, E. Peronne et A. Lemaître. « Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities ». *Phys. Rev. Lett.*, **97**(11), 115502, Sep 2006.

[28] A Huynh, B Perrin, N D Lanzillotti, B Jusserand et A LemaÃ®tre. « Optical excitation and detection of terahertz acoustic waves with semiconductor superlattices ». *Journal of Physics : Conference Series*, **214**(1), 012047, 2010.

[29] A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein et A. Lemaître. « Subterahertz monochromatic acoustic wave propagation using semiconductor superlattices as transducers ». *Phys. Rev. B*, **78**(23), 233302, Dec 2008.

[30] Kenji Katayama, Tsuguo Sawada, Qing Shen et Akira Harata. « Detection of photoinduced electronic, thermal, and acoustic dynamics of gold film using a transient reflecting grating method under three types of surface plasmon resonance conditions ». *Phys. Rev. B*, **58**(13), 8428–8436, Oct 1998.

[31] M. T. Kim. « Influence of substrates on the elastic reaction of films for the microindentation tests ». *Thin solid films*, **283**, 12–16, 1996.

[32] L.D. Landau et E.M. Lifshitz. *Theory of Elasticity.* Pergamon Press, New York, 1959.

[33] M. Larsson, A. Elfving, P. O. Holtz, G. V. Hansson et W.-X. Ni. « Spatially direct and indirect transitions observed for Si/Ge quantum dots ». *Applied Physics Letters*, **82**(26), 4785–4787, 2003.

[34] H.-N. Lin, H. J. Maris, L. B. Freund, K. Y. Lee, H. Luhn et D. P. Kern. « Study of vibrational modes of gold nanostructures by picosecond ultrasonics ». *Journal of Applied Physics*, **73**(37), 1993.

[35] Kung-Hsuan Lin, Chih-Ming Lai, Chang-Chi Pan, Jen-Inn Chyi, Jin-Wei Shi, Shih-Ze Sun, Chieh-Feng Chang et Chi-Kuang Sun. « Spatial manipulation of nanoacoustic waves with nanoscale spot sizes ». *Nature Nanotechnology*, **2**, 704–708, 2007.

[36] J. G. Lu, Z. Z. Ye, Y. Z. Zhang, Q. L. Liang, Sz. Fujita et Z. L. Wang. « Self-assembled ZnO quantum dots with tunable optical properties ». *Applied Physics Letters*, **89**(2), 023122, 2006.

[37] Jun-Wei Luo, Shu-Shen Li, Jian-Bai Xia et Lin-Wang Wang. « Photoluminescence pressure coefficients of $InAs?GaAs$ quantum dots ». *Phys. Rev. B*, **71**(24), 245315, Jun 2005.

[38] G. Macheleidt. « The influence of piezoelectric coupling on material constants determining Brillouin scattering ». *Acta Crystallographica Section A*, **31**(6), 801–803, Nov 1975.

[39] O. Madelung. *Semiconductors Groupe IV Elements and III-V compounds*. Springer-Verlag, Berlin, 1991.

[40] P.A. Mante, J.F. Robillard et A. Devos. « Complete thin film mechanical characterization using picosecond ultrasonics and nanostructured transducers : experimental demonstration on SiO2 ». *Applied Physics Letters*, **93**(071909), 2008.

[41] O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. E. Gusev et K. Shimizu. « Coherent Shear Phonon Generation and Detection with Ultrashort Optical Pulses ». *Phys. Rev. Lett.*, **93**(9), 095501, Aug 2004.

[42] K. Mizoguchi, M. Hase, S. Nakashima et M. Nakayama. « Observation of coherent folded acoustic phonons propagating in a GaAs/AlAs superlattice by two-color pump-probe spectroscopy ». *Phys. Rev. B*, **60**(11), 8262–8266, Sep 1999.

[43] C. J. Morath et H. J. Maris. « Phonon attenuation in amorphous solids studied by picosecond ultrasonics ». *Phys. Rev. B*, **54**(1), 203–213, Jul 1996.

[44] A. L. Moretti, W. M. Robertson, B. Fisher et Ralph Bray. « Surface-enhanced Brillouin scattering on silver films ». *Phys. Rev. B*, **31**(6), 3361–3368, Mar 1985.

[45] W.C. Oliver et G.M. Pharr. « Review : Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation : Advances in understanding and refinements to methodology ». *J. Mat. Res.*, **19**, 3, 2004.

[46] E. D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, London, 1985.

[47] C. Paranthoen, N. Bertru, O. Dehaese, A. Le Corre, S. Loualiche, B. Lambert et G. Patriarche. « Height dispersion control of InAs/InP quantum dots emitting at 1.55 mu m ». *Applied Physics Letters*, **78**(12), 1751–1753, 2001.

[48] B. Perrin, B. Bonello, J.C. Chanet et E. Romatet. « Interferometric detection of hypersound waves in modulated structures ». *Prog. Nat. Sci.*, **6**, 444, 1996.

[49] T. Pezeril, P. Ruello, S. Gougeon, N. Chigarev, D. Mounier, J.-M. Breteau, P. Picart et V. Gusev. « Generation and detection of plane coherent shear picosecond acoustic pulses by lasers : Experiment and theory ». *Phys. Rev. B*, **75**(17), 174307, May 2007.

[50] Fanny Poinsotte. « *Son et matière nanostructurée : diffusion Raman et acoustique picoseconde* ». PhD thesis, Université Toulouse III, 2006.

[51] H. Raether. *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*. Springer-Verlag, Berlin, 1988.

[52] J.-F. Robillard, A. Devos et I. Roch-Jeune. « Time-resolved vibrations of two-dimensional hypersonic phononic crystals ». *Phys. Rev. B*, **76**(9), 092301, Sep 2007.

[53] J.-F. Robillard, A. Devos, I. Roch-Jeune et P. A. Mante. « Collective acoustic modes in various two-dimensional crystals by ultrafast acoustics : Theory and experiment ». *Phys. Rev. B*, **78**(6), 064302, Aug 2008.

[54] Jean-François Robillard. « *Etude par acoustique picoseconde des vibrations individuelles et collectives de nanostructures organisées* ». PhD thesis, Université Lille I, 2008.

[55] C. Rossignol, N. Chigarev, M. Ducousso, B. Audoin, G. Forget, F. Guillemot et M. C. Durrieu. « In Vitro picosecond ultrasonics in a single cell ». *Applied Physics Letters*, **93**(12), 123901, 2008.

[56] C. Rossignol, J. M. Rampnoux, M. Perton, B. Audoin et S. Dilhaire. « Generation and Detection of Shear Acoustic Waves in Metal Submicrometric Films with Ultrashort Laser Pulses ». *Phys. Rev. Lett.*, **94**(16), 166106, Apr 2005.

[57] D. Royer et E. Dieulesaint. *Ondes Elastiques dans les Solides*. Masson, Paris, 1996.

[58] Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. Wiley-Interscience, New-York, 1984.

[59] Mark E. Siemens, Qing Li, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn, Ronggui Yang, Erik H. Anderson et Keith A. Nelson. « High-frequency surface acoustic wave propagation in nanostructures characterized by coherent extreme ultraviolet beams ». *Applied Physics Letters*, **94**(93103), 2009.

[60] Wisit Singhsomroje et Humphrey J. Maris. « Generating and detecting phonon solitons in MgO using picosecond ultrasonics ». *Phys. Rev. B*, **69**(17), 174303, May 2004.

[61] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris et J. Tauc. « Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses ». *Phys. Rev. B*, **34**(6), 4129–4138, Sep 1986.

[62] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc et J. J. Hauser. « Coherent Phonon Generation and Detection by Picosecond Light Pulses ». *Phys. Rev. Lett.*, **53**(10), 989–992, Sep 1984.

[63] Ra'anan I. Tobey, Mark E. Siemens, Oren Cohen, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn et Keith A. Nelson. « Ultrafast extreme ultraviolet holography : dynamic monitoring of surface deformation ». *Opt. Lett.*, **32**(3), 286–288, 2007.

[64] P. J. S. van Capel et J. I. Dijkhuis. « Time-resolved interferometric detection of ultrashort strain solitons in sapphire ». *Phys. Rev. B*, **81**(14), 144106, Apr 2010.

[65] Martin van Exter et Ad Lagendijk. « Ultrashort Surface-Plasmon and Phonon Dynamics ». *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1), 49–52, Jan 1988.

[66] K. Veselinov, F. Grillot, P. Miska, E. Homeyer, P. Caroff, C. Platz, J. Even, X. Marie, O. Dehaese, S. Loualiche et A. Ramdane. « Carrier Dynamics and Saturation Effect in (113)B InAs/InP Quantum Dot Lasers ». *Optical and Quantum Electronics*, **38**(4-6), 369–379, May 2006.

[67] P. M. Walker, A. J. Kent, M. Henini, B. A. Glavin, V. A. Kochelap et T. L. Linnik. « Terahertz acoustic oscillations by stimulated phonon emission in an optically pumped superlattice ». *Phys. Rev. B*, **79**(24), 245313, Jun 2009.

[68] J. Wan, G. L. Jin, Z. M. Jiang, Y. H. Luo, J. L. Liu et Kang L. Wang. « Band alignments and photon-induced carrier transfer from wetting layers to Ge islands grown on Si(001) ». *Applied Physics Letters*, **78**(12), 1763–1765, 2001.

[69] Jincheng Wang, Jian Wu et Chunlei Guo. « Resolving dynamics of acoustic phonons by surface plasmons ». *Opt. Lett.*, **32**(6), 719–721, 2007.

[70] J. H. Weaver, C. G. Olson et D. W. Lynch. « Optical properties of crystalline tungsten ». *Phys. Rev. B*, **12**(4), 1293–1297, Aug 1975.

[71] O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda et V. E. Gusev. « Ultrafast carrier diffusion in gallium arsenide probed with picosecond acoustic pulses ». *Phys. Rev. B*, **64**(8), 081202, Aug 2001.

[72] Aishi Yamamoto, Tomobumi Mishina, Yasuaki Masumoto et Masaaki Nakayama. « Coherent Oscillation of Zone-Folded Phonon Modes in GaAs-AlAs Superlattices ». *Phys. Rev. Lett.*, **73**(5), 740–743, Aug 1994.

[73] Shuo Zhang. « *Génération et détection de solitons acoustiques ultrabrefs : application à l'étude des nanostructures* ». PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2009.

# Annexes

# Liste de publications et de communications

## Publications avec comité de lecture

-S. Ayrinhac, A. Devos, A. Le Louarn, P.-A. Mante, and P. Emery, *Ultrafast acoustics in the middle UV range : coherent phonons at higher frequencies and in smaller objects*, Opt. Lett., **35**, 3510 (2010)
-P.A. Mante, A. Devos and A. Le Louarn, *Generation of terahertz acoustic waves in semiconductor quantum dots using femtosecond laser pulses*, Phys. Rev. B, **81**, 113305 (2010)
-P.A. Mante, J.F. Robillard and A. Devos, *Complete thin film mechanical characterization using picosecond ultrasonics and nanostructured transducers : experimental demonstration on $SiO_2$*, Appl. Phys. Lett, **93**, 71909 (2008)
-J.F. Robillard, A. Devos, I. Roch-Jeune and P.A. Mante, *Collective acoustic modes in various two-dimensional crystals by ultrafast acoustics : Theory and experiment*, Phys. Rev. B, **78**, 064302 (2008)

## Conférence internationales avec actes

-P.A. Mante and A. Devos, *Complete characterization of thin films using ultrafast acoustics*, 2nd International Symposium on Laser-Ultrasonics, Bordeaux, France (2010)
-A. Devos and P.A. Mante, *High frequency acoustics using quantum dots*, 2nd International Symposium on Laser-Ultrasonics, Bordeaux, France (2010)
-P.A. Mante and A. Devos, *Semiconductor quantum dots for terahertz acoustic generation*, 13th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Taipei, Taiwan (2010)
-P.A. Mante, A. Devos, G. Raymond, P. Morin and P. Ancey, *Comparison between picosecond ultrasonics and nanoindentation characterization in thin film*, IEEE International Ultrasonics Symposium, Roma, Italy (2009)
-A. Devos, P.A. Mante and J.F. Robillard, *Ultrafast Acoustics in 2D Phononic Crystals*, 15th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, Leuven, Belgium (2009)
-P.A. Mante and A. Devos, *High Frequency acoustic pulse using semiconductor quantum dots*, 15th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, Leu-

ven, Belgium (2009)
-P.A. Mante, J.F. Robillard and A. Devos, *Towards thin film complete characterization using picosecond ultrasonics*, IEEE International Ultrasonics Symposium, Beijing, China (Student Paper Award) (2008)
-P.A. Mante, J.F. Robillard, A. Devos and I. Roch Jeune, *Complete characterization in thin film using picosecond ultrasonics and nanostructured transducer*, Acoustics'08, Paris, France (2008)