

Étude de la conversion de phonons polaritons en phonons acoustiques par spectroscopie THz.

Aurore Finco

juillet 2012

Responsable du stage : Thomas Pezeril
Institut des Molécules et Matériaux du Mans.

Résumé

La méthode actuellement la plus efficace pour générer des impulsions THz repose sur l'excitation par un laser femtoseconde de phonons polaritons dans un cristal de LiNbO_3 , qui est un matériau piézoélectrique. L'objectif de cette expérience est de détecter les ondes acoustiques qui doivent être produites au passage de l'impulsion THz. Il s'agit d'une expérience pompe sonde dont le but est de voir des oscillations Brillouin qui sont la preuve de la présence d'une onde acoustique au sein du cristal. Nous avons également tenté de mettre en évidence la présence des ondes acoustiques en mesurant la rotation de la polarisation du faisceau sonde (due à la modification de la biréfringence créée par les ondes transverses). L'orientation du cristal de LiNbO_3 nécessaire pour générer le rayonnement THz n'étant pas la plus favorable pour générer et détecter les ondes acoustiques, nous avons ensuite utilisé un échantillon de BiFeO_3 pour étudier les ondes acoustiques et nous avons ainsi pu détecter la présence d'ondes longitudinales.

Abstract

The most efficient known way to generate THz pulses is based on the excitation of polaritons phonons with a femtosecond laser in a crystal of LiNbO_3 . Because LiNbO_3 is a piezoelectric material, some acoustic waves must be created when the THz pulse propagates inside the crystal. In order to detect these waves, we used a pump probe experiment. Our purpose was to detect Brillouin oscillations, an interference signal produced by the propagating wave front. We also tried to measure the rotation of the probe beam polarization which is supposed to be created by the transversal acoustic waves. However, the orientation of the crystal which is required to generate the THz pulse is not the best one to generate acoustic waves. This is the reason why we used a BiFeO_3 sample in which we managed to detect longitudinal acoustic waves.

Table des matières

1	Mise en place de la source THz.	4
1.1	Méthode de génération.	4
1.2	Montage expérimental	5
1.3	Mesure de l'intensité du rayonnement obtenu.	6
1.4	Mesure résolue en temps.	8
1.4.1	Montage pompe sonde.	8
1.4.2	Résultats obtenus.	8
2	Ondes acoustiques générées par piézoélectricité.	9
2.1	Calcul théorique du déplacement.	9
2.1.1	Position et simplification du problème.	9
2.1.2	Résolution des équations.	11
2.2	Oscillations Brillouin.	12
2.2.1	Principe.	12
2.2.2	Montage expérimental.	13
2.2.3	Résultats obtenus.	13
2.3	Mesures de la rotation de polarisation.	14
2.4	Mesures dans un échantillon de BiFeO_3	14
2.4.1	Étude de l'absorption de l'échantillon.	15
2.4.2	Fréquences Brillouin dans le BiFeO_3	15
2.4.3	Résultats obtenus.	16

Introduction

Le rayonnement THz présente des propriétés qui le rendent utile dans les domaines de l'imagerie (il est réfléchi par le métal et transmis par les vêtements par exemple) et de la spectroscopie car sa longueur d'onde millimétrique est adaptée à l'étude de nombreux composés chimiques. Il est cependant difficile à générer par des méthodes électroniques, car sa fréquence est trop élevée, et optiques, car elle est trop basse dans ce cas. La méthode de génération de rayonnement THz développée dans [1] et [2] est la plus efficace connue actuellement. Elle est fondée sur l'excitation de dipôles ou polaritons dans un matériau, ici le LiNbO_3 qui est fortement piézoélectrique. Le rayonnement THz devrait donc en s'y propageant produire une déformation acoustique à l'origine de la propagation de phonons acoustiques à des fréquences THz, c'est à dire des fréquences très élevées pour des ondes acoustiques. L'objectif est de détecter ces phonons acoustiques grâce à une expérience pompe sonde en observant des oscillations Brillouin, c'est à dire des interférences au niveau du faisceau sonde dues à la propagation d'une discontinuité d'indice optique au niveau du front de l'onde acoustique. On étudiera donc les caractéristiques théoriques des ondes acoustiques générées avant de chercher à les détecter expérimentalement.

1 Mise en place de la source THz.

1.1 Méthode de génération.

Le rayonnement THz est généré dans le cristal de LiNbO_3 par la méthode mise au point par J. Hebling dans [1]. Ce rayonnement est créé par l'excitation de polaritons, qui sont des modes de vibration du réseau cristallin qui résultent d'un couplage entre un mode de phonons optique et la polarisation macroscopique du milieu en présence d'un champ électromagnétique [4]. La méthode repose sur un processus non linéaire, la rectification optique, c'est à dire l'apparition d'une polarisation dans le milieu au passage d'un faisceau laser intensément focalisé. L'efficacité de la rectification optique dépend des coefficients non linéaires du matériau utilisé, de ω_{THz}^2 où ω_{THz} est la pulsation du rayonnement émis (qui est faible dans le cas du rayonnement THz) et de la correspondance entre les vitesses de propagation du rayonnement visible (pompe) et du rayonnement THz au sein du matériau. Or dans la plupart des matériaux utilisables, l'indice optique varie beaucoup entre ces deux longueurs d'onde (visible et infrarouge lointain). Cependant, il s'avère qu'il suffit d'avoir l'égalité des projections de ces deux vitesses selon la direction de propagation du rayonnement THz. La condition s'écrit alors :

$$v_{vis} \cos(\gamma) = v_{THz}$$

Pour un matériau dont l'indice est sensiblement plus grand dans l'infrarouge que dans le visible, il est alors possible de remplir cette condition en choisissant un angle γ approprié. Comme le rayonnement THz se propage moins vite que la lumière visible qui constitue le faisceau pompe, il se propage suivant un cône, comme on peut le voir sur la figure 1. L'angle Θ_C est donné par :

$$\Theta_C = \text{Arccos}\left(\frac{v_{THz}}{v_{vis}}\right)$$

De plus, dans ce cette configuration, l'extension spatiale du faisceau pompe est limitée, le rayonnement THz ne peut être émise que si le waist w du faisceau vérifie :

$$w < v_{vis}\tau$$

où τ est la durée de l'impulsion pompe. Cela empêche d'augmenter la puissance du rayonnement émis en augmentant la taille faisceau pompe. En inclinant le front d'onde

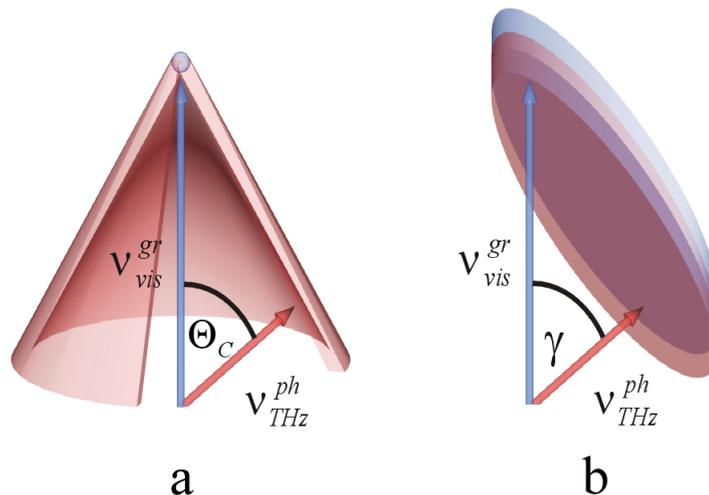


FIGURE 1 – Deux méthodes possibles pour générer le rayonnement THz. Dans le cas (a), il se propage suivant un cône déterminé par l'angle Θ_C tandis que dans la configuration (b), le front d'onde de l'impulsion pompe est incliné ce qui permet de générer une onde plane, sans limite pour l'extension spatiale de la pompe (figure extraite de [1]).

de l'impulsion pompe, on peut réussir à générer une onde plane (qui est plus facile à manipuler qu'une onde émise suivant un cône) et à s'affranchir de la limite sur l'extension spatiale du faisceau (puisque l'onde ne se propage plus suivant un cône). Pour faire cela, on utilise un réseau dont on fait l'image dans le cristal. L'inclinaison du front d'onde est due à la diffraction sur le réseau. On peut ensuite optimiser la génération en faisant en sorte que l'image du réseau soit tangente au front d'onde et en faisant varier la durée des impulsions de la pompe ainsi que la température. Grâce à cette technique, on peut générer un champ électrique dont l'amplitude est de l'ordre de 100 kV.cm^{-1} .

1.2 Montage expérimental

Afin de réaliser la source THz, nous avons utilisé un cristal de LiNbO_3 . Le LiNbO_3 a une structure trigonale 3m (voir[6]) et afin que la génération du THz soit efficace, il faut que le champ incident soit polarisé suivant l'axe de haute symétrie (ordre 3) du cristal, c'est à dire l'axe z sur la figure 2. Le faisceau laser de départ est polarisé horizontalement, on utilise donc une lame demi-onde après le réseau afin d'obtenir une polarisation verticale au niveau du prisme. Le réseau utilisé pour incliner le front d'onde doit être orienté précisément (il est nécessaire d'avoir un angle de 15° entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi) afin d'obtenir le bon angle d'inclinaison du front d'onde

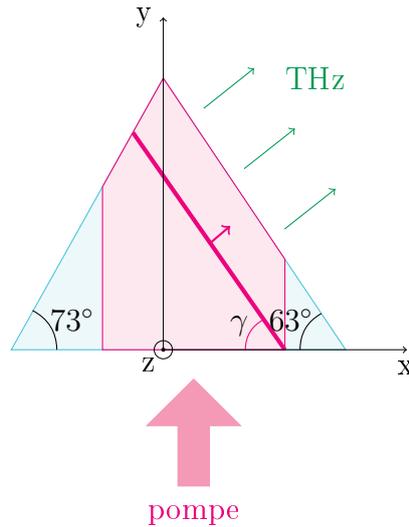


FIGURE 2 – Schéma du prisme de LiNbO_3 utilisé. Le front d'onde de la pompe est incliné d'un angle γ afin de générer un rayonnement THz sous forme d'onde plane qui se propage perpendiculairement au bord du prisme. Le champ électrique incident est polarisé suivant la direction z , axe de haute symétrie du cristal.

du faisceau. On fait ensuite l'image du réseau dans le cristal à l'aide d'une lentille. La figure 3 présente le montage complet.

1.3 Mesure de l'intensité du rayonnement obtenu.

Pour mesurer le rayonnement THz généré, on utilise un détecteur pyroélectrique. Ce détecteur ne fonctionne que pour un signal périodique et sa sensibilité varie avec la fréquence, elle est maximale à 10 Hz et diminue quand la fréquence augmente. On utilise donc un hacheur optique réglé à 20 Hz (la fréquence minimale possible) au niveau de la pompe.

On peut alors mesurer l'amplitude du rayonnement THz généré grâce au détecteur quand on fait varier le courant d'alimentation du laser. Cependant la relation entre la puissance du laser à l'entrée du montage et le courant d'alimentation n'est pas linéaire, comme on peut le voir sur la courbe de la figure 5a. Pour des raisons pratiques, j'ai mesuré la puissance au niveau de la sonde, c'est à dire au niveau du faisceau transmis par la lame séparatrice. D'après les données fournies par le constructeur, la lame devrait réfléchir 95% de la puissance et en transmettre 5%. On constate sur la figure 4 que la lame transmet en réalité 10% de la puissance. On obtient grâce à une régression linéaire le coefficient à utiliser pour calculer la puissance d'entrée en fonction de celle de la sonde. Finalement, l'amplitude du rayonnement THz mesurée en fonction de la puissance d'entrée mesurée est présentée sur la figure 5b. On observe deux régimes différents : pour de faibles puissances, la relation entre les deux grandeurs semble quadratique puis elle devient linéaire quand la puissance augmente.

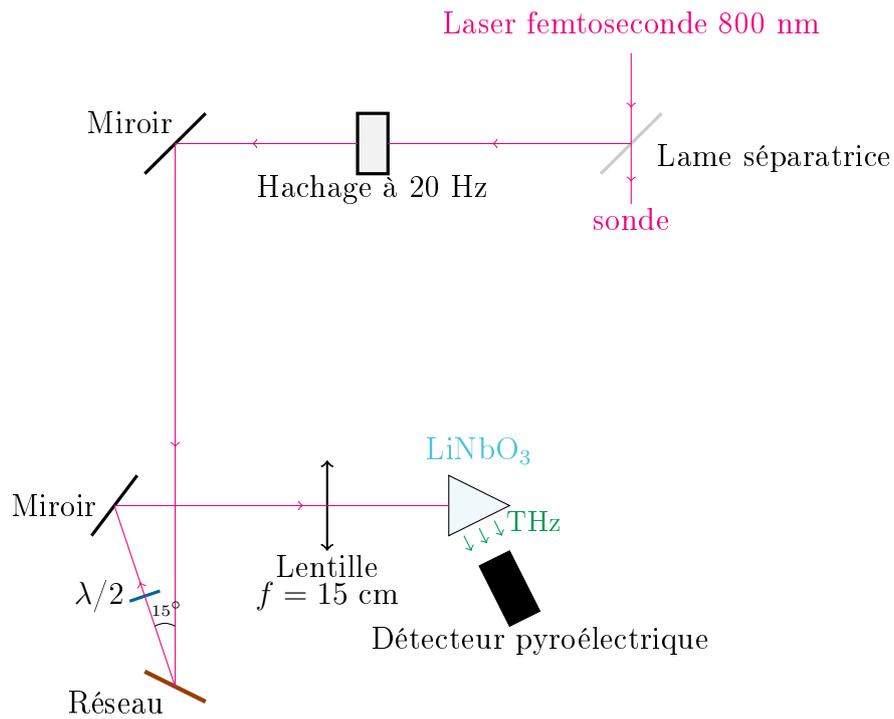


FIGURE 3 – Schéma du montage expérimental de la source THz.

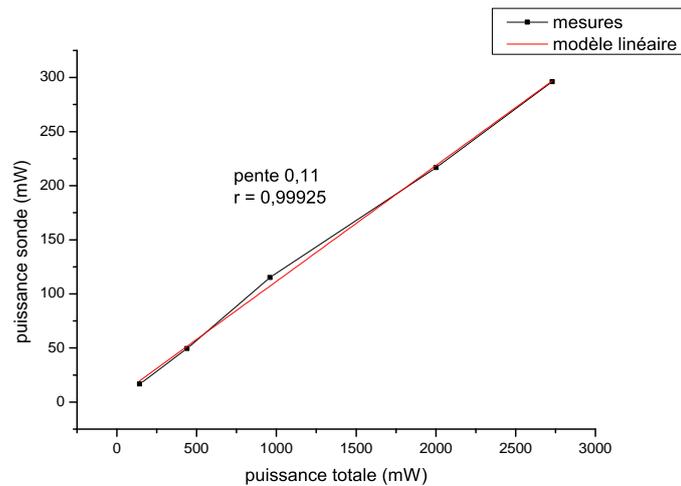


FIGURE 4 – Cette courbe présente la puissance au niveau de la sonde en fonction de la puissance totale mesurée pour plusieurs valeurs du courant d'alimentation. Elle permet d'obtenir le coefficient de transmission en puissance de la lame séparatrice placée en début de montage.

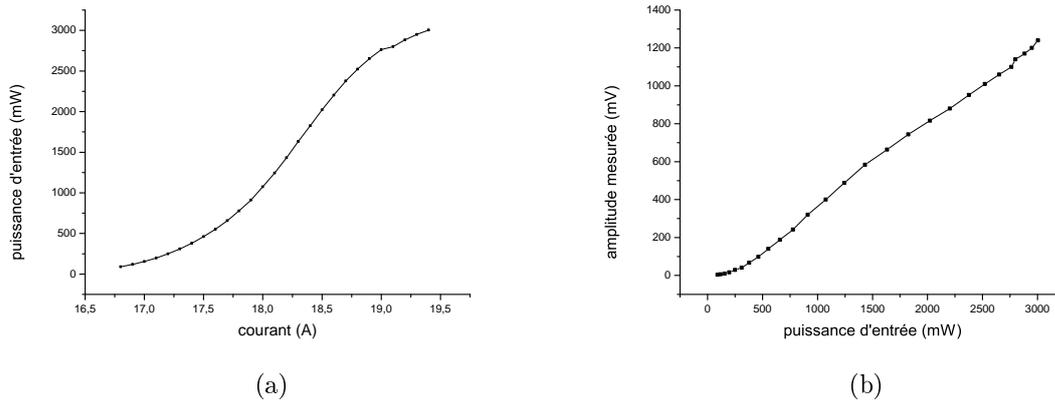


FIGURE 5 – Courbes présentant la puissance en entrée du montage en fonction du courant 5a et l'amplitude du rayonnement THz en fonction de la puissance d'entrée 5b. On constate sur 5a que la relation entre la puissance fournie et le courant d'alimentation n'est pas linéaire.

1.4 Mesure résolue en temps.

1.4.1 Montage pompe sonde.

On peut également faire une mesure résolue en temps de l'impulsion THz générée grâce une méthode d'échantillonnage électro-optique dans un cristal de ZnTe. Cela permet de voir la forme de l'impulsion générée. Le passage de l'impulsion THz dans le ZnTe rend le cristal biréfringent. Afin de détecter cela, on utilise un faisceau sonde retardé par rapport à la pompe. Les deux impulsions pompe et sonde arrivent successivement sur le cristal et on maîtrise le retard de la sonde par rapport à la sonde en faisant varier la longueur du bras sonde. La biréfringence du cristal modifie la polarisation de la sonde ce qu'on mesure à l'aide d'une double photodiode et d'un prisme de Wollaston, qui sépare le faisceau incident en un faisceau polarisé horizontalement et un faisceau polarisé verticalement. Le montage complet est détaillé sur la figure 6. On commence par régler la polarisation de la sonde pour avoir la même intensité arrivant sur chaque photodiode après réflexion sur le cristal et passage dans le cube. Le signal mesuré est la différence des intensités mesurées par chaque photodiode. Le passage du rayonnement THz fait tourner la polarisation du faisceau réfléchi ce qui modifie les intensités mesurées. Pour se débarrasser du bruit dû au laser, on utilise une détection synchrone pour faire les mesures, réglée sur la fréquence de hachage qui est ici de 500 Hz. En faisant varier le retard de la sonde par rapport à la pompe (on rallonge pour cela le chemin optique du bras sonde), on obtient une mesure résolue en temps.

1.4.2 Résultats obtenus.

Le signal mesuré se trouve sur la figure 7. On obtient un pic positif de 1,3 ps de largeur suivi d'un pic négatif plus large et de moins grande amplitude sur la figure 7a. Cette courbe est similaire à celle obtenue dans [2] mais la durée du pic est plus longue. Cela est peut être dû au fait qu'on mesure le faisceau réfléchi, il faudrait plutôt mesurer le

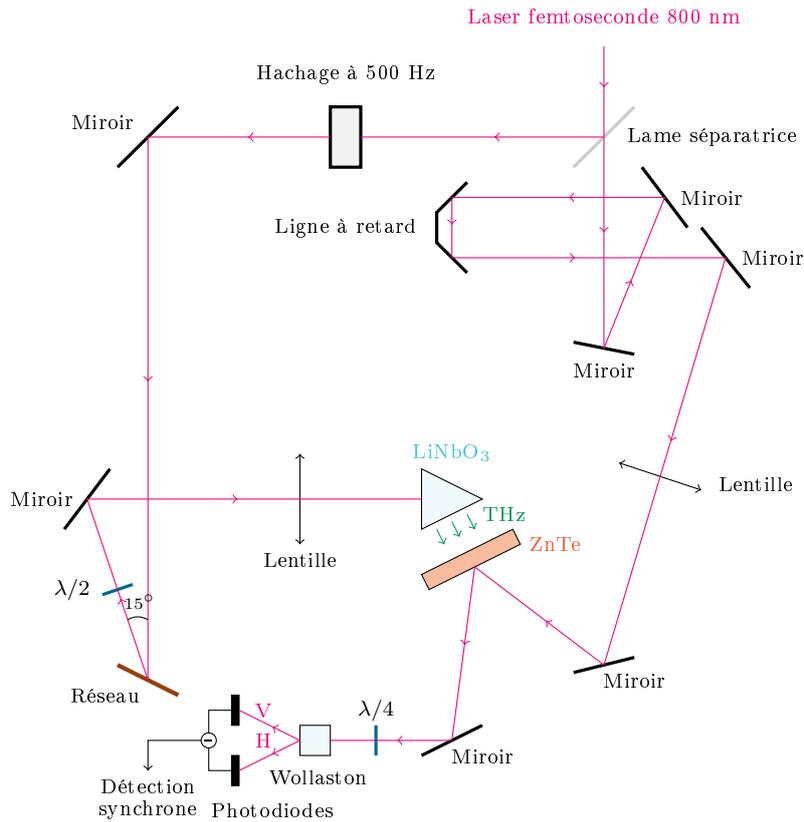


FIGURE 6 – Montage utilisé pour la détection de l'impulsion THz par échantillonnage électro-optique dans un cristal de ZnTe.

faisceau transmis. De plus, la forme du pic varie quand on change la position du faisceau sonde incident sur le cristal de ZnTe. Le signal 7b a été mesuré à un autre endroit sur le cristal et fait 1,5 ps de largeur. Cela peut provenir de l'image du réseau dans le LiNbO₃ qui est moins bonne sur les bords. La position temporelle du pic permet également de situer précisément le *zéro* du montage, c'est à dire la position de la ligne à retard pour laquelle les faisceaux pompe et sonde parcourent exactement le même chemin optique.

2 Ondes acoustiques générées par piézoélectricité.

2.1 Calcul théorique du déplacement.

2.1.1 Position et simplification du problème.

Le LiNbO₃ étant piézoélectrique, le rayonnement THz généré doit théoriquement induire une déformation acoustique du cristal et la propagation de phonons acoustiques. On aimerait savoir, dans la configuration utilisée, si des ondes longitudinales ou transverses seront excitées et avoir un ordre de grandeur du déplacement induit. Pour cela, on écrit l'équation fondamentale de l'élastodynamique des milieux solides continus (avec

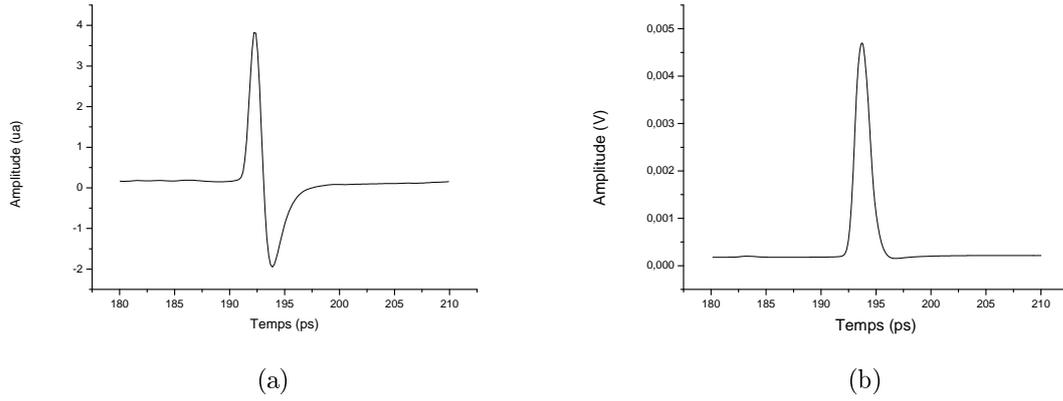


FIGURE 7 – Courbes obtenues par échantillonnage électro-optique dans le ZnTe, à deux positions différentes sur le cristal. Le pic THz est large de 1,3 ps sur la figure 7a et de 1,5 ps sur la figure 7b.

sommation des indices répétés) :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (1)$$

où u_i est le déplacement dans la direction i et σ est le tenseur des contraintes (voir[6]). Dans un cristal piézoélectrique, la contrainte peut s'écrire :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} - e_{mij} E_m$$

où c est le tenseur d'élasticité (d'ordre 4), e est le tenseur piézoélectrique (d'ordre 3), E est le champ électrique et S est la déformation définie par :

$$S_{kl} = \frac{\partial u_l}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_l}$$

On peut simplifier le système d'équations 1 grâce au changement de base de la figure 8. L'onde acoustique se propage dans la direction $-x'_1$ et il ne reste que la dépendance en x'_1 . On prend l'axe x'_1 dans ce sens pour pouvoir faire une transformation de Laplace spatiale par la suite. Finalement, 1 se réécrit :

$$\frac{\partial^2 u'_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma'_{i1}}{\partial x'_1}$$

Il faut également appliquer le changement de base, c'est à dire la rotation d'angle θ et d'axe x_3 à tous les tenseurs. De plus, le tenseur d'élasticité est symétrique dans l'échange des deux premiers ou des deux derniers indices et le champ électrique est polarisé suivant la direction x_3 . On peut alors écrire :

$$\frac{\partial^2 u'_i}{\partial t^2} = c'_{i1k1} \frac{\partial^2 u'_k}{\partial x'^2_1} - e'_{3i1} E_3 \quad (2)$$

On trouve les valeurs des coefficients élastiques et piézoélectriques du LiNbO₃ dans [6]. Les coefficients e_{3ij} ne sont pas modifiés par le changement de base, le seul coefficient

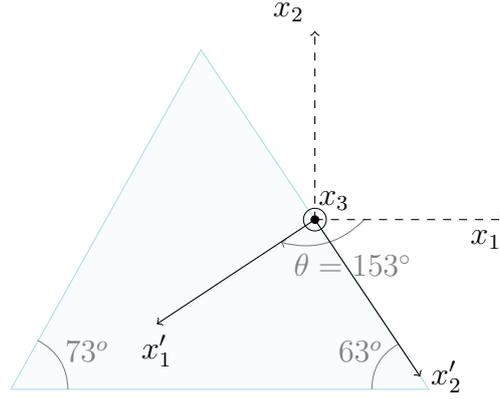


FIGURE 8 – Changement de base appliqué à l'équation 1. L'onde acoustique se propage suivant $-x'_1$.

piezoélectrique non nul qui va intervenir dans l'équation est $e_{311} = 0.2 \text{ C.m}^{-2}$. Ce coefficient est le plus faible des coefficients piézoélectrique du LiNbO_3 , l'orientation du cristal utilisée pour la génération THz est la moins favorable pour exciter des ondes acoustiques.

2.1.2 Résolution des équations.

Afin de résoudre le système 2, on prend la transformée de Fourier temporelle de l'équation (on notera \tilde{u}_i et \tilde{E}_i les transformées de Fourier de u_i et E_i) puis sa transformée de Laplace spatiale (on notera \hat{u}_i et \hat{E}_i les transformées de Laplace de \tilde{u}_i et \tilde{E}_i). La méthode de résolution est détaillée dans [5]. La transformée de Laplace spatiale permet de faire intervenir la condition limite au bord du prisme, la nullité de la contrainte. Au cours du calcul, on est amené à utiliser les conditions limites de Sommerfeld. Cela revient à considérer qu'il n'y a pas d'ondes qui se propagent en provenant de l'infini. On parvient alors à exprimer les transformées de Fourier temporelles des déplacements de surface en fonction du champ électrique (le calcul est détaillé dans [5])

$$\tilde{u}_i(0, \omega) = \beta_{ij} \hat{E}_3(-ik_j, \omega) \quad (3)$$

où les coefficients β_{ij} sont calculés en fonction des coefficients élastiques et piézoélectriques et où les k_j dépendent de ω , de la masse volumique $\rho = 4,7 \cdot 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ et des coefficients élastiques. Avec $\theta = 153^\circ$, on obtient :

$$\beta = \begin{pmatrix} -9,1 \cdot 10^{-12} & -1,2 \cdot 10^{-14} & -4,8 \cdot 10^{-16} \\ -6,4 \cdot 10^{-16} & -4,1 \cdot 10^{-15} & 1,6 \cdot 10^{-14} \\ 6,1 \cdot 10^{-14} & -2,0 \cdot 10^{-13} & -3,5 \cdot 10^{-15} \end{pmatrix}$$

On constate que le coefficient β_{11} est dominant, on excite donc majoritairement des ondes longitudinales dans le cristal. Pour déterminer un ordre de grandeur du déplacement longitudinal u_1 , il faut calculer \hat{E}_3 . Si on considère une onde plane $E = E_0 e^{i(k_0 x'_1 - \omega_0 t)}$, $\hat{E}_3(-ik_j, \omega)$ s'écrit :

$$\hat{E}_3(-ik_j, \omega) = \frac{2\pi E_0}{-i(k_0 + k_j)} \delta(\omega - \omega_0)$$

Avec $\omega_0 \sim 1$ THz et $E_0 \sim 100$ kV.cm⁻¹ et un indice optique du LiNbO₃ de 5 pour le THz, on obtient $u_1 \sim 0,6$ pm, ce qui est très faible. Les ondes acoustiques seront donc difficiles à détecter dans le LiNbO₃.

2.2 Oscillations Brillouin.

2.2.1 Principe.

La détection de l'onde acoustique qui se propage dans le cristal se fait grâce aux oscillations Brillouin. En effet, la présence de l'onde dans le cristal modifie son indice optique. Au niveau du front d'onde, il y a une discontinuité d'indice, et une partie du faisceau sonde est réfléchi. Il interfère alors avec le faisceau réfléchi à la surface du cristal et on observe des oscillations d'intensité du faisceau réfléchi.

La fréquence de ces oscillations, en incidence normale pour la sonde, est donnée par :

$$f_B = \frac{2nv}{\lambda} \quad (4)$$

où n est l'indice du milieu, v est la vitesse de propagation de l'onde acoustique et λ la longueur d'onde du faisceau sonde. Si on se place avec un angle d'incidence θ , la fréquence des oscillations devient :

$$f_B = \frac{2v\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}}{\lambda} \quad (5)$$

En effet, comme on peut le voir sur la figure 9, la différence de marche entre les deux faisceaux peut s'écrire :

$$\delta = 2vt\left(\frac{n}{\cos \theta'} - \tan \theta' \sin \theta\right) = 2vt\sqrt{n^2 - \sin^2 \theta}$$

d'où la formule annoncée. La mesure de la fréquence Brillouin permet ainsi de détermi-

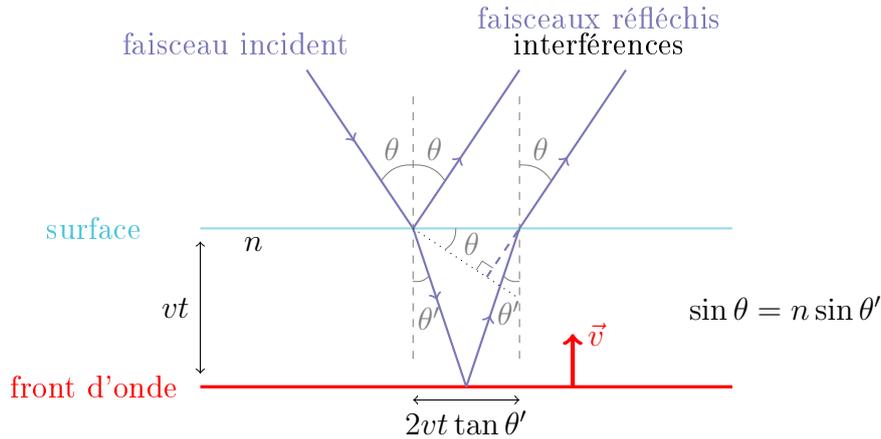


FIGURE 9 – Schéma du phénomène d'interférences à l'origine des oscillations Brillouin.

ner la vitesse de propagation des ondes acoustiques dans le matériau. Dans le LiNbO₃ les vitesses de propagation (calculées à partir des données fournies dans [6]) sont les suivantes :

- $v_L = 7.2 \cdot 10^3 \text{ m.s}^{-1}$ pour les ondes longitudinales ;
- $v_T = 3.6 \cdot 10^3 \text{ m.s}^{-1}$ pour les ondes transverses.

Le LiNbO_3 étant biréfringent, il a deux indices optiques. L'indice ordinaire vaut $n_O = 2,43$ et l'indice extraordinaire vaut $n_E = 2,33$. On s'attend donc à mesurer les fréquences Brillouin suivantes (en incidence normale) :

- $f_{LO} = 87 \text{ GHz}$;
- $f_{LE} = 84 \text{ GHz}$;
- $f_{TO} = 43 \text{ GHz}$;
- $f_{TE} = 41 \text{ GHz}$.

2.2.2 Montage expérimental.

Le montage complet est schématisé sur la figure 10.

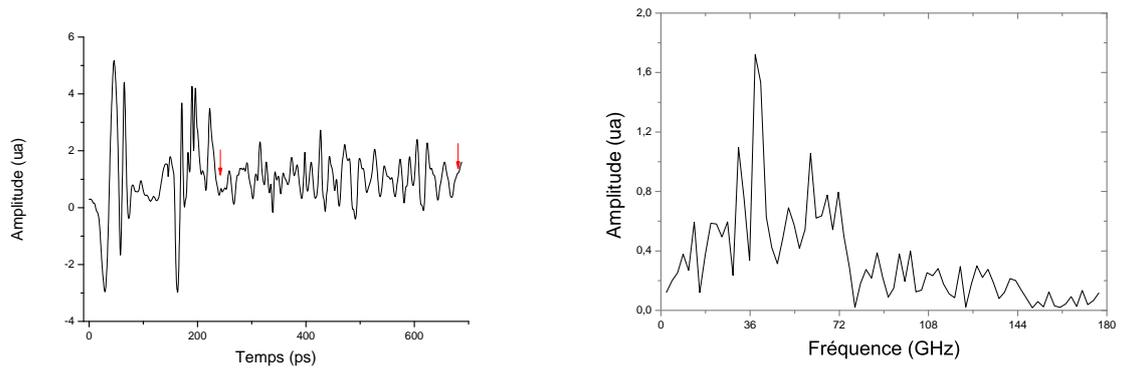
Pour détecter les oscillations Brillouin, on mesure donc l'intensité du faisceau sonde réfléchi par le cristal à l'aide d'une photodiode. On utilise un faisceau sonde à 400 nm, que l'on obtient par doublage de fréquence dans un cristal de BBO. Cela permet d'éviter le bruit dû à la pompe qui est à 800 nm en plaçant des filtres bleus sur les photodiodes.

Un autre moyen de diminuer le bruit est d'utiliser un faisceau de référence qu'on envoie sur la seconde photodiode. La sonde et la référence sont séparées grâce à un cube polariseur précédé d'une lame demi-onde ce qui permet d'ajuster les intensités des deux faisceaux en faisant varier la polarisation d'entrée. En effet, on a ainsi un moyen de régler les intensités sur la double photodiode en minimisant à l'oscilloscope le signal de sortie, c'est à dire la différence des deux signaux mesurés par les photodiodes. Cependant, les photodiodes étaient généralement saturées il a donc fallu utiliser des atténuateurs (qui ne sont pas représentés sur la figure 10) avant les filtres.

Le faisceau sonde est alors envoyé sur le cristal de LiNbO_3 , avec un angle d'incidence très faible. On place une lentille avant le cristal pour pouvoir jouer sur la taille du faisceau arrivant sur le cristal (et donc sur l'étendue de la zone sondée) afin d'optimiser le signal en changeant la distance focale. On place également une lame demi-onde sur le trajet du faisceau afin de pouvoir modifier la polarisation du faisceau incident. En effet, les cristaux utilisés étant anisotropes, il est possible que la polarisation du faisceau sonde ait une influence sur le signal mesuré.

2.2.3 Résultats obtenus.

Dans cette configuration, le signal est difficile à trouver car le déplacement induit est très faible d'après le calcul de la section 2.1. Si le faisceau incident est polarisé horizontalement, on ne voit rien. En polarisation verticale, nous avons obtenu la courbe de la figure 11a. Le signal n'est pas très clair et comporte beaucoup de pics qui sont probablement dus à des réflexions dans un cube. Quand nous avons remplacé le cube, nous n'avons pas réussi à retrouver ces oscillations. La transformée de Fourier du signal se trouve sur la courbe 11b. On constate la présence d'un pic à 38 GHz ce qui suggère que ces oscillations sont créées par des ondes acoustiques transverses bien qu'on n'obtienne pas exactement la fréquence calculée.



(a) Signal mesuré dans le LiNbO_3 .

(b) Transformée de Fourier de la partie du signal 11a située entre les flèches rouges.

FIGURE 11 – Oscillations Brillouin mesurées dans le LiNbO_3 avec une sonde à 400 nm polarisée verticalement. La fréquence mesurée, 38 GHz, suggère qu'on observe des ondes transverses.

La présence de plusieurs interfaces (air/ SrTiO_3 , $\text{SrTiO}_3/\text{BiFeO}_3$, $\text{BiFeO}_3/\text{LiNbO}_3$) fait qu'on obtient plusieurs faisceaux réfléchis. Le plus intense provient de la réflexion de la sonde sur le substrat de SrTiO_3 . Le faisceau qui nous intéresse est celui qui provient de la réflexion sur le BiFeO_3 , il s'agit du faisceau d'intensité intermédiaire.

2.4.1 Étude de l'absorption de l'échantillon.

À l'aide du détecteur pyroélectrique, nous avons mesuré la transmission du rayonnement THz par l'échantillon de BiFeO_3 (placé avec le côté BiFeO_3 du côté du LiNbO_3) et par un échantillon de SrTiO_3 seul de 500 μm d'épaisseur. On obtient les courbes de la figure 12. L'échantillon de SrTiO_3 seul absorbe plus le rayonnement THz que l'échantillon de BiFeO_3 et de SrTiO_3 ce qui semble surprenant. Cependant, l'échantillon de SrTiO_3 seul n'était poli que d'un côté, ce qui peut expliquer cette différence. De plus, une fois normalisées, les deux courbes sont très similaires. On constate donc que le SrTiO_3 absorbe en grande partie le rayonnement THz, ce qui justifie de placer le côté BiFeO_3 du côté du prisme de LiNbO_3 .

Nous avons également mesuré la transmission de l'échantillon de BiFeO_3 à 400 nm et constaté que la transmission est meilleure quand le cristal est orienté dans un sens plutôt que l'autre. Nous avons placé le cristal de façon à optimiser la transmission dans les mesures qui suivent.

2.4.2 Fréquences Brillouin dans le BiFeO_3 .

Grâce à la courbe fournissant l'indice en fonction de la longueur d'onde dans le BiFeO_3 fournie dans [3] et aux fréquences Brillouin mesurées dans le BiFeO_3 massif pour une longueur d'onde du faisceau sonde entre 800 et 820 nm fournies dans [7], on peut calculer les vitesses de propagation des ondes acoustiques dans le BiFeO_3 ainsi que les fréquences Brillouin à 400 nm. Nous avons de plus modifié le montage expérimental pour arriver sur

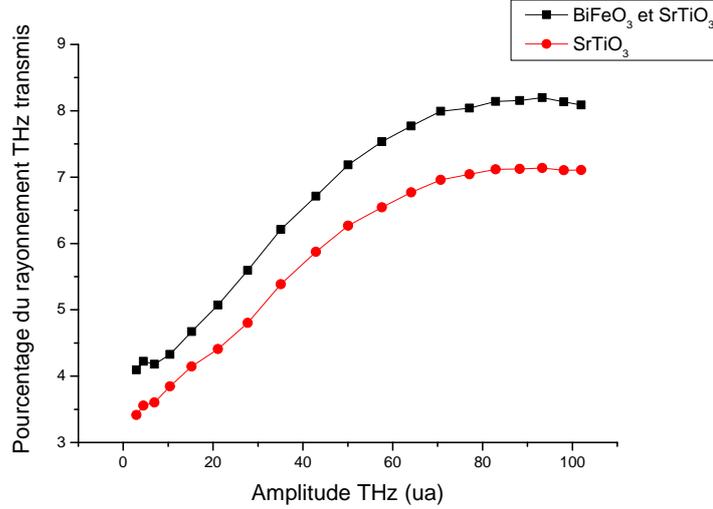


FIGURE 12 – Transmission du rayonnement THz par les deux échantillons. Le SrTiO₃ seul transmet moins bien parce que l'échantillon utilisé n'était poli que d'un côté.

l'échantillon en incidence oblique avec un angle d'environ 28°. On obtient alors grâce à la formule 5 :

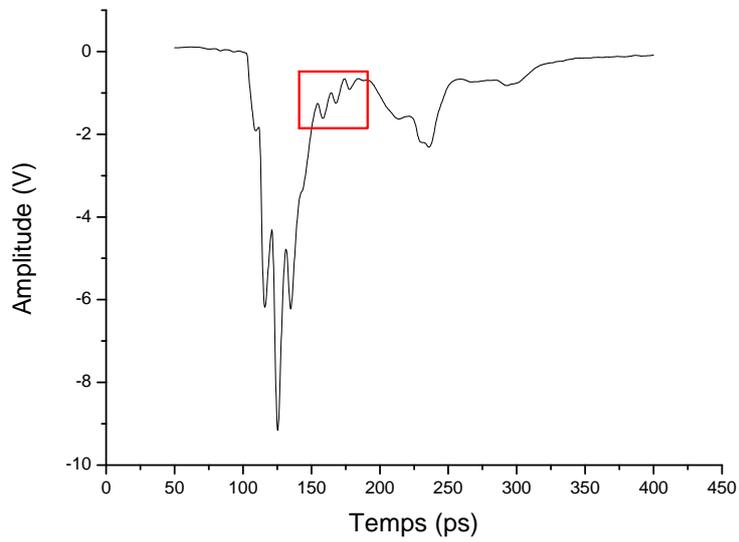
- f_L comprise entre 90,8 et 93,1 GHz ;
- f_{T1} comprise entre 50,5 et 51,7 GHz ;
- f_{T2} comprise entre 31,6 et 32,2 GHz.

2.4.3 Résultats obtenus.

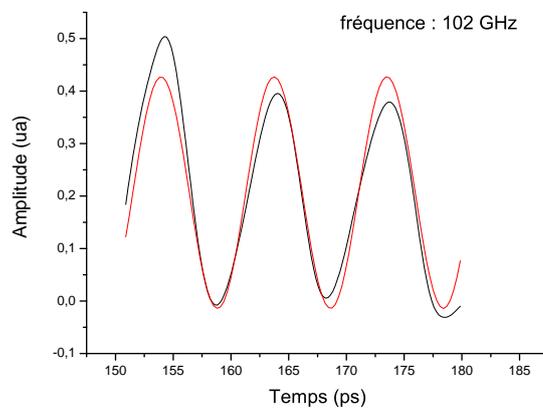
Oscillations Brillouin. Dans le BiFeO₃, nous avons réussi à obtenir des oscillations Brillouin (figure 13). On observe un pic suivi de deux réflexions. Cependant, les deux premiers pics sont séparés d'environ 110 ps tandis que les deux suivants sont séparés d'environ 60 ps. Il semble donc qu'il s'agit de réflexions provenant d'endroits différents. Pour déterminer si la réflexion à l'interface entre le SrTiO₃ et le BiFeO₃ est importante, on calcule les impédances acoustiques des deux matériaux. L'impédance acoustique est définie par $Z = \rho v$ où ρ est la masse volumique et v est la vitesse de l'onde acoustique. Dans le SrTiO₃, on obtient $Z_L = 4,6 \cdot 10^7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et $Z_T = 2,6 \cdot 10^7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Dans le BFO, on a $Z_L = 4,2 \cdot 10^7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, $Z_{T1} = 1,5 \cdot 10^7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et $Z_{T2} = 2,3 \cdot 10^7 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Le coefficient de réflexion est alors donné par $\frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2}$. Comme les impédances acoustiques sont proches dans les deux matériaux, la réflexion à l'interface est faible.

On observe des oscillations qui commencent dans le premier pic et continuent jusqu'au deuxième. La fréquence de ces oscillations est 102 GHz, on observe donc plutôt des ondes longitudinales mais à nouveau on n'obtient pas la fréquence théorique calculée.

Variation de la position du faisceau sur le cristal. On observe que la forme du signal change quand on déplace le faisceau sonde sur le cristal. On voit deux pics séparés d'environ 40 ps dont l'amplitude varie en fonction de l'endroit. Près du bord, on ne voit



(a) Pic mesuré dans le BiFeO₃ incidence oblique. On voit des oscillations dans le premier pic et juste après.



(b) Modélisation par un sinus des oscillations entourées en rouge sur la figure 13a. On obtient une fréquence de 102 GHz.

FIGURE 13

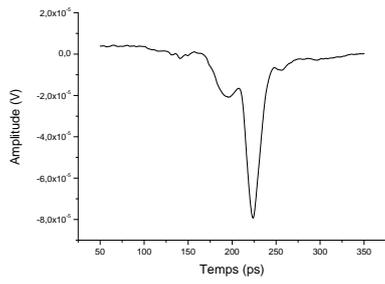
presque que le premier pic puis en se déplaçant vers l'autre côté du prisme, le deuxième pic devient plus important (figure 14). Le BiFeO_3 est un matériau ferroélectrique, qui comporte différents domaines électriques. Cela pourrait expliquer ces variations avec la position. Pour le vérifier, il faudrait utiliser une électrode placée sur l'échantillon pour mesurer l'orientation de la polarisation dans les différents domaines.

Variation de la puissance THz. On peut aussi faire varier le courant d'alimentation du laser pour modifier la puissance THz qui arrive sur l'échantillon (figure 15). On constate que la variation de l'amplitude du pic observé en fonction de l'amplitude THz fournie est clairement non linéaire.

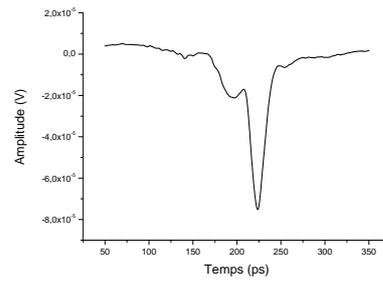
Effet de la polarisation du faisceau sonde. Nous avons également fait varier la polarisation du faisceau sonde. Contrairement au LiNbO_3 dans lequel on n'obtient pas de signal en polarisation horizontale, on voit toujours les pics quelle que soit la polarisation (figure 16). En revanche, l'amplitude des pics est plus grande en polarisation horizontale cette fois.

Conclusion

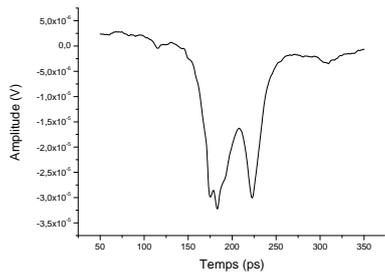
Grâce à la méthode de génération THz par rectification optique et inclinaison du front d'onde, nous avons rapidement pu mettre en place une source THz efficace. En revanche, la détection des ondes acoustiques directement dans le cristal de LiNbO_3 s'avère difficile, comme on avait pu le prévoir par quelques calculs préliminaires. L'utilisation d'un échantillon de BiFeO_3 nous a permis d'obtenir des résultats plus aisément mais nous n'avons observé que des ondes longitudinales grâce aux oscillations Brillouin. Afin d'observer des ondes transverses, plusieurs modifications sont envisageables, par exemple augmenter encore l'angle d'incidence (par exemple à l'aide d'un prisme) ou utiliser un matériau encore plus piézoélectrique comme le PZT.



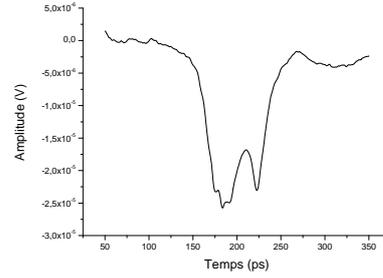
(a) Position 1



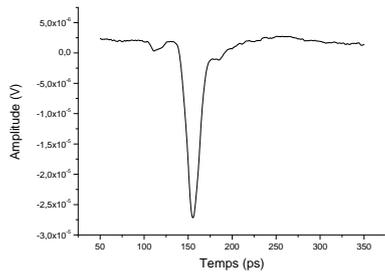
(b) Position 4



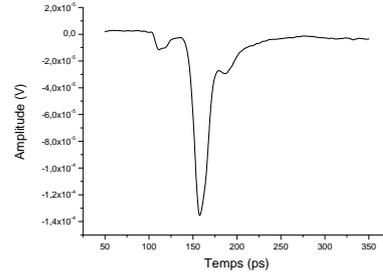
(c) Position 2



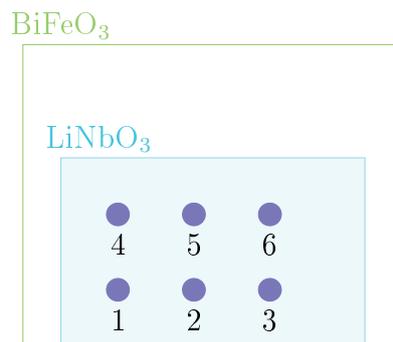
(d) Position 5



(e) Position 3



(f) Position 6



(g) Schéma représentant les différentes positions sur le cristal.

FIGURE 14 – Signaux mesurés pour différentes positions du faisceau sonde incident sur le cristal. Les positions sont représentées sur le schéma 14g.

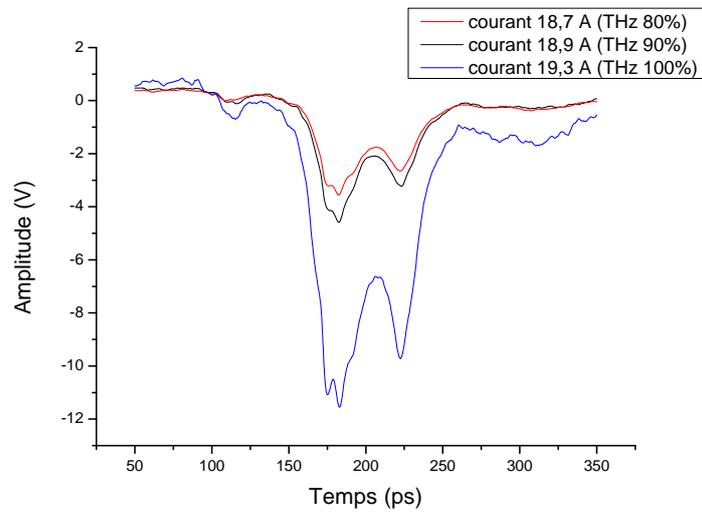


FIGURE 15 – Effet de la variation de l'amplitude du rayonnement THz. On constate que l'amplitude du pic n'en dépend pas linéairement.

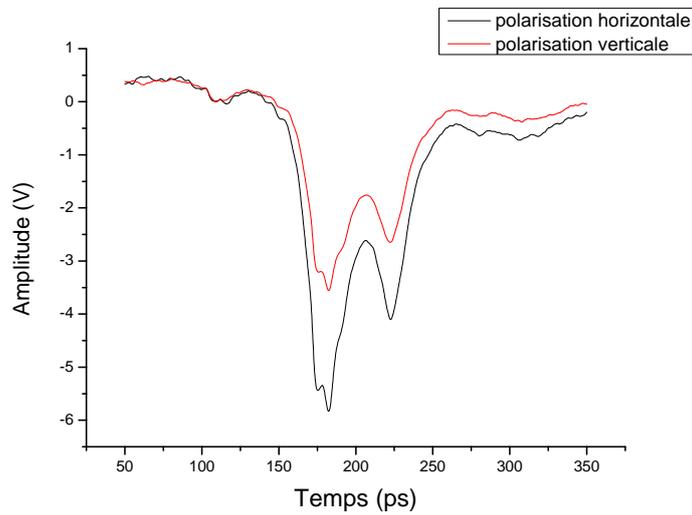


FIGURE 16 – Influence de la polarisation du faisceau sonde sur le signal mesuré.

Remerciements.

Je remercie mon maître de stage Thomas Pezeril et Gwenaëlle Vaudel de m'avoir accueilli dans leur laboratoire ainsi que Janos Hebling pour avoir travaillé avec nous et m'avoir fait découvrir les méthodes de génération THz et d'acoustique picoseconde.

Références

- [1] J. Hebling, G. Almasi, I.Z. Kozma, and J. Kuhl. Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation. *Opt. Express*, 10(21) :1161–1166, 2002.
- [2] J. Hebling, AG Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl. Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 78(5) :593–599, 2004.
- [3] A. Kumar, R.C. Rai, N.J. Podraza, S. Denev, M. Ramirez, Y.H. Chu, L.W. Martin, J. Ihlefeld, T. Heeg, J. Schubert, et al. Linear and nonlinear optical properties of BiFeO₃. *Applied Physics Letters*, 92(12) :121915–121915, 2008.
- [4] K.A. Nelson, B.J. Paxton, et al. *Development of phonon-polarization THz spectroscopy, and the investigation of relaxor ferroelectrics*. PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2006.
- [5] T. Pézeril. *Génération et détection d'ondes acoustiques transverses picosecondes : Théorie et expériences*. PhD thesis, 2005.
- [6] D. Royer and E. Dieulesaint. *Onde Élastiques dans les Solides—Tome 1 : Propagation Libre et Guidée*. Masson, Paris, 1996.
- [7] P. Ruello, T. Pezeril, S. Avanesyan, G. Vaudel, V. Gusev, IC Infante, B. Dkhil, et al. Photoexcitation of gigahertz longitudinal and shear acoustic waves in BiFeO₃ multi-ferroic single crystal. *Applied Physics Letters*, 100(21) :212906, 2012.