

Université du Québec
INRS-Énergie, Matériaux et Télécommunications

**Développement d'une source de radiation térahertz
(THz) intense et mise en forme d'impulsions THz à
partir d'une antenne de grande ouverture de ZnSe**

Par
Xavier ROPAGNOL

Thèse présentée pour l'obtention du grade de Philosophiæ Doctor (Ph. D.)
en sciences de l'énergie et des matériaux

Jury d'évaluation

Président du jury	Dr. Patrizio Antici
Et examinateur interne	INRS-EMT
Examineur externe	Dr. Denis Morris Université de Sherbrooke
Examineur externe	Dr. Michel Piché Université de Laval
Codirecteur de recherche	Dr. Matt Reid University of North British Columbia
Directeur de recherche	Dr. Tsuneyuki Ozaki INRS-EMT

Résumé

Dans cette thèse, nous avons développé une source de radiations THz de haute intensité réalisée à partir d'une antenne photoconductrice de grande ouverture interdigitale de ZnSe. Avant d'arriver à la réalisation de la source, qui est le but majeur, nous sommes passés par une multitude d'étapes.

La première étape a été l'étude et la comparaison des performances des antennes photoconductrices de grandes ouvertures de ZnSe monocristallin et polycristallin. Nous avons démontré que ce type d'antenne doit être excité à la longueur d'onde de 400 nm afin d'être plus efficace. D'autre part, nous avons observé que le champ électrique THz sature lorsque l'antenne est excitée avec de très hautes fluences. Par la suite, nous avons comparé les performances des antennes de grande ouverture de ZnSe monocristallin excitées à la longueur d'onde de 400 nm aux antennes photoconductrices de grande ouverture de GaAs excitées à la longueur d'onde de 800 nm. Nous en avons conclu que les antennes de ZnSe avaient un plus grand potentiel pour générer des impulsions THz de hautes intensités et pouvaient être plus efficaces.

La deuxième étape a été de créer une technique permettant la mise en forme d'impulsion THz sur des antennes interdigitales. Cette technique, qui consiste à couvrir la structure interdigitale de l'antenne par un masque de phase binaire, permet de moduler la forme d'une impulsion THz allant d'une impulsion asymétrique demi-cycle à une impulsion symétrique monocycle. Cette technique a été démontrée dans un premier temps sur une antenne photoconductrice de grande ouverture interdigitale de GaAs puis enfin sur une antenne photoconductrice de grande ouverture interdigitale de ZnSe.

Enfin, la dernière étape a été de caractériser l'antenne photoconductrice de grande ouverture à structure interdigitale de ZnSe. Nous avons généré des impulsions d'une énergie de 3.6 μJ . Cette énergie est plus de quatre fois supérieure à celle qui avait été générée par une antenne de GaAs. Le champ électrique THz crête équivalent est de 143 kV/cm.

Étudiant

Directeur de recherche

Remerciements

J'aimerais exprimer toute ma reconnaissance envers mes deux directeurs de recherche, le professeur Tsuneyuki Ozaki et le professeur Matt Reid, qui m'ont guidé tout au long de mes six années d'études en plus de m'accorder leur plus grande confiance. La complémentarité des expertises de mes directeurs a définitivement été une combinaison propice à l'avancement de mes connaissances et au succès de ce travail de recherche.

Je tiens à remercier en particulier Antoine Laramé, Francois Poitras, Éric McNeil, Mathieu Giguère ainsi que Rob Helsten qui appartiennent à l'équipe technique de ALLS et de UOP et sans qui aucune expérience ne serait possible. Je remercie également Léonard Pelletier, Claude Sirois et Carol Morissette appartenant à l'équipe technique de l'atelier mécanique et qui font un travail fantastique dès que l'on en a besoin.

Merci à Francois Blanchard qui a été un excellent tuteur au début de ma thèse et un très bon conseiller à la fin de ma thèse. Je remercie tous mes collègues de l'équipe THz à savoir, Gargi Sharma, Mustapha Shalabi, Hassan Said, Akram, Ibrahim avec qui j'ai toujours eu un immense plaisir à travailler très tard dans la nuit sur des expériences THz.

Je remercie David Duschene, Irina Stateskina, Sébastien Buffechoux et Julien Derr, Semen Gdnyuk personnes au combien importantes dans la communauté scientifique avec qui je suis devenu ami.

J'adresse également mes remerciements aux membres du jury : Le professeur Denis Morris, le professeur Michel Piché et le professeur Patrizio Antici qui ont bien voulu consacrer de leurs temps pour évaluer ce travail de thèse.

Finalement, le support moral qui est des plus importants en tout temps, je le dois à ma famille, qui malgré la distance ont toujours su me soutenir.

Avant-propos

Mes études de doctorat ont eu lieu au sein du Laboratoire de Source Femtosecondes (LSF), connu également sous le nom de ALLS (Advanced Laser Light Sources), de l'Institut National de Recherche Scientifique-centre Énergie Matériaux Télécommunications (INRS-EMT). Ce projet a été subventionné dans le cadre des Fonds Canadiens à l'Innovation (FCI) et consiste en une infrastructure nationale de lasers femtoseconde multi-faisceaux.

Le projet LSF est un consortium regroupant 14 universités canadiennes (dont l'INRS, U. Alberta, UBC, U. Calgary, U. Laval, McGill, U. Sherbrooke, U. Toronto, etc), 3 laboratoires gouvernementaux (CNRC-Steacie, CNRC-IMI, DRDC) et de 17 institutions internationales (notamment SUNY (USA), Kansas State Univ. (USA), LLNL (USA), UCLA (USA), Imperial College (UK), École Polytechnique (France), Max Planck (Allemagne), Riken (Japon) ect).

L'idée générale du projet LSF est d'utiliser une pluralité d'interactions laser, s'étendant du rayonnement X à l'infrarouge, avec une puissance crête suffisante pour manipuler la matière à volonté et sonder sa dynamique. Le cœur du LSF est un système laser multi-lignes à la fine pointe basé sur le concept le plus récent en matière de technologie Ti :Saphir ultra rapide. Diverses sources de lumière contribuent à un "arc-en-ciel" séparé dans plusieurs lignes lasers qui émettent des flux photoniques très élevés avec des durées d'impulsions femto- et attosecondes à diverses longueurs d'ondes.

C'est dans ce contexte motivant que mes recherches de doctorat ont été réalisées et dont le premier but était de développer une nouvelle source de radiations THz de haute intensité faite à partir d'une antenne photoconductrice de grande ouverture interdigitale de ZnSe

Table des matières

Résumé	ii
Remerciements	iii
Avant-propos	iv
Liste des articles et conférences	
Liste des tableaux et figures	
Liste des acronymes	
Chapitre I – Introduction	1
1-1 Les ondes électromagnétiques de fréquences THz	1
1-2 Les sources THz de hautes intensités et leurs applications dans l’optique non-linéaire	2
1-3 La mise en forme d’impulsion THz	5
1-4 Objectifs et approches scientifiques	6
1-5 Contexte de la thèse	7
Chapitre II - Génération et détection d’ondes THz de hautes intensités	9
2-1 La génération d’ondes THz de hautes intensités	9
2-1-1 Les antennes photoconductrices	10
2-1-1-a Origine de l’énergie contenue dans l’impulsion THz	12
2-1-1-b Potentiel des antennes photoconductrices comme source de radiation THz de haute intensité	13
2-1-1-c Les antennes photoconductrices de grandes ouvertures	14
2-1-1-d Les antennes photoconductrices à structure interdigitale	16
2-1-2 Le redressement optique	18
2-1-2-a Théorie et choix du matériau pour le RO	18
2-1-2-b : Génération d’ondes THz dans un cristal de LiNbO ₃ par la technique d’inclinaison du front d’onde	23
2-1-3 : Les sources de radiations THz basées sur la technique du plasma laser	25
2-1-4 : Comparatif des principales sources de radiations THz de haute intensité	29

2-2 La détection des ondes THz	31
2-2-1 La détection par effet électro-optique	32
2-2-1-a Le choix du cristal électro-optique	32
2-2-1-b Présentation de la technique expérimentale	33
2-2-1-c : Calcul de la biréfringence induite dans un cristal électro-optique	35
2-2-2 L'échantillonnage photoconductif	37
2-2-3 Les détecteurs thermiques	40
Chapitre III – Génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices de grande ouverture	43
3-1 Model théorique de la génération d'ondes THz par des antennes photoconductrice de grande ouverture	43
3-1-1 Illumination normale à la surface photoconductrice	47
3-1-2 Calcul du champ électrique THz crête	49
3-1-3 Calcul de la puissance moyenne THz rayonnée	52
3-1-4 La loi d'échelle sur la puissance THz rayonnée en fonction de la surface photo-excitée	53
3-2 Études des caractéristiques d'émission d'ondes THz par des APCGOs de GaAs et les effets de saturation	54
3-2-1 Dépendance du rayonnement THz en fonction de la fluence	55
3-2-2 Dépendance du rayonnement THz en fonction du champ de polarisation	58
3-3 Comparaison de différents matériaux pour la réalisation des antennes photoconductrices	60
3-3-1 L'influence du temps de vie des porteurs de charge	61
3-3-2 L'influence de la rigidité diélectrique pour la génération d'ondes THz de hautes intensités	64
3-4 La source laser	68
Chapitre IV – Génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices de grande ouverture de ZnSe	71
4-1 Le cristal de ZnSe	71

4-2 La génération d'ondes THz par des antennes photoconductrices de grande ouverture	74
4-2-1 Le montage expérimental	75
4-2-2 Forme temporelle et spectre des impulsions THz générées par des antennes photoconductrices de grande ouverture de ZnSe	77
4-2-3 Étude du comportement du rayonnement THz en fonction de la fluence	80
4-2-4 Étude du comportement du rayonnement THz en fonction du champ de polarisation	82
4-2-5 Comparaison des performances des APCGOs de ZnSe excitées aux longueurs d'ondes de 400 et 800 nm	84
4-3 Comparaison des performances des APCGOs de Znse et GaAs	87
4-3-1 Comparaison du rayonnement THz par des APCGOs de ZnSe et GaAs en fonction de la fluence et du champ de polarisation	88
4-3-2 Évaluation de l'efficacité THz des APCGOs de GaAs et de ZnSe	92

Chapitre V – Mise en forme d'impulsions THz et génération d'ondes THz de hautes intensités 99

5-1 La mise en forme d'impulsions THz	99
5-1-1 Le masque de phase binaire	100
5-1-2 Conditions expérimentales	101
5-1-3 Résultats expérimentaux : la mise en forme d'impulsion THz	103
5-1-4 Évaluation de l'augmentation de l'efficacité THz	107
5-2 Méthode de fabrication de l'antenne de grande ouverture de ZnSe à strcuture interdigitale	109
5-2-1 Étude de la génération d'ondes THz à partir d'une APCGO de ZnSe placée dans une chambre à vide	109
5-2-2 L'encapsulation de l'antenne	113
5-2-3 Choix du motif de l'antenne	116
5-2-4 Fabrication des antennes interdigitales de ZnSe	117
5-3 Caractérisation de l'APCGO interdigitale de ZnSe	120
5-3-1 La source de haute tension	120
5-3-2 La mise en forme d'impulsions THz	123

5-3-3 La mesure de l'énergie THz	127
5-3-4 Évaluation de la tache focale	129
5-3-5 La loi d'échelle sur l'énergie THz en fonction de la fluence	131
5-3-6 La loi d'échelle sur l'énergie THz en fonction du champ de polarisation	133
5-3-7 Évaluation du champ électrique THz crête	136
5-3-8 Efficacité THz de l'APCGO interdigitale de ZnSe	137
Chapitre VI – Conclusion	138
Perspectives d'avenir et prochaines étapes potentielles	139
Appendice 1 Circuit à appliquer pour une impulsion de haute tension de 20 ns au travers d'une charge de 8 pF	142
APPENDICE 2 Photos montrant les dommages causés aux électrodes de l'APCGO interdigitale de ZnSe illuminée à un taux de répétition de 2.5 kHz	143
Bibliographie	144

Liste des articles et conférences

Articles

F. Blanchard, G. Sharma, **X. Ropagnol**, R. Morandotti, T. Ozaki, “Improved terahertz two-color plasma sources pumped by high intensity laser beam”, *Opt. Express* **17**, 6044 (2009)

F. Blanchard, G. Sharma, L. Razzari, **X. Ropagnol**, H. C. Bandulet, F. Vidal, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, H. Tiedje, H. Haugen, M. Reid, F. Hegman, “Generation of intense Terahertz radiation via optical methods”, *IEEE Jour. of Selected Topics in Quantum Elect. (Invited Paper)* **17**, 1077 (2011)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “THz pulse shaping and improved optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask“, *Opt. Lett.* **36**, 2662 (2011)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “Toward intense THz generation using large aperture photoconductive antenna“, *IEEE Phot. Jour.* **3**, 174 (2011)

X. Ropagnol, F. Blanchard, T. Ozaki, M. Reid, “Intense THz generation at low frequencies using an interdigitated ZnSe large aperture photoconductive antenna“, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 161108 (2013)

Conférences

F. Blanchard, G. Sharma, **X. Ropagnol**, L. Razzari, R. Morandotti, T. Ozaki, “Effect of focal shifting on terahertz frequency mixing sources”, *Proceeding of the Optical Terahertz Science and Technology (OTST)*, Poster, Santa Barbara (2009)

F. Blanchard, G. Sharma, **X. Ropagnol**, L. Razzari, R. Morandotti, T. Ozaki, “Caractérisation d’une source de radiation d’ondes térahertz générées par un plasma laser“, Colloque Plasma-Québec, Poster

F. Blanchard, G. Sharma, **X. Ropagnol**, L. Razzari, R. Morandotti, T. Ozaki, “Effect and elimination of source position shifting in two color plasma terahertz sources“, Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics conference (CLEO), Baltimore (2009)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “Towards high-power terahertz emitter using large aperture ZnSe photoconductive antenna”, Conference on laser and electro-optics/International Quantum electronics conference, poster (CLEO), San Jose (2010)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “Analysis and comparison of THz efficiency from ZnSe and GaAs antennas”, Proceeding of the Optical Terahertz Science and Technology (OTST), Poster, Santa Barbara (2011)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “Improving optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask”, Nonlinear Optics conference (NLO), Kauai (2011)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “THz pulse shaping and improved optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask”, Cross borders Work Shop, Montreal, Poster (2012)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “La génération et la mise en forme d’impulsion THz intense par des antennes photoconductrices de ZnSe“, 80^{ème} congrès de l’ACFAS, Montréal (2012)

X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, “THz pulse shaping using a binary phase mask on an interdigitated large aperture ZnSe photoconductive antenna”, Proceeding of the Optical Terahertz Science and Technology (OTST), Kyoto (2013)

M. Mridha, A. Mazhorova, M. Daneau, M. Clerici, M. Pecianti, P. L. Lavertu, **X. Ropagnol**, F. Vidal, R. Morandott, “Low dispersion propagation of broadband THz pulses in a two wire Waveguide“, Conference on laser and electro-optics/International Quantum electronics conference , San José, Californie (2013)

Liste des tableaux

- Tableau 2-1:** *Caractéristiques des cristaux les plus couramment utilisés pour la génération d'ondes THz par redressement optique [Hebling]. Exceptée pour le cristal DAST, l'absorption THz est donnée à 1 THz. Les coefficients d_{eff} et FOM sont donnés à 800 nm. Pour le cristal DAST, ces valeurs sont respectivement 2.5 et 6.3 inférieures à 1.55 μm .* **21**
- Tableau 2-2 :** *Performances maximales des différentes sources de radiations d'ondes THz intenses.* **29**
- Tableau 3-1:** *Paramètres des matériaux semi-conducteurs ont été testés pour la fabrication d'antennes photoconductrices utilisées pour la génération d'ondes THz [Sakai, switch GaN, switch Diamond, switch ZnO]* **61**
- Tableau 4-1:** *Récapitulatif des valeurs utilisées lors du calcul de l'efficacité THz maximale* **91**
- Tableau 4-2:** *Paramètres utilisés pour le calcul du ratio d'efficacité THz δ des APCGOs de ZnSe monocristallin et de GaAs* **97**

Liste des figures

- Figure 1-1:** *Spectre du rayonnement électromagnétique spécifiant l'emplacement des fréquences THz [3]* **1**
- Figure 2-1:** *(a) Schéma de principe d'une antenne photoconductrice avec un espace inter-électrode de 30 μm et (b) son schéma électrique équivalent* **10**
- Figure 2-2:** *Variation temporelle du photo-courant du champ électrique THz calculé émit dans l'antenne photoconductrice. La courbe en pointillé représente la distribution énergétique de l'impulsion laser femtoseconde [74]* **12**

- Figure 2-3:** Schéma de principe d'une antenne à structure interdigitale. 1 : Électrodes interdigitales, 2 : cristal semi-conducteur (GaAs SI), 3 : couche isolante opaque qui cache une direction du champ électrique de polarisation. La direction du champ de polarisation est indiquée par les flèches [84] 16
- Figure 2-4:** Illustration du principe de génération THz à l'aide du redressement optique dans un cristal non centrosymétrique 19
- Figure 2-5 :** Illustration d'un système expérimental permettant la génération d'ondes THz par redressement optique dans un cristal de LiNbO₃ par la technique d'inclinaison du front d'onde. L est une lentille, $\lambda/2$ est une lame demi-onde [98]. 23
- Figure 2-6 :** (A) Forme temporelle d'une impulsion THz générée par RO dans un cristal de LiNbO₃ par la technique d'inclinaison du front d'onde. et (B) son spectre en intensité [103]. 24
- Figure 2-7 :** Illustration du principe de génération d'ondes THz par le mélange de l'onde optique fondamentale et de sa seconde harmonique. La seconde harmonique est générée à partir d'un cristal de BBO de type I. Le plasma est réalisé par la focalisation du faisceau à l'aide d'une lentille notée L 26
- Figure 2-8 :** (A) Forme temporelle de d'une impulsion THz générée par la technique de plasma à deux et (B) son spectre de puissance associé [103]. 28
- Figure 2-9 :** Illustration du principe de la technique d'échantillonnage pour la détection d'ondes THz 31
- Figure 2-10 :** Illustration du système expérimental permettant la réalisation de l'échantillonnage électro-optique (a) en absence et (b) en présence d'ondes THz 34
- Figure 2-11 :** Géométrie du cristal de ZnTe (110) servant à l'échantillonnage électro-optique. La page est dans le plan (110) 36

<u>Figure 2-12</u> : <i>Illustration de la technique d'échantillonnage photoconductif</i>	38
<u>Figure 2-13</u> : <i>Principe d'un détecteur pyroélectrique</i>	42
<u>Figure 3-1</u> : <i>Schéma montrant le principe de la génération THz par une APCGO photo-excitée à incidence normale et polarisée par une tension V_b [77]. La figure montre les champs électromagnétiques suivant : Le champ électrique de polarisation E_b, les champs électriques et magnétiques entrant et sortant de la surface de l'antenne $E_{r,in}(t)$, $E_{r,out}(t)$, $H_{r,in}(t)$, $H_{r,out}(t)$. Le schéma montre également la densité de courant surfacique dépendante du temps $J_s(t)$.</i>	45
<u>Figure 3-2</u> : <i>Dispositif experimental ppompe sonde permettant la generation et la detection d'ondes THz par des APCGOs de GAAs.</i>	55
<u>Figure 3-3</u> : <i>Variation du champ électrique THz crête généré par une antenne de GaAs de grande ouverture (A) en fonction de la fluence et pour trois valeurs de champs de polarisations et (B) en fonction du champ de polarisation et pour trois valeurs de fluence.</i>	56
<u>Figure 3-4</u> : <i>Illustration de l'influence des temps de vie des porteurs de charge sur la forme temporelle des impulsions THz générées par des antennes photoconductrices de grandes ouvertures de GaAs BT et de GaAs SI. Les durées de vie des porteurs de charge sont 0.35 (a), 0.7 (b), 1.2 (c) et environs 5 ps (d) [82]</i>	63
<u>Figure 3-5</u> : <i>Principe du fonctionnement d'un laser amplifié par CPA</i>	68
<u>Figure 4-1</u> : <i>Structure cubique à faces centrées du cristal de ZnSe [194]</i>	72
<u>Figure 4-2</u> : <i>Transmission d'une fenêtre de ZnSe de 2 mm d'épaisseur pour des longueurs d'ondes allant du visible à l'infrarouge lointain [199]</i>	73
<u>Figure 4-3</u> : <i>Schéma du montage expérimental permettant la génération par des antennes photoconductrices et la détection par échantillonnage électro-optique des ondes THz.</i>	75

Figure 4-4 : (A) Formes temporelles normalisées d'impulsions THz générées par des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin excitées à la longueur d'onde de 400 nm. (B) Spectres de puissances THz obtenues par transformées de Fourier associées aux formes temporelles présentées en (A) **78**

Figure 4-5 : (A) Formes temporelles normalisées d'impulsions THz générées par une APCGOs de ZnSe monocristallin excitées aux longueurs d'ondes de 400 et 800 nm. (B) Spectres de puissances THz obtenues par transformées de Fourier associées aux formes temporelles présentées en (A). **79**

Figure 4-6 : Variation du champ électrique THz crête en fonction de la fluence pour trois différentes valeurs de champ de polarisation de l'antenne pour une APCGO de ZnSe monocristallin (A) et pour une APCGO de ZnSe polycristallin (B). Les courbes indiquent les meilleurs ajustements de paramètres faits à partir de l'équation (3-1). Les fluences de saturations sont de 0.15 mJ/cm^2 pour le ZnSe monocristallin et 1.01 mJ/cm^2 pour le ZnSe polycristallin. **81**

Figure 4-7 : Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de ZnSe monocristallin (A) et polycristallin (B) en fonction du champ de polarisation. Les antennes sont excitées à la longueur d'onde de 400 nm avec trois valeurs distinctes de densités de flux optiques. **82**

Figure 4-8 : Illustration du processus d'absorption dans les cristaux semi-conducteurs Cas 1 : L'énergie des photons est supérieure à la largeur de bande interdite (un photon crée une paire de trou et d'électron). Cas 2 : l'énergie des photons est inférieure à la largeur de bande interdite (deux photons créent une paire de trou et d'électron). **85**

Figure 4-9 : Variation du champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de ZnSe monocristallin excitée aux longueurs d'ondes de 400 et 800 nm en fonction de la fluence. **86**

Figure 4-10 : *Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs, ZnSe monocristallin et ZnSe polycristallin en fonction de la fluence. Les longueurs d'ondes d'excitations sont 800 nm pour le GaAs et 400 nm pour le ZnSe monocristallin et polycristallin.* **90**

Figure 4-11 : *Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs et ZnSe monocristallin en fonction du champ de polarisation. Les longueurs d'ondes d'excitation sont 800 nm pour le GaAs et 400 nm pour le ZnSe monocristallin. La ligne rouge représente la valeur maximale de champ de polarisation applicable à l'antenne de GaAs.* **91**

Figure 4-12 : *Variation de la fluence de saturation des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin en fonction du champ de polarisation. La longueur d'onde d'excitation est dans les deux cas 400 nm.* **92**

Figure 4-13 : *Variation de l'efficacité THz maximale des APCGOs de GaAs, de ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin en fonction du champ de polarisation.* **93**

Figure 5-1 : *Principe du masque de phase binaire appliqué sur une antenne à structure interdigitale pour la génération d'impulsions THz monocycle* **101**

Figure 5-2 : *Schéma expérimental pour réaliser la mise en forme d'impulsion THz à partir d'une antenne photoconductrice interdigitale de GaAs et d'un masque de phase binaire. La détection des ondes THz est effectuée par échantillonnage EO (PW : Prisme Wollaston, $\lambda/4$: Lame quart d'onde).* **102**

Figure 5-3 : *Photo et illustration de l'antenne interdigitale de GaAs recouverte par un masque de phase binaire d'une épaisseur de 170 μm .* **103**

Figure 5-4 : (A) *Formes temporelles des impulsions THz générées par l'antenne interdigitale de GaAs recouverte par un masque opaque, un masque de phase binaire de 510 μm et aucun masque. (B) Transformées de Fourier*

associées aux impulsions THz obtenues lors de l'utilisation du masque de phase binaire et du masque opaque. **104**

Figure 5-5 : (A) Formes temporelles des impulsions THz générées par l'antenne interdigitale de GaAs excitée par une fluence de $14 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et polarisée par un champ de $1.2 \text{ kV}/\text{cm}$ couverte par les masques de phase binaire de 0.17 , 0.34 , 0.51 , 0.68 et 1 mm d'épaisseur. (B) Transformées de Fourier associées aux impulsions obtenues dans (A). **105**

Figure 5-6 : Variation des valeurs des spectres de puissances intégrés en fonction de l'épaisseur des masques. La ligne noire correspond à la valeur de l'intégral du spectre de puissance obtenu avec le masque opaque. **108**

Figure 5-7 : Variation de la rigidité diélectrique de l'air en fonction de la pression pour une distance inter-électrode d'un pouce [223] **110**

Figure 5-8 : Variation du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation. L'antenne est illuminée avec des fluences de 0.17 et $0.75 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ à la longueur d'onde de 400 nm . **111**

Figure 5-9 : Variation du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation pour une antenne de ZnSe encapsulée par des couches de Si_3N_4 et Su-8. La fluence est de $0.2 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ à la longueur d'onde de 400 nm . La ligne bleue représente la rigidité diélectrique d'une antenne de GaAs et la ligne rouge représente la rigidité diélectrique de l'air. **115**

Figure 5-10 : Photo montrant les dommages subis par l'antenne de ZnSe encapsulée après avoir appliqué un champ de polarisation de $56 \text{ kV}/\text{cm}$ et une fluence de $200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. **116**

Figure 5-11 : Motif de l'antenne interdigitale de grande ouverture de ZnSe. L'Espace inter-électrode est de 0.8 mm . La largeur des électrodes est de $200 \mu\text{m}$ et la longueur est de 23 mm . **117**

Figure 5-12 : *Illustration du principe de fabrication des antennes interdigitales de ZnSe.*

(a) Première exposition avec le masque optique et une résine négative. (b) État de la résine après le processus complet de photolithographie. (c) Dépôt de couche mince métallique par évaporation par faisceau d'électron. (d) Échantillon après lift-off. **119**

Figure 5-13 : *Formes temporelles des impulsions de hautes tensions (-2.1 kV) générées par la source Medox mesurée aux bornes de l'antenne de ZnSe quand elle est illuminée et quand elle n'est pas illuminée.* **121**

Figure 5-14 : *Illustration du montage expérimental permettant la détection par échantillonnage EO de la mise en forme d'impulsion THz à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe* **124**

Figure 5-15 : (A) *Formes temporelles des impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe recouverte par un masque opaque et des masques de phases binaires ayant une épaisseur de 0.65 et 1mm. La fluence est de 0.2 mJ/cm^2 et le champ de polarisation est de 10 kV/cm .* (B) *Transformés de Fourier associées aux impulsions obtenues dans (A)* **125**

Figure 5-16 : *Formes temporelles des impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe excitée à 0.2 mJ/cm^2 et polarisée à 10 kV/cm .* (A) *Mise en forme d'impulsion THz obtenue à partir d'un masque de phase binaire de 0.65 mm et (B) d'un masque de 1 mm.* (C) *Schéma de principe de l'antenne recouverte par un mélange du masque de phase et du masque opaque* **126**

Figure 5-17 : (A) *Schéma du montage expérimental.* (B) *Photo de l'APCGO interdigital de ZnSe maintenue dans son support.* (C) *Photo du montage expérimental.* **128**

Figure 5-18 : (A) *Image THz en temps réel au point focal obtenue avec une caméra ferroélectrique model PV320-L2Z d'Electrophysics. Cette image*

correspond à une énergie THz de 1.5 μJ . (B) Extraction des dimensions de l'axe vertical et horizontal de l'image THz obtenue en (A) **130**

Figure 5-19 : *(A) Variation de l'énergie THz en fonction de la fluence pour une APCGO interdigitale de ZnSe polarisée à 20 kV/cm et recouverte par le masque opaque et de 1 mm. (B) Variation de la racine carré de l'énergie THz en fonction de la fluence dans les mêmes conditions que (A).* **133**

Figure 5-20 : *Variation de l'énergie THz générée par l'APCGO interdigitale de ZnSe, excité à la fluence de 0.55 mJ/cm² et couverte par les masques opaque et de 1 mm, (A) en fonction du champ de polarisation et (B) en fonction du carré du champ de polarisation.* **134**

Chapitre I

Introduction

Les ondes électromagnétiques sont l'outil le plus performant pour étudier l'univers. Cet outil nous permet d'étudier des particules de taille allant de l'infiniment grand à l'infiniment petit. La grande étendue du spectre électromagnétique permet de réaliser de nombreuses applications telles que l'étude des galaxies en astronomie mais aussi l'étude des noyaux atomiques en physique nucléaire. Parmi les différentes gammes de longueurs d'ondes du spectre électromagnétique, la communauté scientifique étudie très intensément les ondes de fréquences térahertz (tétra, 10^{12}). Depuis une vingtaine d'années environ, la gamme de fréquences térahertz (THz) est devenue plus aisément accessible avec le développement des lasers ultra-rapides capable de générer des impulsions d'une durée de quelques dizaines de femtosecondes (fs, 10^{-15} s). Auparavant, ces fréquences THz n'étaient accessibles que par des synchrotrons, les lasers à électrons libres et les lasers à gaz moléculaires [1-2].

1-1 : Les ondes électromagnétiques de fréquences THz

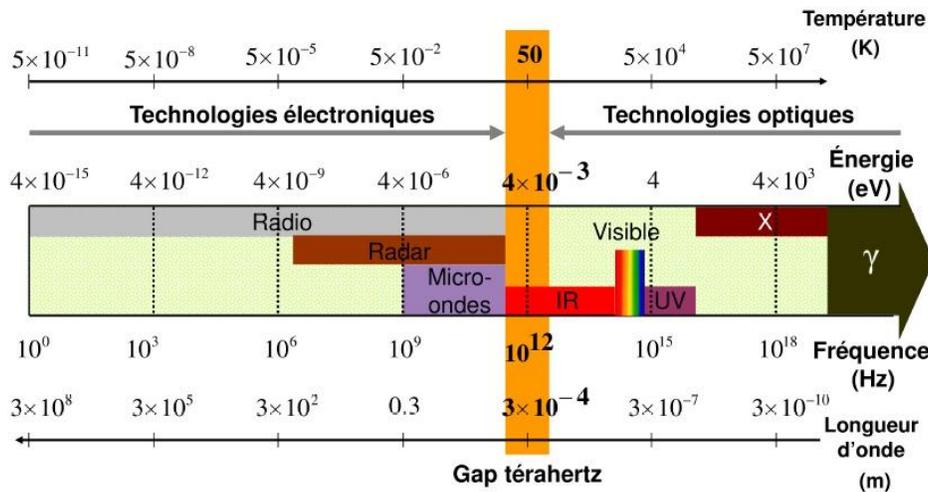


Figure 1-1: Spectre du rayonnement électromagnétique spécifiant l'emplacement des fréquences THz [3]

Les fréquences THz sont comprises entre les fréquences 0.1 et 10 THz. La figure 1-1 illustre l'emplacement des fréquences THz dans le spectre électromagnétique. Nous pouvons voir que les fréquences THz sont situées entre les ondes infrarouges et les micro-ondes. Pour mieux définir la gamme de fréquences THz, la durée d'un cycle électromagnétique à 1 THz est de 1 ps, la longueur d'onde est de 300 μm , l'énergie est de 4.1 meV et la température est de 48° K.

Les raisons pour lesquelles la communauté scientifique intensifie les recherches dans le développement des techniques de génération, des techniques de détection et bien entendu dans les applications THz, sont que les ondes THz ont des caractéristiques uniques pour sonder la matière puisqu'elles peuvent pénétrer des matériaux non métalliques tels que les plastiques, le papier, le bois, les gaz, les textiles et les matières organiques. Ces matériaux sont transparents aux ondes THz puisqu'ils sont dépourvus de charges libres. D'autre part, ces ondes de faibles énergies sont dites non ionisantes (contrairement aux rayons X) et n'endommagent pas les échantillons. Enfin, de nombreuses molécules ont des empreintes distinctes dans le spectre THz. En effet de nombreuses molécules (eau, ADN, drogues, TNT...) absorbent les ondes THz du fait que l'énergie de rotation et de vibration de ces molécules correspondent à l'énergie d'un photon THz [4]. De nombreuses applications utilisent les ondes THz. Ainsi, on peut mentionner des applications dans la sécurité, l'astronomie, l'imagerie mais aussi des applications biomédicales et surtout la spectroscopie spatio-temporelle de différents matériaux [5-11].

1-2 : Les sources THz intenses et les applications dans l'optique THz non-linéaire

Un autre type d'application est l'objet de nombreuses études : L'étude des effets non-linéaires induits par les ondes THz de hautes intensités. Les effets non-linéaires dépendent fortement de l'intensité disponible. Une des grandes limites des ondes THz est le pouvoir de focalisation limité par la limite de diffraction. La limite de diffraction limite donc très fortement l'intensité des impulsions THz. Ainsi, afin d'obtenir des sources THz générant une haute intensité, de nombreuses recherches ont été effectuées pour

développer les sources de radiations THz intenses. À ce jour, les ondes THz les plus intenses sont générées par des systèmes tels que les synchrotrons ou les lasers à électrons libres [12-13]. Récemment, une impulsion THz de 600 μJ avec un champ électrique THz crête de 4.4 GV/cm a été générée par un laser à électron libre [12]. Cette impulsion est à ce jour l'impulsion THz la plus intense jamais générée.

Cependant, l'accès à de tels types de sources est très limité et aussi très dispendieux. D'autre part, la communauté scientifique THz veut développer des sources à impulsions THz intenses dites "compactes" ("table top sources") pour par exemple pouvoir réaliser des expériences de spectroscopie THz non-linéaire résolue en temps. Il existe trois manières principales de générer des impulsions THz intenses : Les antennes photoconductrices, le redressement optique dans un cristal non-linéaire et les sources plasmas laser à deux couleurs [14]. Le principe de la génération d'ondes THz par ces trois types de sources sera expliqué en détail au chapitre 2.

La première démonstration d'une source de radiations THz intense a été faite avec une antenne photoconductrice de grande ouverture fabriquée à partir d'un cristal de GaAs. Des impulsions THz demi-cycle asymétrique ayant une énergie de 0.8 μJ avec une durée de 500 fs ont été générées [15]. Ces impulsions, au profil atypique, ont été utilisées pour exciter et ioniser les atomes de Rydberg [16-18]. Ce phénomène est le premier effet non linéaire induit par des impulsions THz. Il est à noter que si l'intensité de ces impulsions avait été plus importante, nous pourrions utiliser ces impulsions pour contrôler l'orientation de certaines molécules polaires, pour contrôler le courant et le moment magnétique d'anneaux mésoscopiques, et même pour contrôler le mouvement d'électrons dans des doubles puits quantiques [19-21].

Par la suite, il a fallu attendre l'année 2007 pour voir une augmentation significative de l'énergie des impulsions THz. Blanchard *et al* ont généré des impulsions THz monocycles d'une énergie de 1.5 μJ à partir d'un cristal de ZnTe de grande ouverture [22]. À partir de cette période, l'énergie des impulsions THz va connaître une croissance très rapide. En effet, l'énergie des impulsions THz va passer successivement de 1.5 μJ , à 10 μJ , 30 μJ puis 50 μJ pour arriver à 125 μJ en 2012 [23-26]. Cette augmentation soudaine de l'énergie est la conséquence de l'application de la technique d'inclinaison du front d'onde pour la génération d'ondes THz par redressement optique

dans un cristal de LiNbO_3 [27]. L'accès à ce niveau d'énergie a permis d'utiliser ces impulsions pour induire des effets non-linéaires dans de nombreux matériaux.

L'application la plus commune est de réaliser la spectroscopie THz non-linéaire résolue en temps des semi-conducteurs. Par exemple, des expériences ayant utilisé les techniques Z-scan ou POST (pompe optique Sonde THz) et PTST (pompe THz Sonde THz), ont mis en évidence l'absorption non-linéaire des ondes THz dans des matériaux dopés ou photo-excités tels que le GaAs, InGaAs, Ge, Si, InSb [28-33]. À l'aide de ces recherches, il a été démontré que le GaAs, le Ge et le GaP peuvent être utilisés comme absorbant saturable pour les ondes THz [34]. Il a été également démontré que les impulsions THz intenses peuvent créer des électrons par l'impact d'ionisation dans des puits quantiques de GaAs et ainsi générer de la photoluminescence [35]. Enfin, une expérience de PTST a mis en évidence l'anisotropie de la masse des électrons chauds dans un semi-conducteur dopé d'InGaAs possédant une bande de conduction non-parabolique [36]. Le graphène, qui est une couche monoatomique de graphite, est un autre matériau qui fait l'objet de nombreuses recherches dans le domaine de la spectroscopie THz non-linéaire [37]. La raison principale de cet attrait est que ce matériau est un semi-conducteur ayant une largeur de bande interdite nulle [38]. En réalisant la spectroscopie résolue en temps à partir d'une technique de PTST mettant en jeu des impulsions THz intenses, il a été démontré qu'il y a trois différentes étapes dans le processus de la relaxation des électrons dans le graphène. Les trois étapes sont la thermalisation des électrons, l'émission de phonon et le lent refroidissement des électrons lors du retour à l'équilibre [39].

Comme on peut le voir, la majorité des effets d'optique non-linéaire induit par des impulsions THz sont principalement réalisés dans les cristaux semi-conducteurs. À ce jour, il y a très peu de phénomènes non-linéaires tels que la génération de la seconde harmonique ou bien l'auto focalisation à avoir été mis en évidence avec les ondes THz. La raison est que les impulsions d'ondes THz n'atteignent pas encore des intensités suffisantes. Ainsi, l'un des principaux effets d'optique non-linéaire créé par une impulsion THz est l'effet Kerr dans des liquides [40-41]. Afin d'augmenter l'intensité des impulsions THz, il faut donc continuer à développer de nouvelles sources.

Il existe un moyen pour augmenter localement l'intensité des impulsions THz. Avec le développement des techniques de micro-fabrication, les nano-antennes, les guides d'ondes et les métamatériaux ont été développés pour augmenter le champ électrique crête des impulsions THz [42-44]. Ainsi, en fabriquant un résonateur en anneau fendu sur du dioxyde de Vanadium (VO_2), les impulsions THz, dont le champ électrique crête atteignait 3.3 MV/cm, ont induit la transition isolant-métal du vanadium à la température ambiante [44].

1-3 : La mise en forme d'impulsions THz

La mise en forme d'impulsions laser est un autre domaine qui a connu de très grands progrès au cours des dernières années. La mise en forme d'impulsions laser a permis entre autres d'étudier et de manipuler avec succès des systèmes atomiques, moléculaires et biologiques [45]. Dans le domaine des fréquences THz, la mise en forme d'impulsions THz est requise pour les télécommunications, l'imagerie biologique et médicale, le contrôle cohérent des modes vibrationnels dans des échantillons moléculaires, ainsi que dans la manipulation cohérente de systèmes quantiques tels que l'atome de Rydberg et les paires de Cooper [46-51]. Une méthode simple pour réaliser la mise en forme d'impulsions THz est de façonner un train d'impulsions laser à l'aide d'un modulateur spatial de lumière. Par la suite, ce train d'impulsions laser est envoyé dans un cristal de ZnTe pour générer les impulsions THz par redressement optique [52]. Le train d'impulsions laser, dont le délai entre les impulsions laser est contrôlable, génère une impulsion THz multi-cycles dont la période d'oscillation dépend du délai optique entre deux impulsions laser. La conséquence est que l'impulsion THz possède un spectre étroit mais modulable. Ce type d'impulsion peut être utilisé par exemple pour l'excitation non-linéaire de résonances spécifiques. En utilisant d'autres méthodes, le même type de mise en forme d'impulsions peut être réalisé. On recense le même type de mise en forme d'impulsions THz en générant l'impulsion THz dans un cristal de LiNbO_3 périodique et dans une antenne photoconductrice de grande ouverture dont l'excitation est réalisée par des impulsions lasers étirées [53-54].

Il existe également des techniques pour réaliser la mise en forme d'impulsions THz tout en gardant une impulsion THz monocycle. Le moyen le plus simple est d'insérer un objet transmissif qui va déformer la forme temporelle de l'impulsion THz. Cette méthode a été démontrée avec des fentes métalliques, des disques de plastique et des films métalliques structurés [55-57]. L'inconvénient de ces techniques est que l'objet transmissif va absorber une partie de l'impulsion THz. Cette technique est donc difficilement adaptable pour la manipulation d'impulsions THz de hautes intensités. On a également rapporté la mise en forme et le décalage de la phase des impulsions THz par la modification des dimensions du plasma en utilisant la technique de génération d'ondes THz intenses par plasma laser à deux couleurs [58-59]. Bien que cette méthode soit très efficace pour la mise en forme de l'impulsion THz, il est difficile de l'utiliser lors d'applications étant donné que faire varier les dimensions du plasma affecte l'efficacité du processus de génération d'ondes THz et par conséquent affecte les valeurs de champ électrique THz crête. Comme nous pouvons le voir, à ce jour, il n'y a pas de méthode efficace pour réaliser la mise en forme d'impulsions THz monocycles intenses.

1-4 : Objectifs et approches scientifiques

L'objectif principal de la présente recherche a été de développer et réaliser une source de radiation THz de haute intensité qui sera par la suite utilisée dans des expériences de spectroscopie THz non-linéaires résolues en temps dans des matériaux semi-conducteurs. Lors de mon arrivée à l'INRS-EMT, au cours de la session d'été 2007, l'INRS possédait déjà une source de radiations THz intense qui utilisait le redressement optique dans un cristal de ZnTe de grande ouverture. D'autre part, deux projets de développement de deux autres sources de radiations THz de hautes intensités utilisant la technique de redressement optique dans un cristal de LiNbO₃ et la technique de plasma laser à deux couleurs étaient à l'étude. Ainsi, afin de posséder trois types de sources de radiations THz de hautes intensités distinctes, nous avons décidé de développer une antenne photoconductrice de grande ouverture interdigitale fabriquée à partir d'un cristal de ZnSe. La première étape a été d'étudier méthodiquement le comportement des antennes photoconductrices de grande ouverture de ZnSe, excitée à la longueur d'onde de

400 nm, et de comparer ces performances à celles d'une antenne de grande ouverture de GaAs excitée à 800 nm.

Dans un deuxième temps, nous avons créé une nouvelle technique de mise en forme d'impulsion THz en appliquant un masque de phase binaire sur une structure interdigitale d'une antenne photoconductrice de grande ouverture. Non seulement cette technique nous permet de réaliser n'importe quelle forme d'impulsion THz comprise entre une impulsion demi-cycle asymétrique et une impulsion monocycle symétrique, mais en plus cette technique nous permet d'augmenter l'énergie des impulsions THz générées par les antennes interdigitales d'un facteur pouvant aller jusqu'à deux. Par conséquent, cette technique permet également d'augmenter l'efficacité de ce type de source d'un facteur allant jusqu'à deux. Après avoir démontré la faisabilité de cette technique sur des antennes photoconductrices de grande ouverture interdigitales de GaAs, nous avons démontré que cette technique fonctionnait également sur des antennes photoconductrices de grandes ouvertures interdigitales de ZnSe. Finalement, en appliquant cette technique sur la structure interdigitale de l'antenne photoconductrice de grande ouverture de ZnSe, nous avons créé une source de radiations THz intense couplée à la capacité de faire de la mise en forme d'impulsion THz qui peut être utilisée dans diverses applications d'optique non-linéaire.

En conclusion, ce projet de recherche se veut une suite logique au développement, à l'INRS-EMT, des sources de radiations THz de hautes intensités. D'autre part, cette source THz sera capable de réaliser la mise en forme d'impulsions THz. Cette source supplémentaire permettra donc à l'INRS-EMT de renforcer sa position de laboratoire de pointe dans le domaine des fréquences THz.

1-5 : Contexte de la thèse

Cette thèse est divisée en six chapitres. Après le présent chapitre, qui présente les particularités des ondes THz et qui expose le contexte de cette thèse ainsi que ses objectifs, le chapitre 2 présente sommairement les différentes techniques de générations et de détections des ondes THz. Le chapitre 3 présente la théorie de la génération des ondes THz par les antennes photoconductrices de grandes ouvertures. D'autre part, ce

chapitre met en évidence les limites et les mécanismes de saturation présents dans les antennes photoconductrices de grande ouverture. Enfin, à l'aide d'une comparaison entre les paramètres de différents cristaux semi-conducteurs, je justifie le choix du semi-conducteur de ZnSe comme substrat des antennes photoconductrices de grande ouverture pour la réalisation d'une source de radiations THz de hautes intensités.

Le chapitre 4 montre l'étude des performances des antennes photoconductrices de ZnSe via une comparaison aux performances des antennes photoconductrices de GaAs. Le chapitre 5 démontre la faisabilité de la mise en forme d'impulsion THz réalisée à partir d'une antenne photoconductrice de grande ouverture de GaAs recouverte par un masque de phase binaire. D'autre part, ce chapitre montre également la mise en forme d'impulsions THz générées par une antenne photoconductrice de grande ouverture de ZnSe. Enfin, ce chapitre montre les résultats qui caractérisent l'antenne de grande ouverture interdigitale de ZnSe responsable de la génération d'ondes THz de hautes intensités.

Finalement, le chapitre 6 fera une synthèse des résultats importants de ce travail de recherche. D'autre part, des propositions pour l'optimisation de la source développée ainsi que des recommandations sur les différentes applications possibles sont faites. Finalement, nous pouvons mentionner que l'auteur a été le principal responsable des expériences qui ont amené aux résultats montrés dans ce manuscrit.

Chapitre II

Génération et détection d'ondes THz de hautes intensités

2-1 : La génération d'ondes THz de hautes intensités

Nous pouvons dissocier deux types de méthodes de générations d'ondes THz : La génération d'ondes THz en régime continu et la génération d'ondes THz en régime impulsionnel. Dans les deux cas, nous avons accès à un grand nombre de solutions pour générer ou détecter ces types de rayonnement d'ondes THz. Ainsi, on peut recenser par exemple dans le cas des sources THz continues les oscillateurs paramétriques optiques [60], les photomélangeurs à base de cristaux semi-conducteurs [61] et les lasers à cascade quantique [62]. Il est à noter que des sources continues de rayonnement THz de haute puissance moyenne, comme les lasers à électrons libres [63], ont déjà été utilisées pour étudier les effets non linéaires des ondes THz.

Les chercheurs ont développé des sources THz capables de générer des impulsions THz cohérentes qui sont particulièrement utiles pour réaliser des expériences de spectroscopie THz résolues en temps (TDS pour Time Domain Spectroscopy en anglais). Le domaine de la spectroscopie THz a connu un essor récent du fait du développement des lasers femtoseconde (10^{-15} seconde) Ti :Saphir. Les deux techniques de génération d'impulsions THz les plus utilisées sont les antennes PC (photoconductrices) [64-66] et le redressement optique [67-69]. Ces sources génèrent des impulsions THz de faible énergie (de l'ordre de la pico-joule) mais sont très utilisées dans des expériences de spectroscopie THz linéaire. En effet, l'utilisation d'un laser oscillateur permet d'obtenir un très haut rapport de signal sur bruit du fait du très faible bruit introduit par l'oscillateur laser. Cependant, beaucoup d'applications dans le domaine THz dépendent fortement de l'énergie disponible. C'est pourquoi d'intenses efforts sont faits pour développer des sources de rayonnement THz de haute intensité. Les sources de rayonnement THz de haute intensité utilisent également les techniques de redressement

optique dans des cristaux non-linéaires [70] et les antennes PC [71]. Ces sources THz ont été adaptées pour être utilisées sur des lasers amplifiés Ti :Saphir dont l'énergie par impulsions dépasse le milijoule. Une autre technique, plus récente, retient beaucoup d'attention pour la génération d'ondes THz de hautes intensités. Cette technique est la génération d'un plasma généré par laser. La première démonstration remonte à 1993 [72]. Cette technique est particulièrement intéressante puisque le plasma ne requiert aucun seuil de dommage et peut supporter des intensités laser extrêmes.

Dans ce chapitre, nous allons décrire les sources de rayonnement THz de haute puissance qui sont couramment utilisées pour réaliser des expériences de spectroscopie THz non-linéaire. Nous allons donc étudier dans l'ordre : les antennes PC, le redressement optique et les sources plasma-laser.

2-1.1 : Les antennes photoconductrices

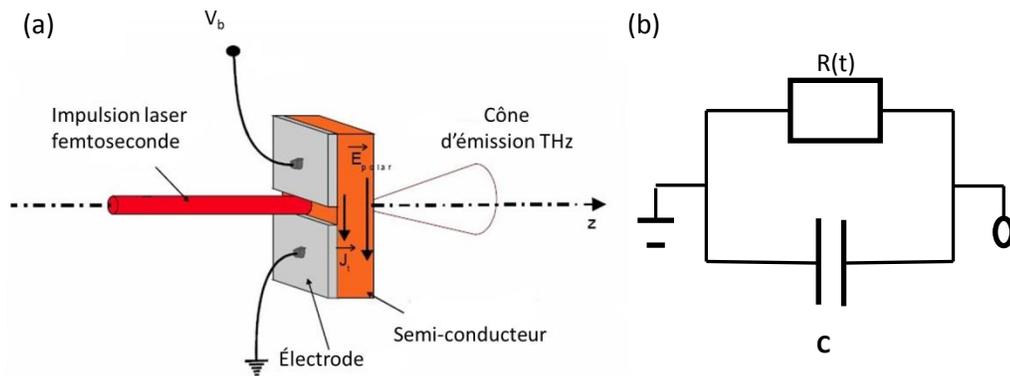


Figure2-1: (a) Schéma de principe d'une antenne photoconductrice avec un espace inter-électrode de $30 \mu\text{m}$ et (b) son schéma électrique équivalent

Les antennes PC de GaAs sont probablement les sources THz les plus utilisées pour la génération et la détection des impulsions THz. Le succès des sources de rayonnement THz avec des antennes photoconductrices est lié à l'essor des systèmes laser femtosecondes Ti :Saphir. Au début des années 80, Auston inventa cette technique et donna son nom à ce type d'antennes [73]. Les premières antennes photoconductrices étaient excitées avec des lasers à liquides colorants [65]. Cependant, il a fallu attendre le début des années 90 pour voir une utilisation plus commune des antennes PC. Elles ont

donc été utilisées en tant que commutateur de haute tension mais aussi en tant qu'émetteur et détecteur d'ondes THz.

Les antennes PC consistent en un cristal semi-conducteur possédant une haute mobilité des électrons et une grande rigidité diélectrique. Les matériaux les plus communs sont le GaAs, InP et le silicium sur saphir. Les électrodes (généralement en or afin d'avoir une très bonne conductivité électrique) sont déposées à la surface du cristal avec un espace inter-électrode de quelques dizaines de micromètres (voir figure 2-1(a)). Leur mode de fonctionnement est très simple. Une tension de polarisation, de l'ordre de quelques dizaines de volts correspondant à un champ de polarisation de quelques dizaines de kV/cm, est appliquée entre les électrodes. Lorsque l'impulsion laser femtoseconde illumine la surface de l'antenne, des paires de trous et d'électrons sont créés au sein de la bande de conduction et sont accélérées par la tension de polarisation. Il se crée alors un photocourant. À partir des équations de Maxwell, le photocourant, dépendant du temps, agit comme une source et rayonne une impulsion THz qui est proportionnelle à :

$$E_{THz}(t) \propto \frac{\partial J}{\partial t} \propto E_b \frac{dn(t)}{dt} \quad (2.1)$$

où $E_{THz}(t)$ est le champ électrique THz, E_b est le champ de polarisation de l'antenne, J est le photocourant et $n(t)$ est la densité des porteurs de charges. L'équation (2-1) n'est valide qu'avec une mobilité des charges considérées comme indépendante du temps. La polarisation du champ électrique THz est parallèle, mais de sens opposé à la direction du champ de polarisation de l'antenne.

La figure 2-2 représente la forme temporelle de l'impulsion optique femtoseconde, de la densité de photocourant au sein du substrat et de l'impulsion THz émise en champ lointain par une antenne PC lorsque celle-ci est illuminée [74]. On s'aperçoit que la forme temporelle du photocourant subit une montée rapide suivie par une décroissance exponentielle qui dépend du temps de vie des porteurs de charge au sein du matériau. Ainsi, si nous augmentons le temps de vie des porteurs de charge, la décroissance du photocourant sera plus lente. La forme de l'impulsion THz en champ lointain est proportionnelle à la dérivée temporelle du photocourant dépendant du temps, tel que le prédit l'équation (2.1), et montre un comportement dipolaire. Ce comportement

dipolaire sera plus prononcé si le cristal semi-conducteur possède un temps de vie des charges très court (<1 ps).

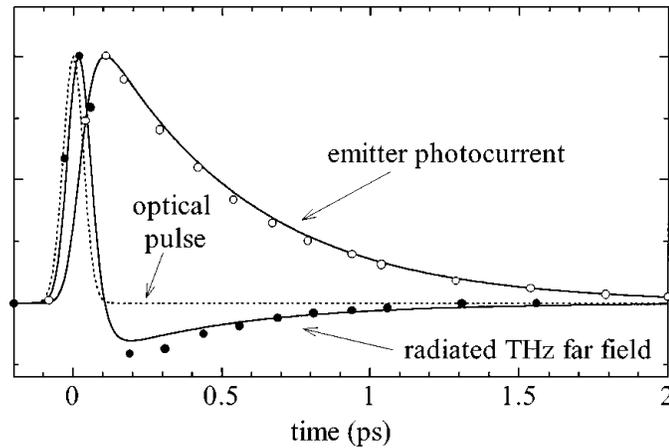


Figure 2-2 : Variation temporelle du photo-courant et du champ électrique THz calculés émis dans l'antenne photoconductrice. La courbe en pointillé représente la distribution énergétique de l'impulsion laser femtoseconde [74]

2-1-1-a : Origine de l'énergie contenue dans l'impulsion THz

L'énergie de l'impulsion THz générée par les antennes photoconductrices provient de l'énergie électrique stockée dans l'antenne. L'antenne PC qui peut aussi servir de commutateur photoconducteur, et peut être vue, d'un point de vue électronique, comme un condensateur chargé avec une capacité notée C branchée en parallèle avec une résistance variable en temps notée $R(t)$ (voir Figure 2-1. (b)). Nous allons comparer l'énergie stockée dans ce condensateur à l'énergie comprise dans les impulsions THz générées par ce type d'antenne. Dans notre cas, l'énergie stockée au sein de l'antenne peut être assimilée à l'énergie qui serait stockée dans un condensateur:

$$E_s = \frac{1}{2} CV_b^2 \quad (2.2)$$

Cette énergie est ensuite déchargée dans le circuit électrique lorsque l'antenne est illuminée par l'impulsion laser. Une partie de cette énergie est donc rayonnée au sein de l'impulsion THz. À partir de l'équation (2.1), nous comprenons que l'énergie des impulsions THz générées par des antennes PC provient de la source de tension. En effet, l'équation (2-1) prédit que le champ électrique THz est linéairement proportionnel au champ de polarisation de l'antenne. Ainsi, afin de générer des impulsions THz de hautes intensités par une antenne PC, nous devons appliquer un très grand champ de polarisation

(et donc une très haute tension) entre les bornes de l'antenne. Cela est en contraste avec les autres sources de rayonnement THz, telles que le redressement optique dans des cristaux non-linéaire et le plasma à deux couleurs (sources qui seront étudiées plus tard dans ce chapitre), qui tirent l'énergie THz de l'impulsion optique. Ainsi, pour une micro-antenne de GaAs, ayant une distance inter-électrode de 30 μm et une structure des électrodes coplanaires, la grandeur de la capacité électrique de l'antenne est de l'ordre d'une dizaine de picofarads [14]. Si la tension de polarisation de l'antenne est de 30 V, alors l'énergie stockée par l'antenne est de :

$$E_s = \frac{1}{2} \times 10 \times 10^{-15} \times (30)^2 = 4.5 \text{ pJ}$$

Par ce calcul très simple, nous déduisons que l'énergie qui est stockée dans les micro-antennes PC est comprise entre 1 et 10 picoJoules. Cependant, l'énergie des impulsions THz générées par ce type d'antenne est traditionnellement comprise entre 1 et 10 femto-joules. Nous voyons donc qu'il n'y a qu'une faible partie de l'énergie électrique stockée dans l'antenne qui est rayonnée dans l'espace libre (environ 0.1 %). L'autre partie de l'énergie est dissipée dans le montage électrique de l'antenne.

2-1-1-b : Potentiel des antennes photoconductrices comme source de radiation THz de haute intensité

Dans la section précédente, nous avons décrit le principe de fonctionnement des antennes photoconductrices pour la génération d'impulsions THz. Nous savons que les micro-antennes, décrites dans la figure 2-1 (a), sont très souvent utilisées pour réaliser de la spectroscopie THz linéaire résolue temporellement. En effet, l'utilisation des systèmes laser oscillateur Ti :Saphir convient parfaitement à la géométrie de ce type d'antenne. La puissance moyenne délivrée par les oscillateurs Ti :Saphir commerciaux est aux alentours de 500 mW (pour une énergie respective de 5 nJ), ce qui est environ deux ordres de grandeurs de plus que la puissance optique que l'on peut focaliser entre les bornes de l'antenne avant que nous atteignons le régime d'écrantage THz [75]. Le régime d'écrantage THz correspond à la saturation du champ électrique THz et sera développé en détail dans le chapitre 3. Les valeurs de champs électriques THz crêtes sont comprises entre 10 et 100 V/cm. Ces amplitudes de champ électrique couplées au faible bruit induit par le système laser sont suffisantes pour atteindre de très hauts ratios de signal sur bruit

qui est la condition indispensable à la réalisation d'expérience de spectroscopie THz linéaire. En revanche, les micro-antennes ne sont pas suffisamment puissantes pour réaliser des expériences THz non-linéaires.

2-1-1-c : Les antennes photoconductrices de grande ouverture

Afin de profiter de l'émergence des systèmes lasers Ti :Saphir amplifiés et donc de l'augmentation de la puissance optique disponible, au début des années 90s, les antennes PC ont vues leurs dimensions augmenter dans le but d'augmenter leurs surfaces photoexcitables. Ainsi, l'énergie laser utilisée pour exciter l'antenne était plus importante alors que la fluence n'était pas suffisante pour faire travailler l'antenne dans le régime d'écrantage THz [76].

La première source THz de puissance utilisant les APCGOs (Antenne PhotoConductrice de Grande Ouverture) a été réalisée et étudiée par le groupe du professeur Bucksbaum [15]. Une antenne PC de GaAs, avec des dimensions de 3.5×3.5 cm, a été fabriquée en collant deux électrodes en aluminium avec de la peinture d'argent sur chaque face du cristal de GaAs. L'antenne a été polarisée à l'aide d'une source de haute tension pulsée. Une impulsion THz de $0.8 \mu\text{J}$ a été générée lorsque l'antenne a été polarisée par un champ électrique de 10.7 kV/cm et excitée par une fluence de $40 \mu\text{J/cm}^2$. À ce jour, cela reste l'impulsion THz avec la plus grande énergie générée à partir des APCGOs. Le champ électrique THz crête équivalent a été estimé à 150 kV/cm et l'efficacité THz était de 1.60×10^{-3} . À ce jour, cela reste la meilleure efficacité THz obtenue par des APCGOs utilisées comme sources de radiation THz de hautes intensités. Cette efficacité est également parmi les plus hautes jamais obtenues pour les sources THz compactes.

D'autres études ont été réalisées sur les APCGOs [76-79]. L'un des points les plus importants qui a été démontré est que le champ électrique THz sature pour de faibles valeurs de fluences. La saturation est la conséquence de l'écrantage du champ électrique de polarisation par le champ électrique THz [77,80]. La saturation du champ électrique THz en fonction de la fluence optique sera étudiée plus en détail au chapitre 3. D'autres études furent menées afin d'augmenter la puissance de rayonnement THz des APCGOs.

Par exemple, une étude a été réalisée sur l'influence de la forme des électrodes [81]. D'autres études ont été menées afin de réduire les effets de saturation sur le champ électrique THz. Par exemple, il a été démontré que les effets d'écrantage ont été diminués et que la fréquence centrale du spectre THz se déplaçait vers les hautes fréquences en excitant une antenne de GaAs par un train d'impulsions optiques [82].

Cependant, malgré ces études, aucune APCGO n'a battu à ce jour les performances de l'antenne de GaAs fabriquée par le groupe du professeur Bucksbaum. On peut penser intuitivement qu'il suffit d'augmenter la surface illuminée de l'antenne afin d'augmenter le champ électrique THz. Cependant, l'augmentation des dimensions d'une antenne peut engendrer quelques difficultés techniques. Par exemple, prenons l'exemple d'un cristal de GaAs de 20 cm de côté. Si nous voulons travailler dans les mêmes conditions que le groupe du professeur Bucksbaum, il nous faudrait exciter l'antenne avec une fluence de $40 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Pour la surface totale de l'antenne, il suffirait d'utiliser une impulsion laser à la longueur d'onde de 800 nm avec une énergie de 16 mJ. Ce type d'impulsion laser peut être facilement générée sur la chaîne du laser amplifié Ti :Saphir 100 Hz du laboratoire LSF (Laboratoire de Source Femtosecondes) à l'INRS-EMT. Cependant, on ferait face à certaines difficultés techniques qui rendraient l'utilisation d'une antenne de cette taille très compliquée. Premièrement, il faut pouvoir fabriquer un cristal de GaAs de cette taille. Par la suite, il faudrait adapter les optiques pour obtenir et travailler avec un faisceau optique et un faisceau THz de 20 cm de diamètre. Pour finir, si nous voulons polariser l'antenne avec un champ électrique de 10 kV/cm, il faudrait pouvoir travailler avec une source de haute tension pulsée capable de générer des impulsions de 200 kV. Non seulement ce genre de source est difficile à fabriquer, mais en plus le courant crête qu'elle générerait au sein de l'antenne, au moment où sa résistance est la plus basse, serait de l'ordre de quelques kiloampère. Cela augmenterait la température au sein de l'antenne de façon importante et amènerait à la destruction de l'antenne par l'emballement thermique qui en résulterait [83]. Enfin, il est à noter qu'une telle source de haute tension pulsée perturberait fortement la détection THz à cause de la génération d'un fort bruit électromagnétique.

Ainsi, afin d'éviter d'utiliser ces sources de hautes tensions pulsées tout en continuant à utiliser des APCGOs, les chercheurs ont inventé les antennes PC à structure interdigitale.

2-1-1-d : Les antennes photoconductrices à structure interdigitale

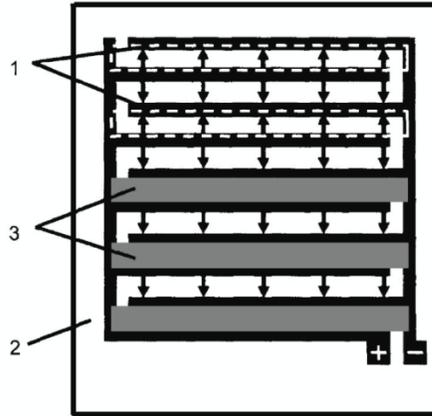


Figure 2-3: Schéma de principe d'une antenne à structure interdigitale. 1 : Électrodes interdigitales, 2 : cristal semi-conducteur (GaAs SI), 3 : couche isolante opaque qui cache une direction du champ électrique de polarisation. La direction du champ de polarisation est indiquée par les flèches. [84].

Dans cette section, nous allons décrire le mode de fonctionnement des antennes photoconductrices à structure interdigitale. Dreyhaupt et al ont été les premiers à utiliser ce type d'antenne [84]. Ils ont réussi, grâce à la structure interdigitale, à maintenir des dimensions de grande ouverture tout en réduisant à quelques micromètres la distance inter-électrodes. Ainsi, il a été possible de polariser l'antenne avec de grandes valeurs de champ électrique tout en utilisant des petites tensions. La figure 2-3 représente le mode de fonctionnement des antennes à structures interdigitales. Nous pouvons apercevoir que les structures interdigitales font que deux antennes voisines ont une direction de champ de polarisation opposée. Cela implique que chaque antenne voisine génère une impulsion THz, mais qui sont de polarité opposée. Lors de la propagation en champ lointain, elles interfèrent de façon destructive. Pour éviter cela, il faut déposer une couche opaque afin de cacher une direction de champ de polarisation. Ainsi, seules les antennes ayant l'autre direction de champ de polarisation sont photosensibles. Par conséquent, les impulsions THz rayonnées par toutes les antennes ont la même polarité et interfèrent de façon constructive. Traditionnellement, la couche opaque est composée d'une couche

diélectrique (par exemple le nitrure de silicium), recouverte par une couche métallique. Ainsi, aucun court-circuit entre les électrodes et la couche métallique n'est possible.

À ce jour, aucune antenne à structure interdigitale n'a pu générer d'impulsion THz dont l'énergie était supérieure à 0.8 μJ . La majorité des études sur ce type d'antenne ont été réalisées sur des oscillateurs Ti :Saphir [75, 84-87]. Il a été démontré qu'une antenne avec sa configuration interdigitale, excitée par un oscillateur Ti :Saphir, peut générer des impulsions THz avec de champ électrique THz crête de 1.5 kV/cm [87]. Cette valeur de champ électrique THz est très supérieure à ce que l'on peut obtenir à partir d'une antenne photoconductrice traditionnelle excitée par le même type de laser. En 2010, il a été démontré qu'une antenne interdigitale, ayant une surface de 1mm², pouvait générer des champs électriques THz crête de 36 kV/cm avec une efficacité de l'antenne de 2×10^{-3} [88]. Cette efficacité est supérieure à celle que You *et al* ont obtenue (1.6×10^{-3}). On pourrait très bien imaginer qu'en grandissant la surface de cette antenne, tout en gardant ses dimensions, on obtiendrait une source qui générerait des impulsions THz dont l'énergie serait supérieure à 0.8 μJ .

Des études ont été menées pour comparer les performances de générations THz d'une antenne à structure interdigitale et d'une APCGO. Il a été démontré que les antennes à structure interdigitale, lorsqu'elles sont excitées avec de faibles densités de flux optiques, pouvaient avoir des performances similaires à une APCGO lorsque les conditions expérimentales étaient identiques [75]. Cela peut paraître un peu surprenant, puisque les $\frac{3}{4}$ de la surface de l'antenne à structure interdigitale est recouverte par un masque opaque. Winnerl *et al* attribuent ce résultat au fait qu'un plus grand nombre de porteurs de charge sont excités près de l'anode dans le cas d'une antenne microstructurée. Ainsi, les porteurs de charge qui sont excités près de l'anode vont bénéficier de l'augmentation du champ local et ainsi leur contribution à la génération THz est plus importante. Ce phénomène a été observé par plusieurs groupes [89-91].

En revanche, une autre étude menée sur la comparaison des performances des antennes à structure interdigitale, par rapport aux antennes de grande ouverture, a été faite avec des fluences optiques suffisamment importantes pour que les antennes travaillent dans le régime d'écrantage THz [76]. Dans ces conditions, l'antenne

interdigitale a rayonné un champ électrique THz crête dont la valeur était seulement la moitié de celle obtenue avec l'antenne de grande ouverture. Une telle différence pourrait s'expliquer par le fait que l'espace entre deux électrodes était très restreint (10 μm). Ainsi, en excitant l'antenne avec de hautes densités de flux optique, le champ électrique de polarisation a pu subir un écrantage par le champ statique de Coulomb (qui a une direction inverse au champ de polarisation) créé par la séparation des trous et des électrons. Il a été démontré que ce phénomène est responsable de la saturation du champ électrique THz généré par des micro-antennes [92]. Il est particulièrement présent lorsque les fluences optiques appliquées à l'antenne sont fortes et que la taille du faisceau est petite (inférieure à 100 μm)

Nous avons vu que les antennes photoconductrices ont été les premières sources de rayonnement THz. Elles sont particulièrement utilisées pour réaliser des expériences de spectroscopie linéaire. D'autre part, elles ont été les premières sources de rayonnement THz de hautes intensités. En revanche, aujourd'hui, elles sont un peu délaissées au profit d'un autre type de source de rayonnement THz plus intense: le redressement optique.

2-1-2 : Le redressement optique

Le redressement optique (RO) des impulsions femtoseconde est une autre méthode de génération THz très largement répandue. Le RO dans les cristaux non linéaires est une méthode de génération THz plus simple à utiliser que les antennes PC puisqu'aucun appareil électronique externe n'est requis. Malgré la découverte de la génération d'ondes infrarouges lointaines par RO dans un cristal non linéaire de niobate de lithium (LiNbO_3) au début des années 70 [93], la génération d'ondes THz à partir de cristaux ayant une structure sphalérite (zinc blende) n'a été découverte qu'en 1994 [94]. Au cours de cette recherche, on a démontré la génération d'ondes THz par des cristaux de GaAs et tellure de zinc (ZnTe) d'orientation (110).

2-1-2-a : Théorie et choix du matériau pour le RO

Le RO peut être vu comme une différence de fréquence entre les composantes de fréquences provenant d'une onde optique ultracourte et un cristal non-centrosymétrique possédant un coefficient non linéaire d'ordre deux très important. La figure 2-4 illustre

une impulsion ultracourte qui traverse un cristal non centrosymétrique. Les oscillations rapides du champ électrique sont redressées et forment l'impulsion THz.

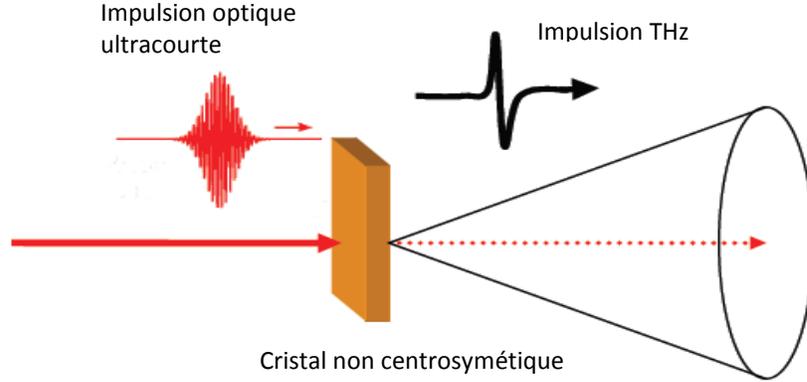


Figure 2-4: Illustration du principe de génération THz à l'aide du redressement optique dans un cristal non centrosymétrique

Le champ THz rayonné par le redressement optique est proportionnel à la polarisation non-linéaire d'ordre 2 (en champ proche) qui est décrit par les équations suivantes [95] :

$$P(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} P_i^{(2)}(\Omega) e^{-i\Omega t} d\Omega \quad (2-3)$$

$$P_i^{(2)}(\Omega) = \sum_{j,k} \epsilon_0 \chi_{i,j,k}^{(2)}(\Omega = \omega_1 - \omega_2) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} E_j(\omega_1 = \Omega + \omega_2) E_k(\omega_2) d\omega_2 \quad (2-4)$$

où $\chi_{i,j,k}^{(2)}$ est le tenseur d'ordre 2 de la susceptibilité non-linéaire pour une différence de fréquence, $\Omega = \omega_1 - \omega_2$, $E_j(\omega_1) E_k(\omega_2)$ sont les amplitudes des composantes spectrales de l'impulsion laser et i, j, k sont les indices factices pour les directions x, y, z représentant les axes du système cristallin. Selon les équations de Maxwell, une polarisation dépendante du temps est une source de rayonnement électromagnétique et le champ électrique rayonné en champ lointain est proportionnel à la dérivée temporelle du second ordre de la polarisation et est exprimé par [95] :

$$E_{THz, far}^{rad} \propto \frac{\partial^2 P(t)}{\partial t^2} \quad (2-5)$$

Les facteurs qui influencent le plus l'énergie THz générée par RO sont la dépendance azimutale, l'énergie laser et le coefficient non linéaire du cristal [67, 70, 94, 95]. Le RO est un phénomène d'optique non-linéaire. L'énergie des impulsions THz a une dépendance quadratique vis-à-vis de l'intensité laser [70]. Cependant, avec une fluence élevée, certains phénomènes tels que l'absorption à deux photons et la génération de la seconde harmonique peuvent entraîner une diminution de l'efficacité de rayonnement THz par RO [96, 97]. Il est à noter que l'efficacité THz du RO est limitée à de basses valeurs du fait que le RO est un phénomène de différence de fréquence et que dans le cas particulier de la génération d'ondes THz, il faut deux photons optiques pour générer un photon aux longueurs d'ondes THz. Un autre facteur qui influe très largement sur l'efficacité du processus de RO est l'accord de phase. En effet, pour que le processus de RO soit efficace sur l'épaisseur totale du cristal, il faut que l'accord entre la vitesse de groupe de l'impulsion optique et la vitesse de phase de l'onde THz soit respecté [94]. L'équation (2-6) définit l'accord de phase parfait pour la génération d'ondes THz par redressement optique :

$$k(\omega_2 + \Omega) - k(\omega_2) = k(\Omega) \quad (2-6)$$

où k est le nombre d'ondes qui dépend de l'indice de réfraction du cristal en fonction de la fréquence angulaire ω_2 et Ω est le contenu fréquentiel de l'onde THz.

Comme de nombreux cristaux sont candidats pour la génération THz par RO, Hebling *et al* ont défini un facteur de mérite qui va permettre d'identifier les cristaux utilisés pour la génération THz en fonction de leur efficacité. Ce facteur de mérite est défini par [98]

$$FOM_{NA} = \frac{d_{eff}^2 L^2}{n_{NIR}^2 n_{THz}} \quad (2-7-a)$$

$$FOM_A = \frac{4d_{eff}^2}{n_{NIR}^2 n_{THz} \alpha_{THz}} \quad (2-7-b)$$

Le FOM_{NA} détermine le facteur de mérite dans le cas où le cristal émetteur n'absorbe pas l'onde THz alors que FOM_A définit le facteur de mérite dans le cas où le cristal émetteur absorbe fortement l'onde THz. Dans les équations (2-7-a) et (2-7-b), d_{eff} est le coefficient

non linéaire du cristal, L est la longueur traversée par la pompe optique, α_{THz} est l'absorption du cristal aux fréquences THz, n_{NIR} et n_{THz} sont les indices de réfraction du cristal aux fréquences optiques et THz.

Matériaux	d_{eff} (pm/V)	n_{opt} @ 0.8 μm	n_{THz}	α_{THz} (cm^{-1})	FOM (pm^2cm^2/V^2)
CdTe	81.8	2.99	3.24	4.8	11.0
ZnTe	68.5	3.13	3.17	1.3	7.27
DAST	615	3.39	2.58	50	41.5
LiNbO ₃	168	2.25	4.96	17	18.2
LiNbO _{3,100K}				4.8	48.6

Tableau 2-1: Caractéristiques des cristaux le plus couramment utilisés pour la génération d'ondes THz par redressement optique [98]. Excepté pour le cristal DAST, l'absorption THz est donnée à 1 THz. Les coefficients d_{eff} et FOM sont donnés à 800 nm. Pour le cristal DAST, ces valeurs sont respectivement 2.5 et 6.3 inférieures à 1.55 μm .

Le tableau 2-1 liste les paramètres des cristaux les plus couramment utilisés pour la génération d'ondes THz par RO. Historiquement le cristal de ZnTe est le matériau le plus utilisé [69, 99, 100]. En effet, d'après le tableau 2-1, ce cristal a un bon facteur de mérite, mais surtout l'indice de réfraction du ZnTe à 800 nm est très proche de l'indice de réfraction à 1 THz. Par conséquent, ce cristal obtient un très bon accord de phase dans une condition de géométrie colinéaire entre l'onde optique à 800 nm et l'onde THz. Afin de générer des impulsions THz de hautes intensités, Blanchard *et al* ont eu une approche analogue à celle que les chercheurs ont eu avec les APCGOs. Ils ont augmenté les dimensions du cristal de ZnTe (un diamètre de 75 mm). En tirant avantage des lasers amplifiés disponibles dans le laboratoire LSF à l'INRS-EMT, des impulsions THz d'une énergie de 1.5 μJ (avec une valeur de champ électrique crête de 215 kV/cm et une efficacité THz de 3.1×10^{-5}) ont été générées [101].

D'après le tableau 2-1, on peut penser que le cristal de CdTe serait un excellent candidat pour la génération d'ondes THz par RO. Il possède un facteur de mérite plus élevé que celui du ZnTe et un indice de réfraction à la longueur d'onde de 800 nm qui est proche de celui à la fréquence de 1 THz. Cependant, sa largeur de bande interdite est de 1.44 eV. Par conséquent, ce cristal absorbe très fortement la longueur d'onde rayonnée par les lasers Ti :Saphir ce qui rend difficile son utilisation pour la génération d'onde THz.

Enfin, on s'aperçoit que le cristal qui a le plus grand facteur de mérite est le LiNbO₃ lorsqu'il est refroidi à une température de 100 K. Ce cristal a un coefficient non-linéaire très élevé mais a aussi une largeur de bande interdite très élevée (4.0 eV contre 2.25 eV pour le ZnTe). Cela permet de pomper le cristal de LiNbO₃ avec de très fortes fluences tout limitant l'absorption à multiple photons. Cependant, on s'aperçoit également qu'il y a une grande différence entre l'indice de réfraction à la longueur de 800 nm et à la fréquence de 1 THz. Ce paramètre limite la réalisation d'un bon accord de phase entre la vitesse de groupe de la pompe optique et la vitesse de phase de l'onde THz. En conséquence, seulement de très fins cristaux peuvent être utilisés pour la génération d'ondes THz par RO. Cependant, à l'aide de la technique d'inclinaison du front d'onde (Tilted Pulse Front Technique), un quasi-accord de phase peut être réalisé dans les cristaux de LiNbO₃ permettant la génération d'impulsion THz [102].

2-1-2-b : Génération d'ondes THz dans un cristal de LiNbO₃ par la technique d'inclinaison du front d'onde

Cette technique repose sur l'inclinaison du front d'onde de la pompe optique tout en ayant le front de phase qui est perpendiculaire à la propagation de la pompe. Grâce à cette technique, l'accord de phase entre la vitesse de groupe de l'onde optique et la vitesse de phase de l'onde THz est rendu possible. L'onde THz se crée le long de ce front d'onde et, en accord avec le principe d'Huygens, se propage de façon perpendiculaire au front d'onde [14]. Cela amène à une géométrie de propagation non-colinéaire entre l'onde optique et l'onde THz. L'angle entre la direction de propagation de l'impulsion THz et la direction de propagation de l'impulsion optique doit être égal à 63 degrés dans le cas d'un cristal de LiNbO₃ [98].

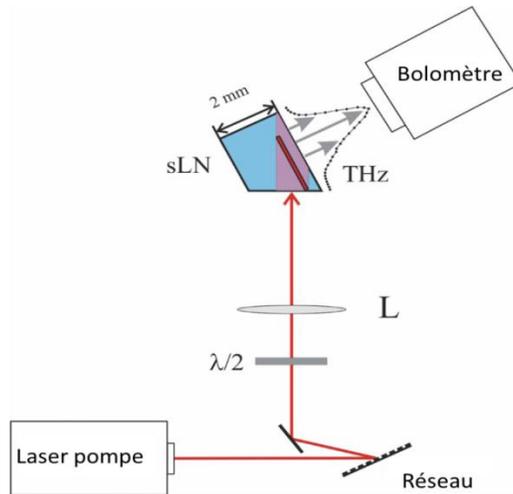


Figure 2-5: Illustration d'un système expérimental permettant la génération d'ondes THz par redressement optique dans un cristal de LiNbO₃ par la technique d'inclinaison du front d'onde. L est une lentille, $\lambda/2$ est une lame demi-onde [98].

Afin d'obtenir le front d'onde infrarouge qui est incliné à 63°, les différents groupes de recherche utilisent principalement une configuration expérimentale possédant un réseau et une lentille. La lentille a pour rôle d'augmenter l'angle de dispersion introduit par le réseau et d'imager la surface du réseau à l'intérieur du cristal [14, 98]. D'autre part, une lame demi-onde est ajoutée afin de tourner la polarisation de l'impulsion laser et de l'orienter parallèlement à l'axe z du cristal LiNbO₃ afin de maximiser l'efficacité du processus de RO par la technique d'inclinaison du front d'onde. La figure 2-5 illustre la configuration d'un système expérimental utilisant le redressement optique dans un cristal de LiNbO₃ [98]. La figure 2-6 (A) montre la forme temporelle d'une impulsion THz générée par RO dans un cristal de LiNbO₃ et (B) le spectre THz associé à la forme temporelle [103]. On s'aperçoit que l'impulsion est une impulsion THz multi-cycles et que le spectre associé s'étend jusqu'à 3.5 THz mais a son pic de fréquence qui est situé à 0.7 THz. D'autre part, ses principales composantes fréquentielles sont situées entre 0.5 et 2 THz.

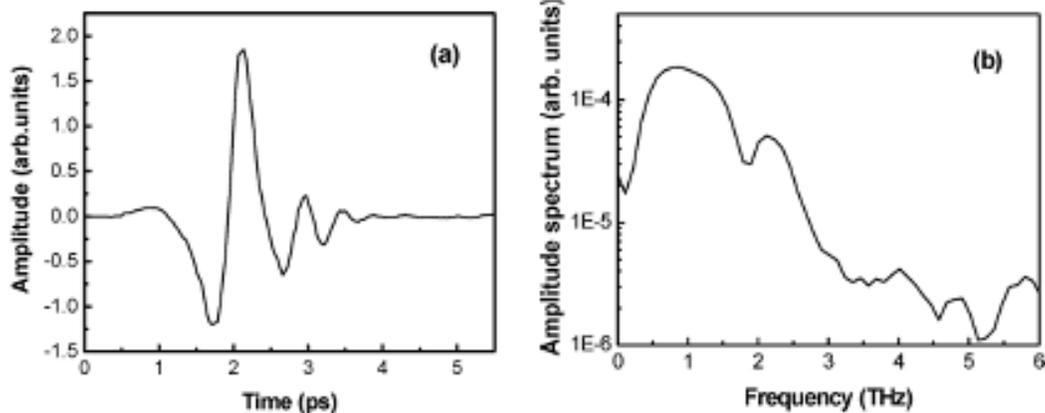


Figure 2-6 : (A) Forme temporelle de d'une impulsion THz générée par RO dans un cristal de LiNbO_3 par la technique d'inclinaison du front d'onde. et (B) son spectre en intensité [103].

La technique d'inclinaison du front d'onde pour générer des ondes THz par redressement optique dans des cristaux de LiNbO_3 a été intensément étudiée [104-108]. L'énergie THz générée et l'efficacité de conversion de ce procédé sont graduellement montées jusqu'à atteindre une énergie de 125 μJ et une efficacité THz de 2.5×10^{-3} [109]. Pour obtenir ces performances, Fülöp et al ont utilisé un laser Yb : Yag (Grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme) générant des impulsions "chirpées" picosecondes pour pomper le cristal. Cependant, les conditions expérimentales n'étaient pas optimales. En effet, des études ont montré qu'il était préférable d'utiliser des impulsions laser de 500 fs limitées par transformée de Fourier plutôt que des impulsions laser ultracourtes [110]. D'autre part, il est préférable de refroidir le cristal de LiNbO_3 [110]. L'utilisation de ces impulsions dites "longues" permettrait d'augmenter la longueur effective du cristal de LiNbO_3 et donc d'augmenter l'efficacité du processus. Le refroidissement du cristal serait bénéfique également afin de limiter l'absorption des ondes THz par le cristal. C'est la raison pour laquelle, le cristal de LiNbO_3 a un facteur de mérite 2.5 fois plus élevé à 100° K qu'à température ambiante (voir tableau 1-1). Huang *et al* ont obtenu une efficacité THz de 3.8×10^{-2} en refroidissant le cristal de LiNbO_3 à 150° K [111]. Si ces deux conditions étaient réunies, on pourrait obtenir des taux d'efficacité allant jusqu'à 12% environ et ainsi générer des impulsions THz dont l'énergie atteindrait quelques mJ. Une telle impulsion THz, dont le champ électrique THz crête pourrait atteindre 100 MV/cm, pourrait être utilisée par exemple pour la manipulation et l'accélération de

particules chargées. À ce jour, la valeur maximale de champ électrique THz crête obtenue par RO dans un cristal de LiNbO_3 est de 1.2 MV/cm [112].

2-1-3 : Les sources de radiations THz basées sur la technique du plasma-laser

Une autre méthode qui permet de générer des ondes THz de hautes intensités est l'utilisation d'un plasma généré par un laser. La génération de l'onde THz s'effectue dans un plasma qui a été créé en focalisant une impulsion laser ultracourte dans un gaz (l'air par exemple). L'hypothèse retenue pour expliquer la génération d'ondes THz semble être le déplacement des électrons dans un champ laser. Cette méthode permet de générer des impulsions THz possédant un très large spectre (jusqu'à 75 THz) et une énergie supérieure à 5 μJ [113]. Cette méthode a le gros avantage, vis-à-vis des autres méthodes de génération d'onde THz déjà évoquées, de générer des ondes THz au sein d'un plasma dont le seuil de dommage est illimité. Ainsi de très fortes intensités optiques peuvent être utilisées. Hamster *et al* ont été les premiers à rapporter la génération d'ondes THz par plasma laser [72]. Ils ont focalisé une impulsion laser de 100 fs et de quelques dizaines de μJ dans l'air. Dans ces conditions particulières, le mécanisme de génération de l'onde THz est attribué à la polarisation produite par l'accélération des électrons par la force pondéromotrice [114]. Cette force non-linéaire est celle subie par un électron dans un gradient d'intensité du champ laser. Cependant, cette méthode induit un patron d'émission des ondes THz de forme conique ce qui rend l'énergie THz détectée relativement faible.

Afin de limiter le cône d'émission, Löffler *et al* ont eu l'idée de placer un champ électrique statique de chaque côté du plasma [115]. Dans ce cas précis, la génération d'ondes THz provient du courant créé par l'accélération des électrons ionisés, à l'intérieur du plasma, par le champ électrique statique. Comme pour les antennes PC, l'amplitude du champ électrique THz croît linéairement avec l'amplitude du champ électrique statique. Ainsi, l'énergie THz maximale qui peut être générée, pour une énergie laser fixe, est limitée par la rigidité diélectrique du gaz dans lequel le plasma est créé [116].

Une autre méthode utilisée pour la génération d'ondes THz par plasma laser est de mélanger l'onde optique fondamentale avec sa seconde harmonique [117]. Dans cette configuration, le champ électrique THz obtenu est quarante fois supérieur à celui obtenu par la force pondéromotrice [118]. La figure 2-7 illustre le principe de la génération THz par le mélange de l'onde optique fondamentale et de sa seconde harmonique.

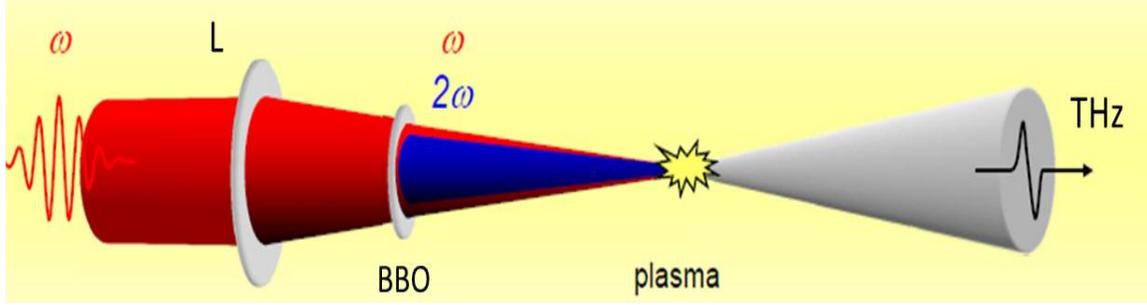


Figure 2-7: Illustration du principe de génération d'onde THz par le mélange de l'onde optique fondamentale et de sa seconde harmonique. La seconde harmonique est générée à partir d'un cristal de BBO de type I. Le plasma est réalisé par la focalisation du faisceau à l'aide d'une lentille notée L.

Plusieurs théories ont été proposées afin d'expliquer le principe de génération d'ondes THz par plasma à deux couleurs [117, 119]. Pour l'écriture de ce manuscrit, nous avons opté pour la théorie proposée par Kim et al [120, 121]. Kim *et al* proposent que la génération d'ondes THz résulte du photo-courant induit lors de l'ionisation du gaz. La création d'un courant directionnel dans un milieu centrosymétrique tel qu'un gaz ou un plasma n'est possible que si on peut briser la symétrie spatiale du milieu. Dans notre cas, c'est l'addition des deux composantes optiques, ω et 2ω , qui crée l'asymétrie. Suivant la théorie de Kim *et al*, l'émission de radiation THz (E_{THz}) du plasma résulte de la variation temporelle de la densité de courant. Le courant est exprimé par :

$$J = -en_e v_e \quad (2-8)$$

où e est la charge de l'électron, n_e est la densité d'électrons et v_e est la vitesse moyenne des électrons. L'émission des ondes THz est exprimée par :

$$E_{THz} \propto \frac{dJ}{dt} = en_e a = \frac{n_e e^2}{m_e} E_{laser} \quad (2-9)$$

où m_e est la masse de l'électron et a est l'accélération d'un électron $a = \frac{e}{m_e} E_{laser}$. Le

champ électrique du laser E_{laser} est composé de deux couleurs (ω et 2ω) et de polarisations parallèles défini par les équations suivantes :

$$E_{laser} = [E_{\omega} \cos(\omega t) + E_{2\omega} \cos(2\omega t + \theta)] \exp\left(-\frac{t^2}{t_p^2}\right) \quad (2-10)$$

$$t_p = \tau / (2 \ln 2)^{1/2} \quad (2-11)$$

$$E_{\omega, 2\omega} = \left(\frac{2I_{\omega, 2\omega}}{c \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (2-12)$$

où ω et 2ω sont les fréquences angulaires à 800 et 400 nm, E_{ω} et $E_{2\omega}$ sont respectivement l'amplitude de l'onde fondamentale (ω) et de l'harmonique (2ω), I_{ω} et $I_{2\omega}$ sont les intensités correspondantes, θ est la phase relative entre ω et 2ω , c est la vitesse de la lumière, τ est la durée de l'impulsion optique et ϵ_0 est la permittivité du vide.

D'après l'équation (2-9), nous voyons que le champ THz dépend de la densité d'électrons créée au sein du plasma. Ainsi, de nombreuses études ont été faites pour savoir quels choix de gaz et de pression favorisaient le plus la photo-ionisation des électrons et donc de la génération d'ondes THz [113, 121]. D'autre part, plusieurs groupes de recherche ont également commenté l'influence des effets de variations du plasma sur l'impact de l'émission des ondes THz [122-125]. Par exemple, Thomson *et al* mettent en avant l'importance d'un plasma plus volumineux pour la génération d'ondes THz de façon plus efficace. Zhong *et al* mettent en avant la longueur du plasma afin d'obtenir une meilleur directivité. D'autre part, une augmentation de 40% du champ THz a été observé lorsque l'on place un guide d'onde juste après le plasma afin de mieux guider les ondes THz [126]. Enfin, il a été démontré que de meilleures efficacités THz peuvent être obtenues en focalisant les impulsions laser à 800 nm et 400 nm avec un miroir parabolique hors axe (MPHA) à 90° à la place d'une lentille [122].

D'autre part, il a été démontré que l'énergie THz dépendait quadratiquement de la longueur de l'impulsion laser. Ainsi, en utilisant une longueur d'onde de 1850 nm, Clerici *et al* ont généré des impulsions THz ayant une énergie de 0.63 μ J, avec un champ

électrique crête de 4.4 MV/cm et une efficacité THz de 1.57×10^{-3} [127]. Ce champ électrique THz crête a été généré en obtenant une tache focale ayant des dimensions de 0.2×0.2 mm. À ce jour cette valeur de champ électrique THz crête est la valeur la plus haute qui a été reportée pour les sources THz compactes. D'autre part, l'efficacité THz est la plus grande pour les sources plasmas à deux couleurs. La figure 2-8 (A) montre la forme temporelle d'une impulsion THz générée par un plasma à deux couleurs et (B) son spectre associé [103, 122]. Nous observons une impulsion THz monocycle dont le spectre s'étend jusqu'à 3.5 THz lorsque nous utilisons une détection classique électro-optique

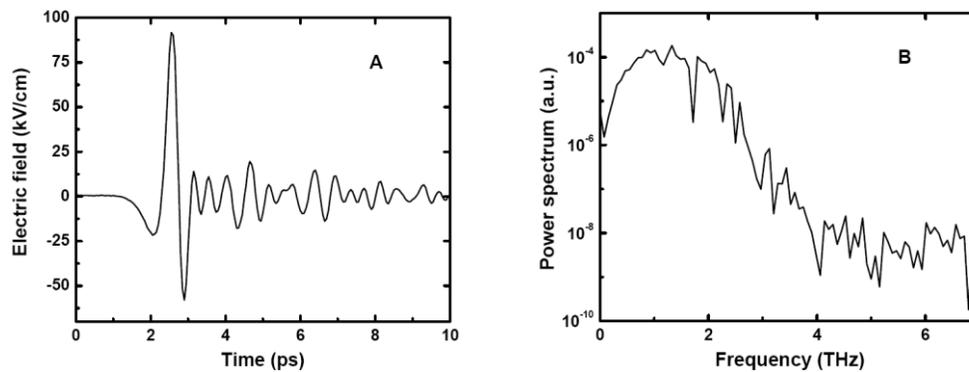


Figure 2-8 : (A) Forme temporelle de d'une impulsion THz générée par la technique de plasma à deux et (B) son spectre de puissance associé [Blanchard].

2-1-4 : Comparatif des principales sources de radiations THz de hautes intensités

Nous avons évoqué les trois moyens les plus répandus pour générer des impulsions d'ondes THz intenses. Le tableau 2-2 récapitule et compare les différents records obtenus avec des sources d'ondes THz à partir d'APCGOs de GaAs, de cristal de ZnTe, de cristal de LiNbO3 et des sources plasmas à deux couleurs. Ces données ont été prises dans les différentes publications que nous avons déjà référencées.

	LAPCGO de GaAs	ZnTe	LiNbO3	Plasma à 2 couleurs
Énergie (μJ)	0.8	1.5	125	> 5
Champ électrique THz (kV/cm)	Estimé à 150	215	1200	4400
Largeur de Bande (THz)	0.05 à 1	0.2 à 3	0.2 à 3	0.2 à 75
Efficacité THz	1.6×10^{-3}	3.1×10^{-5}	3.8×10^{-2}	1.57×10^{-3}

Tableau 2-2: Performances maximales des différentes sources d'ondes THz intenses [15, 101, 103, 109, 112, 113, 127]

À partir du tableau 2-2, nous voyons que chaque type de source THz a des caractéristiques différentes en matière d'énergie, champ électrique THz crête, bande passante et efficacité. Il est certain qu'en matière d'efficacité et d'énergie THz, la source de LiNbO₃ a les meilleures performances. En revanche, la plus grande largeur de bande est générée par les sources plasmas à deux couleurs. Par conséquent, les sources plasmas à deux couleurs obtiennent une tache focale THz beaucoup plus petite que les autres sources THz puisqu'elles bénéficient d'une limite de diffraction plus petite. Ainsi, elles peuvent atteindre des valeurs de champ électrique THz crête bien supérieures que les autres types de sources. Étant donné que les effets non-linéaires sont proportionnels à l'intensité de l'impulsion THz, on peut penser que les sources plasmas à deux couleurs sont les plus efficaces pour observer ce type d'effet. Cependant, au cours du chapitre 2, on s'est aperçu que chaque technique de génération d'ondes THz (APCGO, RO et plasma laser à deux couleurs) génère des impulsions THz qui ont une forme temporelle et un spectre distincts. Ainsi, chaque source peut avoir des applications bien différentes. Par exemple, les sources plasmas à deux couleurs sont le plus souvent utilisées pour réaliser de la spectroscopie THz linéaire ou non linéaire, mais qui requiert une très grande largeur de bande telle que la différenciation des cellules souches biomoléculaires [128]. Les

sources THz basées sur le RO ont des spectres plus étroits. Les applications reliées à ces sources sont très variées comme l'étude de la dynamique des électrons dans le graphène ou pour étudier la multiplication d'électrons au sein d'une structure de multiples puits quantiques dopés [129, 130].

En matière de performances, les antennes photoconductrices sont en retrait vis-à-vis des autres sources THz. Pourtant, des impulsions THz intenses générées à partir d'APCGOs de GaAs ont été utilisées pour induire la génération de la seconde harmonique d'une impulsion laser Ti:Saphir dans des liquides moléculaires [131]. D'autre part, les APCGOs sont les seules sources à pouvoir générer des impulsions THz demi-cycle et asymétriques. Cette particularité a permis d'appliquer ces impulsions asymétriques pour créer l'expérience d'ionisation de l'atome de Rydberg [16]. De plus les très basses fréquences présentes dans ces impulsions THz (0.05 à 1 THz) vont faire en sorte de favoriser des effets non-linéaires tels que l'effet Stark [132], l'ionisation au-dessus du seuil (ou Above Threshold Ionisation en anglais) [133,134] et la génération d'harmonique d'ordre élevé [135]. En effet, ces effets sont fortement favorisés en présence d'électrons ayant une grande énergie pondéromotrice. L'énergie pondéromotrice est la quantité d'énergie cinétique, moyennée sur un cycle optique, du déplacement d'un électron sous l'effet d'un champ électrique oscillant et peut être exprimée par [136] :

$$U_p = \frac{e^2}{2m_e \varepsilon_0 c \omega^2} I \quad (2-13)$$

où e est la charge de l'électron, m_e est la masse de l'électron, ε_0 est la constante diélectrique du vide, I est l'intensité de l'impulsion électromagnétique et ω est la fréquence angulaire de l'impulsion électromagnétique (dans notre cas c'est l'impulsion THz). On remarque donc que l'énergie pondéromotrice est proportionnelle à la longueur d'onde au carré de l'impulsion THz. Ainsi, les impulsions THz générées par une APCGO ont, malgré leurs valeurs de champ électrique THz crête relativement faibles, le potentiel de générer des effets non-linéaires, par l'énergie pondéromotrice des électrons, dans les matériaux. Ainsi, même si les performances des APCGOs sont très inférieures aux autres

types de sources, il est très important de les développer pour pouvoir bénéficier des caractéristiques uniques de leurs impulsions THz.

2-2 : La détection des ondes THz

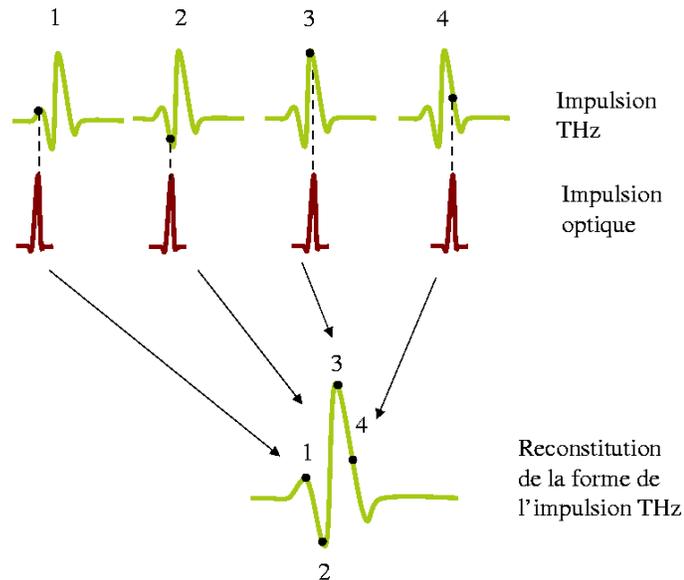


Figure 2-9: Illustration du principe de la technique d'échantillonnage pour la détection d'ondes THz

Pour la détection des ondes THz, nous distinguons deux méthodes. Nous avons la détection par échantillonnage électro-optique ou photoconductif et les détecteurs de puissance des ondes THz (par un détecteur pyroélectrique par exemple). Alors que les détecteurs de puissance permettent d'estimer une puissance totale sur l'ensemble du spectre THz et donc d'obtenir la valeur de l'énergie de l'impulsion THz, l'échantillonnage permet lui de connaître le profil temporel de l'impulsion THz. Le spectre peut être obtenu par le calcul d'une transformée de Fourier. Cette une technique de détection dite cohérente puisque qu'elle permet d'obtenir les informations sur l'amplitude et la phase du champ électrique THz. Cette technique requiert un montage pompe sonde. La sonde, qui est l'impulsion laser ultracourte (environ 50 fs), va "sonder" l'impulsion THz (environ 1 ps) en mesurant à chaque instant la valeur du champ électrique THz. En faisant varier un délai temporel entre l'onde optique et l'onde THz, nous arrivons à recouvrir toute la forme de l'onde THz. Par la suite, la forme de l'impulsion THz est reconstituée en assemblant toutes les mesures. On peut noter que la

limite de la résolution temporelle de l'onde THz est fixée par la durée de l'impulsion sonde. La figure 2-9 illustre le principe de l'échantillonnage.

2-2-1 : La détection par effet électro-optique

Cette partie est consacrée à la description du principe de la détection d'impulsions THz par effet électro-optique (EO) dans le cristal de ZnTe. Après avoir justifié l'emploi du cristal de ZnTe comme cristal électro-optique, nous présenterons la technique expérimentale permettant de mesurer le signal EO.

2-2-1-a : Le choix du cristal électro-optique

Nous allons procéder de la même manière qu'à la section 2-1-2 lorsque nous avons justifié l'emploi du cristal de ZnTe et de LiNbO₃ pour la génération d'ondes THz par RO. L'effet EO est un phénomène qui traduit l'influence d'un champ électrique de faible fréquence (dans notre cas les fréquences THz) sur les propriétés diélectriques d'un cristal. Le principe de la méthode de détection basée sur cet effet est le suivant : la présence d'une onde THz dans un cristal EO entraîne l'apparition d'une biréfringence induite qui provoque une rotation de la polarisation d'un faisceau sonde (d'une longueur d'onde de 800 nm dans notre cas) traversant le cristal. La rotation est proportionnelle au champ THz. La mesure de cette rotation de polarisation au cours du temps permet de déterminer l'amplitude et la phase du champ électrique de l'impulsion THz. Pour que la détection soit efficace, il faut utiliser un cristal possédant un fort coefficient EO. Par ailleurs, les conditions expérimentales de la technique d'échantillonnage EO font que nous avons l'impulsion sonde et l'impulsion THz qui sont superposées dans le cristal EO. La détection sera plus efficace quand la différence entre les vitesses de propagation de l'impulsion sonde et de l'impulsion THz est faible.

Le cristal de ZnTe offre ces deux caractéristiques (4.04 pm/V pour le coefficient EO et 1.1 ps/mm pour le DVG ou décalage de vitesse de groupe). Il est donc un candidat de choix et très largement utilisé pour la détection d'ondes THz [137-142]. D'autres cristaux, tels que le LiNbO₃ et le LiTaO₃, ont des coefficients EO plus élevés que celui du ZnTe. Cependant, la différence de vitesse de propagation entre l'impulsion THz et l'impulsion laser à 800 nm est trop importante et limite la longueur d'interaction entre les

ondes à de faibles épaisseurs ce qui diminue l'efficacité de la détection des ondes THz [139]. Le DAST (4-N,N-diméthylamino-4'-N'-méthyl-stilbazolium tosylate en anglais) est un cristal organique qui retient beaucoup l'attention pour la détection des ondes THz par échantillonnage EO [143]. Ce cristal a un très fort coefficient EO (160 pm/V) et un faible DVG (1.22). Cependant il ne peut pas être utilisé efficacement pour la détection des ondes THz du fait de la présence de nombreux phonons optiques pour des fréquences allant de 1 à 3 THz [144]. Les phonons optiques sont des quanta d'énergie de vibration collective des atomes et des molécules dans les solides qui absorbent fortement les ondes THz [138].

2-2-1-b : Présentation de la technique expérimentale

L'échantillonnage EO d'une impulsion THz repose sur l'effet réciproque du redressement optique : l'effet Pockels. L'effet Pockels définit l'apparition de la biréfringence créée dans un cristal EO par un champ électrique statique ou variable. Du point de vue expérimental, nous superposons les impulsions sondes et THz dans un cristal EO. La polarisation de l'impulsion sonde est linéaire. En l'absence de champ THz, la polarisation linéaire du faisceau sonde reste identique après la propagation dans le cristal de ZnTe. Une fois le cristal traversé, nous transformons la polarisation linéaire de l'impulsion sonde en polarisation circulaire à l'aide d'une lame quart d'onde ($\lambda/4$) orientée de telle sorte qu'il y ait un angle de 45° entre ses lignes neutres et le champ électrique associé à l'impulsion sonde. L'utilisation d'un prisme de Wollaston permet alors de séparer la composante parallèle (notée "s") et la composante perpendiculaire (notée "p") de la polarisation circulaire de l'impulsion sonde. Par la suite, nous avons donc deux faisceaux. Les deux faisceaux sont dirigés et imagés sur un système de deux photodiodes en mode balancé. Comme l'impulsion sonde est polarisée circulairement, les intensités des composantes "s" et "p" sont identiques. La différence de signal en sortie des photodiodes est donc nulle. Prenons le cas où une impulsion THz se propage de façon colinéaire à l'impulsion sonde. Le champ électrique THz induit une biréfringence dont la force est proportionnelle au champ électrique THz. Cette biréfringence va induire une rotation de la polarisation linéaire du faisceau sonde. Par conséquent, l'angle entre le champ électrique de l'impulsion sonde et les lignes neutres de la lame quart d'onde n'est

plus de 45°. Après le passage de l'impulsion sonde au travers de la lame $\lambda/4$, l'état de polarisation de la sonde devient elliptique. La différence d'intensité des composantes "s" et "p" est non nul. Cette différence d'intensité est proportionnelle à la biréfringence induite par le champ électrique THz. Ensuite, le champ électrique THz est échantillonné en faisant varier le délai de l'impulsion sonde laser relatif au champ électrique THz sur toute la durée de l'impulsion THz comme le montre la figure 2-10 :

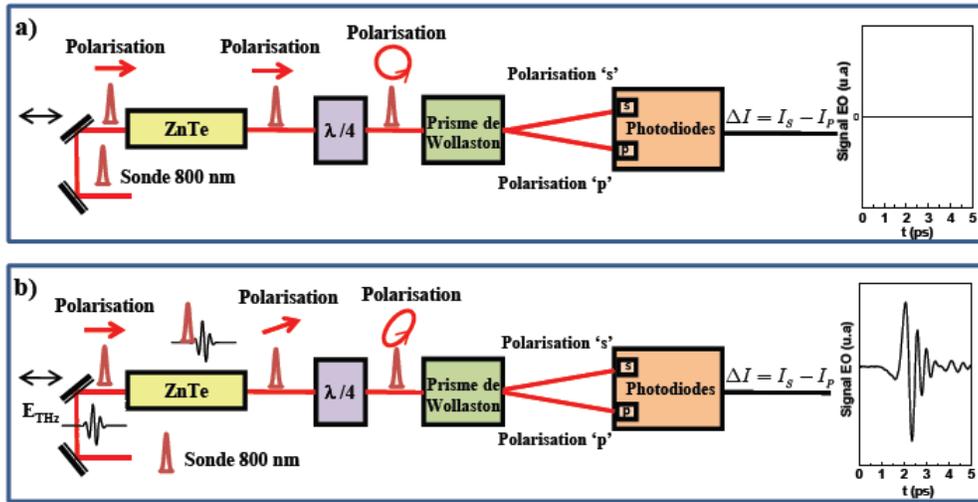


Figure 1-10: Illustration du système expérimental permettant la réalisation de l'échantillonnage électro-optique (a) en absence et (b) en présence d'ondes THz

2-2-1-c : Calcul de la biréfringence induite dans un cristal électro-optique

Dans cette section, nous allons déterminer la formule qui permet de déterminer la valeur du champ électrique THz par échantillonnage EO dans un cristal de ZnTe. Ce matériau ne possède aucune propriété de biréfringence en l'absence de champ électrique. Son tenseur électro-optique, noté r , a quelques coefficients non nuls de grandeurs r_{41} . Ce tenseur électro-optique est le suivant :

$$[r] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix} \quad (2-14)$$

À partir de ce tenseur, nous obtenons l'ellipsoïde de l'indice de réfraction quand un champ électrique arbitraire noté $E = (E_x, E_y, E_z)$ est appliqué au cristal [145] :

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} + 2r_{41}E_x yz + 2r_{41}E_y xz + 2r_{41}E_z xy = 1 \quad (2-15)$$

Afin de simplifier les équations mathématiques dans le plan du cristal (110), nous devons faire un changement du système de référence. Ce changement est fait à l'aide d'une rotation de 45° autour de l'axe z . Cela nous donne un nouveau système dont les axes $x'y'z'$ sont obtenus de la façon suivante :

$$\begin{bmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ y \\ z \end{bmatrix} \quad (2-16)$$

Lorsque le champ électrique THz frappe le cristal de ZnTe, orienté en (110), avec une incidence normale, son vecteur s'écrit de la façon suivante (voir figure 2-11) :

$$E_{THz} = E_{THz} \left(\frac{\sin \phi}{\sqrt{2}}, -\frac{\sin \phi}{\sqrt{2}}, \cos \phi \right) \quad (2-17)$$

En insérant l'expression du champ électrique THz (2-17) dans l'équation de l'ellipsoïde (2-15), nous obtenons :

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} + 2r_{41}E_{THz} \frac{\sin \phi}{\sqrt{2}} yz - 2r_{41}E_{THz} \frac{\sin \phi}{\sqrt{2}} xz + 2r_{41}E_{THz} \cos \phi xy = 1 \quad (2-18)$$

Par la suite, nous réécrivons cette relation dans le nouveau système de référence $x'y'z'$.

Nous obtenons :

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} + 2r_{41}E_{THz} \sin \phi y' z' + 2r_{41}E_{THz} \cos \phi (x'^2 - z'^2) = 1 \quad (2-19)$$

Afin d'obtenir l'équation de l'ellipsoïde décrite dans le plan (110), nous posons $x'=0$.

Nous obtenons donc :

$$\left(\frac{1}{n_0^2} - r_{41}E_{THz} \cos \phi \right) y'^2 + \frac{z'^2}{n_0^2} + 2r_{41}E_{THz} \sin \phi y' z' = 1 \quad (2-20)$$

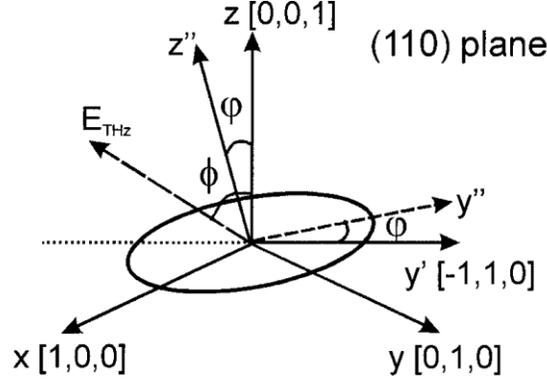


Figure 2-11: Géométrie du cristal de ZnTe (110) servant à l'échantillonnage électro-optique. La page est dans le plan (110) [145]

À partir de cette équation, nous trouvons l'orientation de l'axe principal de l'ellipse formée dans le système de coordonnées $y''z''$ par :

$$\left[\frac{1}{n_0^2} + \frac{1}{2} r_{41} E_{THz} \left(-\cos \phi + \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi} \right) \right] y''^2 + \left[\frac{1}{n_0^2} + \frac{1}{2} r_{41} E_{THz} \left(-\cos \phi - \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi} \right) \right] z''^2 = 1 \quad (2-21)$$

L'équation (2-21) nous permet de déterminer la différence Δn des deux principaux indices de réfraction $n_{y''}$ et $n_{z''}$:

$$n_{y''} \approx n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} E_{THz}}{4} \left(\cos \phi - \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi} \right) \quad (2-22)$$

$$n_{z''} \approx n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} E_{THz}}{4} \left(\cos \phi + \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi} \right) \quad (2-23)$$

$$\Delta n \equiv (n_{z''} - n_{y''}) = \frac{n_0^3 r_{41} E_{THz} \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi}}{2} \quad (2-24)$$

En sachant que le signal de l'échantillonnage EO, I_{signal} , de l'onde THz est proportionnel au retard de phase $\Gamma = \left(\frac{2\pi d}{\lambda} \right) \Delta n$, nous obtenons :

$$I_{signal} \propto \frac{E_{THz} \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi}}{2} \quad (2-25)$$

À partir de l'équation (2-25), nous voyons que le signal de l'échantillonnage EO est maximum lorsque le retard est le plus grand ($\phi=90^\circ$). Cette condition est remplie lorsque le champ électrique THz est parallèle à l'axe y' , ce qui correspond à la direction $[\pm 1, \pm 1, 0]$ du cristal. Dans le plan $y'z'$, l'axe principal y'' pointe dans la direction :

$$\left(1, \frac{2 \sin \phi}{\sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi - \cos \phi}} \right) \quad (2-26)$$

Et l'axe z'' pointe dans la direction :

$$\left(1, \frac{-2 \sin \phi}{\sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi + \cos \phi}} \right) \quad (2-27)$$

Nous déterminons l'orientation de l'ellipse représentée par l'angle φ (voir la figure 2-11) :

$$\tan \varphi = \left(\frac{2 \sin \phi}{\sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi - \cos \phi}} \right) \Rightarrow 2 \tan \phi = -\tan(2\varphi) \quad (2-28)$$

où φ est l'angle compris entre l'axe principal de l'ellipse y'' et l'axe y' . Quand nous avons le retard de phase qui est maximum ($\phi=90^\circ$), alors $\varphi=\pm 45^\circ$. Cela signifie qu'il faut que la polarisation de la sonde optique soit parallèle aux axes $y'[\pm 1, \pm 1, 0]$ ou $z'[\pm 1, \pm 1, 0]$

Enfin, il est à noter que l'amplitude du retard de phase induit par l'effet Pockels dans le cristal de ZnTe (110) est donnée par la relation :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda} n_0^3 r_{41} E_{THz} L = \frac{A - B}{A + B} \quad (2-29)$$

La relation (2-29) n'est valide que pour des petits retards de phase ($\sin \Gamma \approx \Gamma$). Lorsque l'on utilise le cristal de ZnTe comme cristal détecteur, nous avons : $n_0=2.85$ qui est l'indice de réfraction du cristal de ZnTe à $\lambda=800$ nm, $r_{41}=4.04$ pm/V qui est le coefficient électro-optique du cristal de ZnTe à la longueur d'onde de 800 nm et L qui est l'épaisseur du cristal de ZnTe. Enfin, $\frac{A - B}{A + B}$ est la modulation du signal EO capté par les deux photodiodes. A et B sont les signaux électroniques des deux photo diodes en mode "balancé" obtenus après la détection de l'intensité optique des deux composantes, "s" et "p", de la polarisation elliptique de la sonde optique.

2-2-2 : L'échantillonnage photoconductif

La méthode de l'échantillonnage photoconductif (PC) permet de détecter des ondes THz. De la même façon que l'échantillonnage EO, l'échantillonnage PC va

reconstituer la forme de l'impulsion THz. La technique d'échantillonnage PC utilise une antenne photoconductrice en tout point similaire à celle qui peut être utilisée pour la génération d'ondes THz. L'origine de cette technique est apparue au début des années 80 [146]. Auston *et al* ont utilisé des commutateurs photoconducteurs pour faire de l'échantillonnage d'impulsions électroniques picosecondes. Cependant, il a fallu attendre le milieu des années 80 pour obtenir la première détection d'ondes THz par échantillonnage PC [65]. Auston *et al* ont utilisé deux antennes photoconductrices placées l'une en face de de l'autre pour faire de la génération et de la détection d'ondes THz.

Les antennes PC détectrices utilisées pour la détection d'ondes THz fonctionnent comme les antennes PC génératrices. L'impulsion optique sonde est focalisée à l'intérieur de l'espace inter-électrode. Les photons, dont l'énergie est supérieure à la largeur de bande interdite du cristal semiconducteur, sont absorbés par le matériau. Par conséquent, des porteurs de charge libres sont créés dans la bande de conduction et augmentent la conductivité surfacique. À la différence d'une antenne PC émettrice, l'antenne PC détectrice n'est pas polarisée par une tension. L'accélération des porteurs de charge libres, responsable du photocourant, est réalisée par le champ électrique THz. Le photocourant créé est détecté aux bornes de l'antenne et est proportionnel au champ électrique THz et à la densité de porteurs de charge. Il est à noter également que le sens du courant va dépendre de la polarité du champ THz. La figure 2-12 illustre le principe de la détection d'ondes THz par échantillonnage PC.

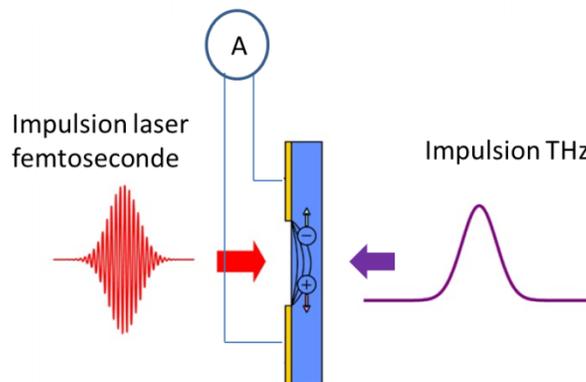


Figure 2-12: Illustration de la technique d'échantillonnage photoconductif

La reconstitution de l'impulsion THz va être réalisée par calcul du produit de la convolution de la conductivité de l'antenne, σ_s , induite par l'impulsion sonde, et le champ électrique THz, E_{THz} par :

$$J_s(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_s(t-t')E_{THz}(t')dt' \quad (2-30)$$

où t est le délai entre le temps où l'impulsion sonde frappe l'antenne et le temps où l'impulsion THz frappe l'antenne. À partir de l'équation (2-30), nous voyons que le photocourant détecté n'est pas directement proportionnel au champ électrique THz. La forme temporelle de la conductivité et par conséquent les caractéristiques du semi-conducteur de l'antenne réceptrice et de l'impulsion sonde, jouent un rôle important sur la forme de l'impulsion THz détecté. Afin de limiter l'influence de la conductivité, il est nécessaire de travailler avec des matériaux dont le temps de recombinaison des charges est très rapide. Nous pouvons faire l'hypothèse suivante. On considère que l'impulsion sonde est ultracourte de telle sorte que le temps de montée de la conductivité soit très rapide. Si le temps de vie des porteurs de charge du matériau τ_{car} tend vers 0, alors la conductivité est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_s(t-t') = \sigma_0\delta(t-t') \quad (2-31)$$

où $\delta(t)$ est une impulsion de Dirac. Ainsi, l'équation (2-30) revient à :

$$J_s(t) = \sigma_0 E_{THz}(t) \quad (2-32)$$

Ainsi, le champ électrique THz est uniquement proportionnel au courant surfacique. Afin d'avoir la conductivité la moins influente possible sur la mesure du champ électrique THz, le GaAs formé à basse température est le matériau privilégié pour la fabrication d'antenne PC [147, 148]. Le temps de vie des porteurs de charge au sein du GaAs basse température utilisé pour des applications THz est inférieur à 0.5 ps. D'autre part, il a été démontré, que la limite supérieure de largeur de bande détectée est uniquement limitée par la durée d'impulsion de la sonde et par le temps de vie des porteurs de charge. On a été reporté la détection d'ondes THz avec des fréquences THz allant jusqu'à 30 THz par une antenne de GaAs dopé à l'arsenic par implantation ionique et excité par une impulsion sonde de 15 fs [149]. Plus récemment, Shiminota *et al.* ont démontré la

détection d'ondes THz dont le spectre s'étendait jusqu'à 100 THz à partir d'une antenne de GaAs formé à basse température excitée par une impulsion sonde de 10 fs [150].

Un autre facteur qui n'a pas été encore mentionné est la géométrie de l'antenne. Ce paramètre peut influencer la détection d'ondes THz par échantillonnage EO [64]. Il a été démontré que lorsque la longueur des électrodes augmentaient, tout en gardant la distance inter-électrodes constante, l'amplitude du signal détecté augmentait mais que le pic des fréquences détectées subissait un déplacement vers les basses fréquences. Il a été également démontré, que pour une longueur d'électrodes constante, la détection des hautes fréquences THz était supérieure en réduisant la taille de l'espace inter-électrodes.

Il est à noter également que la détection des ondes THz par échantillonnage PC est parfaitement adaptée lorsque les ondes THz sont de faibles intensités. Typiquement, les antennes PC sont utilisées pour la génération et la détection d'ondes THz lorsque le système laser est un oscillateur. Ce choix se justifie surtout pour des questions de simplicité et de coût, plus que pour des questions de performances de détection puisque la source émettrice d'ondes THz est une antenne PC. La raison principale pour laquelle les antennes PC ne sont pas utilisées pour la détection des ondes THz de hautes intensités est que les antennes PC sont très sensibles au bruit électromagnétique ambiant. Ainsi, dans le cas de mon projet de développer une source THz de haute intensité à partir d'une antenne PC de grande ouverture, l'utilisation d'une source de haute tension est obligatoire. Cette source de haute tension va émettre un bruit électromagnétique qui perturbera très fortement l'antenne PC détectrice. Pour cette raison, la détection d'ondes THz dans le cadre de mon projet ne pourra pas se faire par échantillonnage PC.

2-2-3 Les détecteurs thermiques

Une des difficultés majeures avec la manipulation des ondes THz est la mesure directe de l'énergie des impulsions THz puisque cette énergie ne dépasse que très rarement la dizaine de μJ . Un des moyens de mesurer de façon directe l'énergie des impulsions THz est d'utiliser des détecteurs thermiques. Les détecteurs thermiques convertissent le rayonnement THz en énergie thermique. Ce mécanisme a l'avantage d'être large bande et donc de couvrir toute la gamme THz. Le temps de réponse de ces

appareils est relativement lent puisque les constantes de temps thermiques varient de la microseconde à la seconde en fonction du type de détecteur. Il existe différents types de détecteurs thermiques comme les bolomètres et les détecteurs pyroélectriques. La limite de détection de ces types de détecteurs est déterminée par la puissance de bruit équivalente. La puissance de bruit équivalente est la somme des bruits thermiques, électroniques et diélectrique [151]. D'autre part, ce type de détecteur est également peu sensible aux longueurs d'ondes THz [152].

À l'INRS-EMT, nous ne possédons pas de bolomètre. Ainsi, je ne développerai pas le principe de fonctionnement d'un bolomètre. En revanche, pendant les différentes campagnes expérimentales, je me suis servi de détecteurs pyroélectriques provenant des sociétés Coherent-Molelectron et Gentec. La première invention d'un détecteur pyroélectrique remonte à 1938 [153]. Ta *et al* ont fabriqué un détecteur infrarouge pyroélectrique à partir d'un cristal de tourmaline. Traditionnellement, le détecteur pyroélectrique est fabriqué autour d'un cristal de tantalite de lithium (LiTaO₃) qui a la propriété de changer de polarisation électrique sous l'effet d'un gradient de température. Ce changement de polarisation est proportionnel à la variation de température et génère un courant qui est caractérisé par :

$$i_p = pS \frac{\partial T}{\partial t} \quad (2-33)$$

où i_p est le courant créé au sein du détecteur pyroélectrique, p est le coefficient pyroélectrique et S est la surface traversée par le courant.

Le détecteur pyroélectrique est composé d'une fine couche de matériau pyroélectrique coincée entre deux électrodes. Le rayonnement THz est absorbé par une couche de capacité thermique dont la température augmente et chauffe la couche pyroélectrique. Le système est refroidi à la température ambiante par les pertes induites par la conduction et la convection. La figure 2-13 illustre le principe de fonctionnement d'un détecteur pyroélectrique.

Le détecteur pyroélectrique concurrence le bolomètre pour la mesure directe de l'énergie THz. En revanche, ses performances sont inférieures à celles que peut proposer un bolomètre. La raison est qu'un détecteur pyroélectrique fonctionne à température

ambiante induisant un bruit thermique très supérieure à celui d'un bolomètre. La principale raison de son utilisation est son coût moins élevé qu'un bolomètre et sa robustesse. Cependant, il faut des impulsions THz ayant une énergie proche du μJ pour pouvoir utiliser un détecteur pyroélectrique.

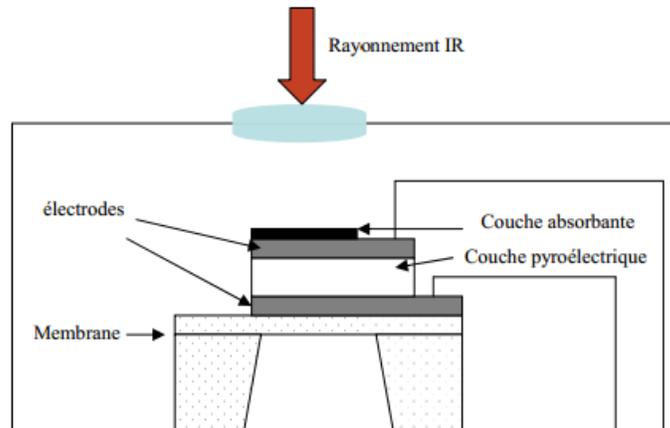


Figure 2-13: Principe d'un détecteur pyroélectrique

Le prochain chapitre va aborder la théorie complète des antennes de grande ouverture. Nous étudierons également les limites de la génération d'ondes THz intense à partir d'antenne de grande ouverture.

Chapitre III

Génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices de grande ouverture

Le chapitre 3 développe la théorie de la génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices de grandes ouvertures (APCGOs). D'autre part, afin de compléter la compréhension de la génération d'ondes THz par les APCGOs, nous allons rapporter des résultats obtenus à partir d'expériences réalisées, au cours de ma thèse, sur des APGOs de GaAs. Ces expériences avaient un but pédagogique afin de me donner l'occasion de manipuler des APGOs et d'obtenir de l'expérience sur la manipulation et l'alignement d'un montage pompe-sonde permettant la génération et la détection d'ondes THz. Il est à noter que ces expériences ont déjà été réalisées et les résultats publiés à de nombreuses reprises par de nombreux groupes et donc ne peuvent pas être publiés de nouveau. Enfin, au cours de ce chapitre, nous allons comparer les matériaux qui sont propices à la fabrication d'APCGOs.

3-1 : Modèle théorique de la génération d'ondes THz par des antennes photoconductrices de grande ouverture

Dans cette section, nous allons décrire la génération d'ondes THz par des APCGOs. Une APCGO est constituée d'un cristal semi-conducteur, servant de substrat et ayant une constante diélectrique ϵ , sur lequel nous déposons deux électrodes parallèles. Une antenne photoconductrice est dite de grande ouverture lorsque sa dimension transverse (ou plus spécifiquement la distance inter-électrodes) est grande (bien plus grande que 0.3 mm) vis-à-vis de la longueur d'onde centrale rayonnée par l'émetteur THz (1 THz=0.3 mm). Il est à noter également que la théorie de la génération d'ondes THz par les APCGOs [77,78] peut aussi être appliquée aux antennes photoconductrices dites "semi-large". Le terme "semi-large" a déjà été utilisé dans la littérature [81,154] pour définir des antennes PC ayant une distance inter-électrodes compris entre 100 μ m et 1mm.

La figure 3-1 montre une APCGO polarisée par une tension V_b (et donc par un champ électrique de polarisation respectif E_b), illuminée à incidence normale par une impulsion laser. La figure 3-1 montre également les éléments dépendant du temps tels que :

- Le champ électrique rayonné entrant et sortant, $E_{r,in}(t)$ et $E_{r,out}(t)$,
- Le champ magnétique rayonné entrant et sortant, $H_{r,in}(t)$ et $H_{r,out}(t)$,
- le courant surfacique $J_s(t)$.

On considère que les champs rayonnés sont des ondes planes qui s'éloignent du plan défini par la surface contenant l'aire illuminée. La figure 3-1 montre également deux surfaces orthogonales, ayant respectivement une longueur l et une largeur w , dessinées partiellement à l'intérieur du semiconducteur. La surface comprise dans le plan de la page a pour vecteur unitaire n_y . La surface qui est perpendiculaire au plan de la page a pour vecteur unitaire n_x . La troisième surface, perpendiculaire aux deux autres, a pour vecteur unitaire n_z .

À l'aide des équations de Maxwell et de toutes les entités que nous avons décrites précédemment, nous allons déterminer l'expression du champ électrique THz généré par une APCGO. Bien que la figure 3.1 montre des quantités physiques qui sont dépendantes du temps, nous pouvons démontrer que les conditions aux limites du champ électrique et du champ magnétique sont celles que l'on obtient à l'état stationnaire. La théorie qui est décrite ci-dessous est développée à partir de celle qui a été publiée par J. T. Darrow *et al*, P. K. Benicewicz *et al* et M. R. Stone *et al* dans [77,78, 81].

La condition aux limites du champ électrique peut être obtenue à partir de l'équation de Maxwell-Faraday [155] :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\frac{\mu_0 \mu_r \partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (3-1)$$

où μ_0 et μ_r sont la perméabilité magnétique du vide et la perméabilité relative du cristal semi-conducteur. Comme le substrat de l'antenne n'est pas magnétique, nous pouvons supposer que $\mu_r=1$.

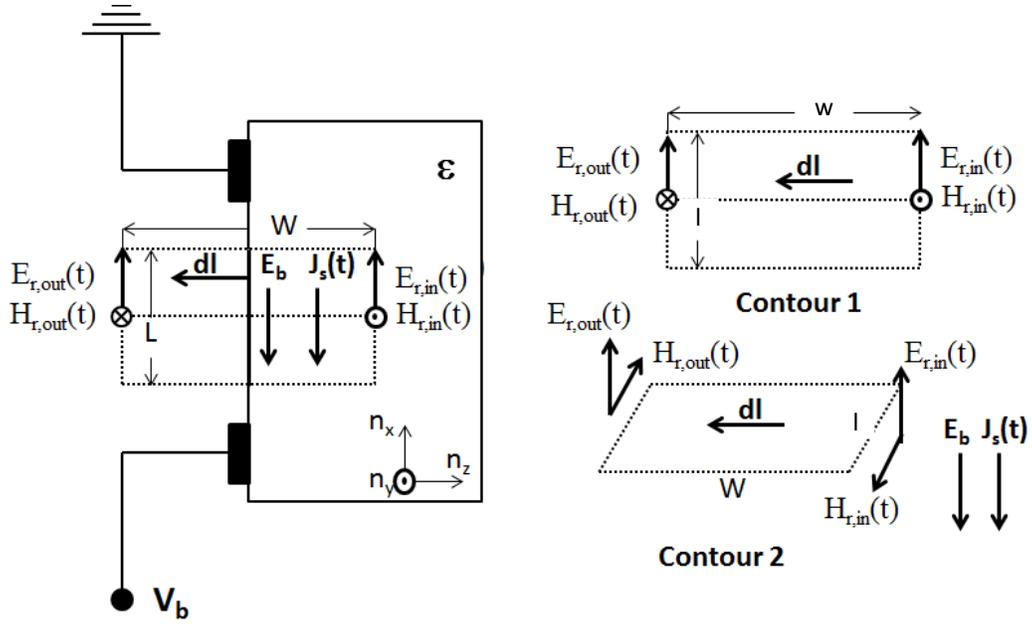


Figure 3-1 : Schéma montrant le principe de la génération THz par une APCGO photoexcitée à incidence normale et polarisée par une tension V_b [77]. La figure montre les champs électromagnétiques suivant : Le champ électrique de polarisation E_b , les champs électriques et magnétiques entrant et sortant de la surface de l'antenne $E_{r,in}(t)$, $E_{r,out}(t)$, $H_{r,in}(t)$, $H_{r,out}(t)$. Le schéma montre également le courant surfacique dépendant du temps $J_s(t)$.

En utilisant le théorème de Stokes [156], nous intégrons l'équation (3-1) sur une aire plane qui est perpendiculaire à la surface de l'antenne PC et ayant comme vecteur unitaire \mathbf{n}_y .

$$\int (\nabla \times \mathbf{E}) \cdot d\mathbf{a} = \oint \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \int \mathbf{H} \cdot d\mathbf{a} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \int \mathbf{H} \cdot \mathbf{n}_y \, da \quad (3-2)$$

Le contour d'intégration de l'équation (3-2) est délimité par le périmètre décrit dans la figure 3.1 qui est nommé **contour 1**. On définit la longueur l de façon à ce qu'elle soit plus grande que la longueur d'onde centrale rayonnée mais aussi plus petite que la distance inter-électrode de l'antenne. De ce fait, nous supposons que les champs électriques rayonnés sont uniformes sur les côtés du contour d'intégration. Ainsi, l'équation (3-2) devient :

$$\begin{aligned} (E_{r,in}(t) - E_{r,out}(t))l &= -lw\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (H_{r,in}(t) - H_{r,out}(t)) \\ (E_{r,in}(t) - E_{r,out}(t)) &= -w\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (H_{r,in}(t) - H_{r,out}(t)) \end{aligned} \quad (3-3)$$

Comme nous supposons que le côté droit de l'équation (3-3) est borné, la limite de l'équation (3-3), quand w est très petit, devient :

$$\lim_{w \rightarrow 0} (E_{r,in}(t) - E_{r,out}(t)) = 0 \quad (3-4)$$

Nous prédisons que les champs électriques rayonnés sont égaux à la surface du cristal semi-conducteur.

$$\mathbf{E}_{\mathbf{r},in}(t) = \mathbf{E}_{\mathbf{r},out}(t) \quad (3-5)$$

Aussi, l'équation (3-5) peut être exprimée par la condition aux limites de l'état stationnaire appliquée au champ électrique [157]:

$$\mathbf{n}_z \times (\mathbf{E}_{\mathbf{r},out}(t) - \mathbf{E}_{\mathbf{r},in}(t)) = 0 \quad (3-6)$$

Il est à noter que l'équation (3-5) a été vérifiée expérimentalement sur des APCGOs de GaAs [158]. Par une méthodologie similaire à celle que nous avons utilisée ci-dessus, la condition limite sur le champ magnétique est obtenue à partir de l'équation de Maxwell-Ampère [155] :

$$\nabla \times \mathbf{H} = \left(\mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \quad (3-7)$$

où \mathbf{J} est la densité de courant et \mathbf{D} est l'induction électrique (i.e. $\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \mathbf{E}$). ε et ε_r sont respectivement la permittivité diélectrique et la permittivité diélectrique relative du cristal semi-conducteur de l'antenne. ε_0 est la permittivité diélectrique du vide. En appliquant le théorème de Stokes à l'équation (3-7), nous obtenons :

$$\oint \mathbf{H} \cdot d\mathbf{l} = \int \left(\mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \cdot \mathbf{n}_x da \quad (3-8)$$

Le contour de l'intégrale est défini dans la figure (3-1) avec le **contour 2**. En développant l'intégrale, nous obtenons :

$$\begin{aligned} -(H_{r,out}(t) + H_{r,in}(t))l &= -l \int_0^w J(z,t) dz + lw \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} (E_{r,out}(t) + \varepsilon_r E_{r,in}(t)) \\ (H_{r,out}(t) + H_{r,in}(t)) &= \int_0^w J(z,t) dz - w \varepsilon_0 (1 + \varepsilon_r) \frac{\partial}{\partial t} E_{r,in}(t) \\ (H_{r,out}(t) + H_{r,in}(t)) &= J_s(t) - w \varepsilon_0 (1 + \varepsilon_r) \frac{\partial}{\partial t} E_{r,in}(t) \end{aligned} \quad (3-9)$$

où $\mathbf{J}_s(t)$ est le courant de surface et est relié à la densité de courant $\mathbf{J}(t)$ par :

$$J_s(t) = \int_0^\delta J(z,t) dz \quad (3-10)$$

où δ est la profondeur d'absorption des photons dans le substrat photoconducteur de l'antenne, dz est la distance incrémentielle et est parallèle au vecteur unitaire \mathbf{n}_z . Il est à noter que \mathbf{J}_s est un courant par unité de longueur (une densité de courant linéaire).

Puisque $\frac{\partial}{\partial t} E_{r,in}(t)$ est borné, nous avons le terme de droite de l'équation (3-9) qui est négligeable quand nous calculons sa limite lorsque w tend vers 0. Nous obtenons donc:

$$\lim_{w \rightarrow 0} (H_{r,in}(t) + H_{r,out}(t)) = J_s(t) \quad (3-11)$$

L'équation (3-11) peut être exprimée avec la condition aux limites appliquée au champ magnétique [157] :

$$(\mathbf{H}_{r,out}(t) - \mathbf{H}_{r,in}(t)) \times \mathbf{n}_z = \mathbf{J}_s(t) \quad (3-12)$$

Dans le cas d'un milieu non magnétique, le champ magnétique rayonné est relié au champ électrique par la constante diélectrique relative du substrat photoconducteur ϵ_r et par l'impédance du vide Z_0 tel que [159] :

$$\mathbf{H}_{r,in}(t) \times \mathbf{n}_z = \frac{\sqrt{\epsilon_r}}{Z_0} \mathbf{E}_{r,in}(t) \quad (3-13)$$

Et

$$\mathbf{H}_{r,out}(t) \times \mathbf{n}_z = -\frac{1}{Z_0} \mathbf{E}_{r,out}(t) \quad (3-14)$$

Il est à noter que les équations (3-6), (3-12), (3-13) et (3-14) sont valides lorsque l'illumination est normale à la surface de l'antenne mais également pour une illumination oblique à la surface.

3-1-1 : Illumination normale à la surface photoconductrice

Nous allons déterminer l'expression du champ électrique THz d'une impulsion THz rayonnée par une APCGO et qui se propage à l'intérieur de l'antenne telle que le montre la figure 3-1. À partir des équations (3-5), (3-12), (3-13) et (3-14), nous pouvons

exprimer le courant surfacique $\mathbf{J}_s(t)$ comme une fonction du champ électrique rentrant $\mathbf{E}_{r,in}(t)$ tel que :

$$\mathbf{J}_s(t) = -\frac{(1 + \sqrt{\epsilon_r})}{Z_0} \mathbf{E}_{r,in}(t) \quad (3-15)$$

Ainsi, la forme temporelle du champ électrique rentrant, $\mathbf{E}_{r,in}(t)$, est la même que celle du courant surfacique $\mathbf{J}_s(t)$. Ce phénomène a déjà été observé expérimentalement dans le passé lorsque le champ électrique THz, généré par des APCGOs de GaAs, fut détecté en champ proche [160, 161]. Dans la théorie des APCGOs, le champ proche est le volume défini par tous les points de l'espace, depuis le centre de la surface photo-excité, qui ont une distance qui est inférieure à la distance inter-électrode de l'antenne.

À partir de la loi d'Ohm, nous pouvons déterminer le courant surfacique $\mathbf{J}_s(t)$ par :

$$\mathbf{J}_s(t) = \sigma_s(t) (\mathbf{E}_b + \mathbf{E}_{r,in}(t)) \quad (3-16)$$

où $\sigma_s(t)$ est la conductivité surfacique de l'antenne photoconductrice et est défini à partir de [77]:

$$\sigma_s(t) = \frac{e(1-R)}{h\nu} \int_{-\infty}^t dt' \mu(t-t') I_{opt}(t') \exp\left(-\frac{t-t'}{\tau_c}\right) = e\mu n(t) \quad (3-17)$$

où e est la charge de l'électron, R est la réflexion optique du substrat à la longueur d'onde de l'impulsion laser, $I_{opt}(t')$ et $\mu(t-t')$ sont respectivement l'intensité de l'impulsion laser et la mobilité des porteurs de charge en fonction du temps, $h\nu$ est l'énergie des photons de l'impulsion laser (qui doit être supérieure à la largeur de bande interdite du cristal semi-conducteur de l'antenne), et τ_c est le temps de vie des porteurs de charge. Dans le cas présent, nous supposons que la mobilité des porteurs de charge est constante pendant la durée de l'impulsion THz. D'autre part, nous allons uniquement considérer que la mobilité des électrons dans les équations puisque la mobilité des trous est souvent très inférieure à celle des électrons et qu'elle peut être négligée dans nos calculs. L'équation (3-17) peut être simplifiée par :

$$\begin{aligned} n(t) &= \frac{e(1-R)\mu I_0}{h\nu} \int_{-\infty}^t dt' g(t') \exp\left(-\frac{t-t'}{\tau_c}\right) \\ n(t) &= G_0 \int_{-\infty}^t dt' g(t') \exp\left(-\frac{t-t'}{\tau_c}\right) \end{aligned} \quad (3-18)$$

où $g(t')$ est le profil temporel de l'impulsion laser. Nous avons $G_0=(1-R)(I_0/h\nu)$ qui est la densité de photon absorbé par unité de surface et $I_0=P_{opt}/A_{opt}$ qui est l'intensité laser, où P_{opt} et A_{opt} sont respectivement la puissance laser et la surface illuminée par l'impulsion laser. Depuis les expressions (3-15) et (3-16) nous pouvons maintenant déterminer les expressions de $\mathbf{J}_s(t)$ et $\mathbf{E}_{r,in}(t)$:

$$\mathbf{J}_s(t) = \mathbf{E}_b \frac{(1 + \sqrt{\epsilon_r})\sigma_s(t)}{\sigma_s(t)Z_0(1 + \sqrt{\epsilon_r})} \quad (3-19.a)$$

$$\mathbf{E}_{r,in}(t) = -\mathbf{E}_b \frac{\sigma_s(t)Z_0}{\sigma_s(t)Z_0 + (1 + \sqrt{\epsilon_r})} \quad (3-19.b)$$

Nous avons déterminé l'expression du courant surfacique et du champ électrique rentrant rayonné, $\mathbf{J}_s(t)$ et $\mathbf{E}_{r,in}(t)$, dans le cas d'une illumination qui est normale à la surface de l'antenne. Cette expression est identique à celle qui a été déterminée par Darrow *et al* [77].

3-1-2 : Calcul du champ électrique THz crête

À partir des équations (3-19.a) et (3-19.b), nous pouvons exprimer le courant de surface maximum et le champ électrique THz crête rayonné se propageant à l'intérieur de l'antenne [77] :

$$\mathbf{J}_{s,max} = \mathbf{E}_b \frac{(1 + \sqrt{\epsilon_r})\sigma_{s,max}}{\sigma_{s,max}Z_0 + (1 + \sqrt{\epsilon_r})} \quad (3.20.a)$$

$$\mathbf{E}_{r,in,max} = -\mathbf{E}_b \frac{\sigma_{s,max}Z_0}{\sigma_{s,max}Z_0 + (1 + \sqrt{\epsilon_r})} \quad (3.20.b)$$

où $\sigma_{s,max}$ est l'amplitude maximale de la conductivité surfacique et est exprimée telle que [77] :

$$\sigma_{s,max} = \frac{e(1-R)\mu F_{opt}}{h\nu} \quad (3.21)$$

F_{opt} est la fluence de l'antenne. Les équations (3.20.b) et (3.21) prédisent que lorsque la fluence (et donc par conséquent la conductivité surfacique) devient grande, nous avons l'amplitude du champ électrique THz crête qui approche l'amplitude du champ électrique

de polarisation de l'antenne \mathbf{E}_b . Il en résulte alors un écrantage du champ électrique de polarisation de l'antenne \mathbf{E}_b par l'impulsion THz. Ce principe va être développé plus en détails dans la section suivante.

En insérant l'équation (3.21) dans l'équation (3.20.b), nous obtenons une nouvelle expression pour le champ électrique THz crête rayonné en champ proche par des APGOs, en fonction de la fluence [162, 163]:

$$\begin{aligned} E_{r,in,max} &= -E_b \frac{Z_0 h \nu}{e \mu (1-R)} \frac{F_{opt}}{F_{opt} + \frac{h \nu (1 + \sqrt{\epsilon_r})}{e \mu Z_0 (1-R)}} \\ &= -E_b B \frac{F_{opt}}{F_{opt} + F_{sat}} \end{aligned} \quad (3.22)$$

où F_{sat} est la fluence de saturation et est exprimée par :

$$F_{sat} = \frac{h \nu (\sqrt{\epsilon_r} + 1)}{e (1-R) \mu Z_0} \quad (3.23)$$

L'expression de la constante B est :

$$B = \frac{Z_0 h \nu}{e \mu (1-R)} \quad (3.24)$$

L'expression (3.22) est plus couramment utilisée que l'expression (3.20.b) du fait qu'elle fait appel à des grandeurs physiques, telles que la fluence qui est facilement mesurable. À partir des équations de la jauge de Coulomb, le champ électrique rayonné $\mathbf{E}_r(\mathbf{r},t)$, fonction du temps t et du déplacement \mathbf{r} depuis le centre de l'antenne, est donné par [164]:

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r},t) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{\partial}{\partial t} \int \frac{\mathbf{J}_s(\mathbf{r}', t - (|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/c))}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} da' \quad (3.25)$$

En champ lointain, nous avons $|\mathbf{r}'| \ll |\mathbf{r}|$, nous pouvons donc faire l'approximation suivante :

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| = r \left(1 - \frac{\mathbf{n} \cdot \mathbf{r}'}{r} \right) \approx r \quad (3.26)$$

Comme on présume que l'espace inter-électrode est illuminé de façon uniforme par l'impulsion laser, on peut également supposer que le courant surfacique \mathbf{J}_s est constant en tout point de la surface de l'émetteur photo-excité. Dans ce cas, on écrit le champ électrique rayonné tel que :

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{A}{\sqrt{x^2 + y^2 + z^2}} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_s \left(t - \frac{r}{c} \right) \quad (3.27)$$

où A est la surface illuminée de l'antenne photoconductrice. Pour une émission qui se propage selon l'axe z (i.e $x=y=0$) et $t \rightarrow t+z/c$, l'équation (3.27) est réduite à :

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{A}{z} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_s(t) \quad (3.28)$$

D'autre part, nous avons le courant surfacique, $\mathbf{J}_s(t)$, qui atteint son maximum dans un temps comparable à la durée, τ_p , de l'impulsion THz rayonné.. De ce fait, on peut supposer :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_s \right)_{\max} \cong \frac{\mathbf{J}_{s,\max}}{\tau_p} \quad (3.29)$$

En utilisant l'équation (3.20.a), nous pouvons maintenant déterminer l'expression du champ électrique THz crête, en champ lointain, généré par une APCGO [77]:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{r,loin,\max}(z) &= -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{A}{z} \frac{\mathbf{J}_{s,\max}}{\tau_p} \\ &= \left| \mathbf{E}_b \frac{\sigma_{s,\max}}{\sigma_{s,\max} Z_0 + (1 + \sqrt{\epsilon_r})} * \frac{(1 + \sqrt{\epsilon_r}) A}{4\pi\epsilon_0 c^2 \tau_p z} \right| \end{aligned} \quad (3.30)$$

À partir de l'équation (3.30), nous pouvons faire deux constatations :

- On rappelle que le pic de la conductivité de surface, $\sigma_{s,\max}$, a une dépendance linéaire vis-à-vis de la fluence F_{opt} . On peut remarquer que l'équation (3.30) prédit que le champ électrique THz généré en champ lointain sature, pour un champ électrique de polarisation donné, lorsque nous excitons l'antenne avec une haute fluence. Ce phénomène sera abordé plus en détails un peu plus tard dans l'écriture de la thèse.
- On peut également remarquer que l'équation (3.30) prédit que le champ électrique THz rayonné en champ lointain est linéairement proportionnel au champ de polarisation de l'antenne \mathbf{E}_b . Ainsi, afin d'obtenir des valeurs de champs

électriques THz crêtes de grandes amplitudes, il suffit d'appliquer la plus grande tension possible aux bornes des électrodes.

3-1-3 : Calcul de la puissance moyenne THz rayonnée

À partir des équations (3-21), on voit que $\sigma_s(t) \propto F_{opt}$. Tant que l'antenne est illuminée par de faibles fluences ($F_{opt} \leq F_{sat}$), l'équation (3-19-a) peut être approximer par :

$$\mathbf{J}_s(t) \cong \sigma_s(t)\mathbf{E}_b = e\mu n(t)\mathbf{E}_b \quad (3-31)$$

où $n(t)$ est déterminée par l'équation (3-18). Comme l'impulsion laser ultracourte qui illumine la surface de l'antenne à un profil gaussien, on peut approximer l'impulsion laser par une impulsion carrée dont l'équation est [81] :

$$g(t') = \begin{cases} 1, & 0 < t < T_{imp} \\ 0 & \text{ailleurs} \end{cases} \quad (3-32)$$

où T_{imp} est la durée de l'impulsion laser. À partir de l'équation (3-18), la valeur de la densité de porteurs de charges en fonction du temps est donnée par [81] :

$$n(t) = \begin{cases} G_o \tau_c \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_c}} \right), & 0 < t < T_{imp} \\ G_o \tau_c e^{-\frac{t}{\tau_c}} & t > T_{imp} \end{cases} \quad (3-33)$$

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = \begin{cases} G_o e^{-\frac{t}{\tau_c}}, & 0 < t < T_{imp} \\ -G_o e^{-\frac{t}{\tau_c}} & t > T_{imp} \end{cases} \quad (3-34)$$

En prenant la moyenne temporelle de $\frac{\partial n(t)}{\partial t}$ sur une période du laser, on obtient :

$$\left\langle \left(\frac{\partial n(t)}{\partial t} \right)^2 \right\rangle = \frac{1}{T_{rep}} \int_0^{T_{rep}} \left(\frac{\partial n(t)}{\partial t} \right)^2 dt \approx \frac{G_o^2 \tau_c}{T_{rep}^2} \quad (3-35)$$

où T_{rep} est la période entre deux impulsions laser. On suppose également que $T_{rep} \gg \tau_c$ et que $T_{rep} \gg T_{imp}$. À partir de l'équation (3-28), le champ électrique THz en champ lointain est exprimé par :

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{r}, t) \cong -\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{A}{z} e\mu\mathbf{E}_b \frac{\partial}{\partial t} n(t) \quad (3-36)$$

À partir des équations (3-35) et (3-36) et en utilisant le théorème de Poynting [165], la puissance THz rayonnée par unité de surface est exprimée par :

$$\langle \mathbf{P} \rangle = \frac{c\epsilon_0}{2} \langle \mathbf{E}_r^2 \rangle \cong \left(\frac{c\epsilon_0}{2} \right) \left(\frac{e\mu\mathbf{E}_b}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{A}{z} \right)^2 \left\langle \left(\frac{\partial n(t)}{\partial t} \right)^2 \right\rangle = \frac{e^2 \mu^2 \mathbf{E}_b^2 A^2}{32n^2 z^2 \epsilon_0 c^3} \left(\frac{G_0^2 \tau_c}{2T_{rep}} \right) \quad (3-37)$$

Ainsi, nous pouvons voir à partir de l'équation (3-37), que la puissance THz rayonnée par unité de surface est proportionnelle au carré du champ électrique de polarisation. Il est donc très important d'appliquer la plus haute tension possible pour polariser l'antenne afin d'obtenir une source THz de haute puissance.

3-1-4 La loi d'échelle sur la puissance THz rayonnée en fonction de la surface photoexcitée

Dans cette section, nous allons déterminer les équations qui permettent d'évaluer la puissance THz rayonnée en fonction de la distance inter électrode (ou en fonction de l'aire illuminée). La puissance THz moyenne peut être déterminée à partir des équations (3-37) par :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{avg} &= \langle \mathbf{P} \rangle \mathbf{A}' = \left(\frac{e^2 \mu^2 \mathbf{E}_b^2 A^2}{32\pi^2 z^2 \epsilon_0 c^3} \right) \left(\frac{G_0^2 \tau_c}{2T_{rep}} \right) \mathbf{A}' \\ &= \left(\frac{e^2 \mu^2 \mathbf{E}_b^2}{32\pi^2 z^2 \epsilon_0 c^3} \right) \left(\frac{(1-R)P_{opt}}{h\nu} \right)^2 \left(\frac{A}{A_{opt}} \right)^2 \left(\frac{\tau_c}{2T_{rep}} \right) \mathbf{A}' \end{aligned} \quad (3-38)$$

où \mathbf{A}' est la surface du faisceau THz en champ lointain. Dans le cas des APCGOs, nous pouvons supposer que le faisceau se propage sans subir de divergence. Ainsi, nous supposons $\mathbf{A}' = A$. D'autre part, nous allons considérer un faisceau optique dont les dimensions couvrent parfaitement les dimensions de l'antenne. Ainsi, nous approximations $A = A_{opt}$. L'équation (3-38) devient donc :

$$\mathbf{P}_{\text{avg}} \approx \left(\frac{e^2 \mu^2 E_b^2}{32\pi^2 z^2 \varepsilon_0 c^3} \right) \left(\frac{(1-R)P_{\text{opt}}}{h\nu} \right)^2 \left(\frac{\tau_c}{2T_{\text{rep}}} \right) A \quad (3-39)$$

Donc si le champ électrique de polarisation E_b et la puissance optique de l'impulsion laser sont constants, alors la puissance moyenne THz rayonnée par une APCGO augmente de façon linéaire avec la surface de l'antenne.

3-2 : Études des caractéristiques d'émission d'ondes THz par des APCGOs de GaAs et les effets de saturation

Dans ce paragraphe, nous allons étudier le comportement du champ électrique THz généré par une APCGO de GaAs. Nous allons nous intéresser tout particulièrement aux limites et à la saturation du champ électrique THz rayonné par une antenne de GaAs de grande ouverture. Nous allons donc démontrer la loi d'échelle sur le champ électrique THz rayonné en fonction de la fluence et du champ de polarisation. Ces résultats expérimentaux ont pour but unique d'illustrer la théorie de la génération THz par des APCGOs

La réalisation de ces expériences a permis de valider les différentes lois d'échelle régissant les APGOs lors de la génération d'ondes THz. Il est à noter que les lois d'échelle sont critiques pour définir le motif et les performances des APCGOs de ZnSe. Il est donc très important de bien comprendre le comportement des APCGOs de GaAs pour comparer leurs performances à celles des APCGOs de ZnSe.

Les cristaux de GaAs formé à basse température et semi-isolants sont les cristaux les plus couramment utilisés pour la génération d'ondes THz par des antennes PC. Ces cristaux ont une largeur de bande interdite de 1.44 eV. Cette valeur est juste inférieure à l'énergie des photons générés à la longueur d'onde de 800 nm. Par conséquent, le substrat absorbe les photons de l'impulsion laser provenant d'un laser amplifié Ti :Saphir. Le cristal de GaAs, semi-isolant et non dopé, qui a servi de substrat lors des expériences, a une épaisseur de 0.5 mm (acheté chez El Cat) et une résistivité supérieure à $1 \times 10^7 \Omega \cdot \text{cm}$. L'orientation du cristal (100) a été choisie afin de minimiser les effets non linéaires et

tout particulièrement la génération d'ondes THz par redressement optique [94]. Des électrodes de 2 mm de large et ayant une distance inter-électrodes de 1 mm ont été peintes avec de la peinture d'argent. L'antenne de GaAs est donc considérée comme une APCGO. Il est à noter que des contacts de type Ni-Au-Ge-Au auraient permis une très grande augmentation de la radiation des ondes THz. La source de tension DC utilisée pour polariser les antennes est une source Stanford Research (5 kV-25 W).

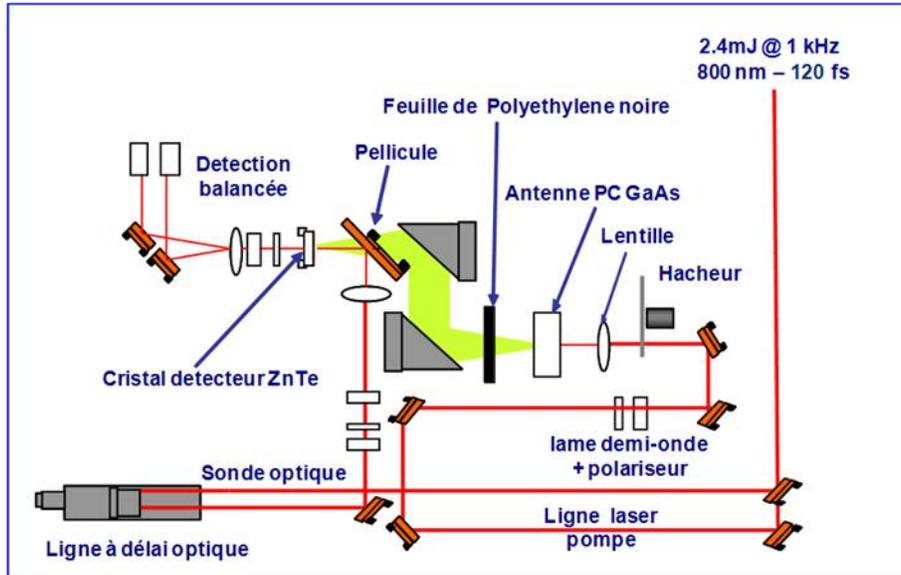


Figure 3-2: Dispositif expérimental pompe sonde permettant la génération et la détection d'ondes THz par des APCGOs de GAAs.

Le montage expérimental utilisé est une expérience pompe-sonde couramment utilisé [162]. La source laser est un oscillateur Ti : Saphir suivit d'un amplificateur régénératif générant des impulsions de 120 fs et de 2.4 mJ. Une lame séparatrice permet de diviser le faisceau en deux pour avoir la ligne pompe (pour exciter l'antenne) et la ligne sonde (détection THz). La détection THz a été réalisée par échantillonnage électro-optique à l'aide d'un cristal ZnTe orienté (110) ayant une épaisseur de 1 mm. La technique utilisée est identique à celle décrite dans la section 2-2-1. La figure 3.2 illustre le dispositif expérimental que nous avons utilisé.

3-2-1 : Dépendance du rayonnement THz en fonction de la fluence

La figure 3.3 montre la variation du champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de GaAs semi-insolant, polarisée par trois valeurs de champs électriques (1.79, 3.58 et 5.37 kV/cm), en fonction de la fluence. Les points sont les valeurs expérimentales. Les courbes ont été obtenues par une procédure d'ajustement de paramètres à partir de l'équation (3.22). La fluence de saturation F_{sat} , a été déterminée, pour les trois courbes, à $10.82 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.

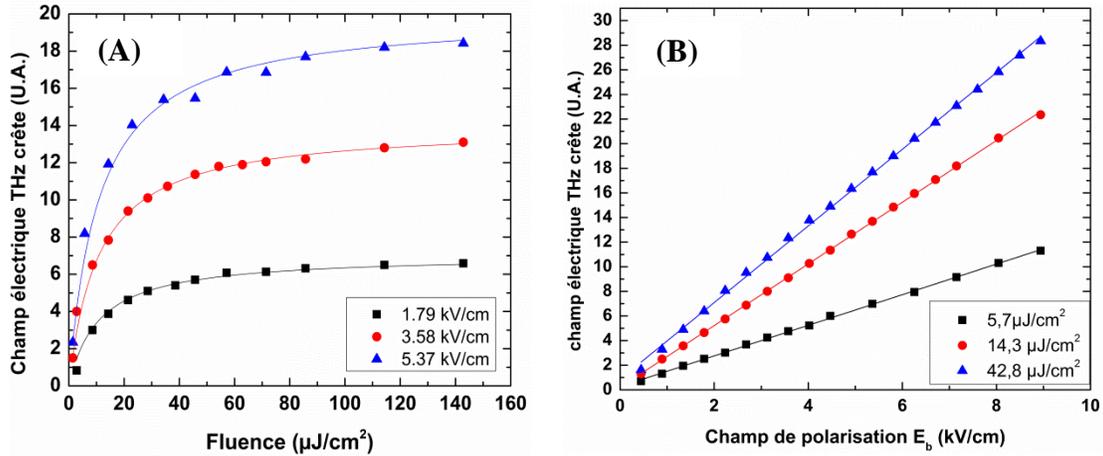


Figure 3-3 : Variation du champ électrique THz crête généré par une antenne de GaAs de grande ouverture (A) en fonction de la fluence et pour trois valeurs de champs de polarisation et (B) en fonction du champ de polarisation et pour trois valeurs de fluence.

On observe que la valeur du champ électrique THz crête augmente quasi linéairement avec la fluence lorsque celle-ci est faible. En revanche, pour des grandes valeurs de fluence ($F \gg F_{\text{sat}}$), nous observons une saturation du champ électrique THz. Cette saturation est observée pour toutes les valeurs de champ électrique de polarisation de l'antenne. Ce phénomène est appelé "l'écrantage" du champ de polarisation par le champ électrique THz (THz screening en anglais). Cela peut être expliqué par le fait que le champ électrique THz rayonné et le champ électrique de polarisation de l'antenne ont deux directions opposées (voir Figure. 3.1). Ainsi, pour un champ de polarisation donné, l'amplitude du champ électrique THz va augmenter en augmentant la fluence optique. Cela est vrai pour des fluences petites vis-à-vis de la fluence de saturation. Cependant, lorsque l'amplitude du champ électrique atteint une grandeur comparable à celle du champ électrique de polarisation, ce dernier va être écranté par le champ électrique THz généré. Il en résulte alors une saturation du champ électrique THz [166].

Ce type de comportement a été étudié intensivement sur des APCGOs. En effet, l'écrantage du champ de polarisation est le seul phénomène de saturation dans les APCGO. Contrairement aux antennes micro-dipôles, les APCGOs ne subissent pas l'écrantage du champ de polarisation par la séparation des charges libres. La séparation des charges (les trous et les électrons) qui est provoquée par l'action du champ de polarisation, crée un champ statique de Coulomb. Ce champ statique, qui est en direction opposée au champ de polarisation de l'antenne, écrante ce dernier et provoque la saturation du champ électrique THz [167]. Il est très difficile de quantifier expérimentalement l'effet du champ statique de Coulomb sur le champ électrique THz. En revanche, à l'aide d'une simulation Monte Carlo, Kim et al ont déterminé qu'à partir d'une distance inter-électrode de 100 μm , on pouvait négliger l'effet du champ statique de Coulomb sur le champ électrique THz [92]. Dans le cas des APCGOs, il a été démontré que le champ statique de Coulomb apparaît bien après la génération de l'impulsion THz [166]. Le mécanisme d'écrantage coulombien peut donc être négligé dans les APCGOs.

Des études théoriques ont été menées pour évaluer l'importance de l'écrantage du champ de polarisation sur le champ électrique THz dans des APCGOs de GaAs [168,169]. Ils démontrèrent que le comportement du champ électrique THz en fonction de la fluence est identique à celui que l'on observe sur la figure 3.3. D'autre part, Rodriguez et al ont comparé, à l'aide d'une simulation, l'évolution du champ électrique THz généré par une APCGO en fonction de la fluence en présence et en absence de l'écrantage du champ de polarisation. Il a été démontré, qu'en absence d'écrantage du champ de polarisation, que la variation du champ électrique THz en fonction de la fluence est linéaire et n'observe aucune saturation [168].

Enfin, la saturation du champ électrique THz, généré par des APCGOs de GaAs, InP et RDSOS (Silicium sur Saphir endommagé par bombardement ionique ou Radiation Damaged Silicon on Sapphire en anglais), a été intensivement étudiée expérimentalement [77, 78, 163, 168-172]. En comparant nos résultats obtenus à partir d'expériences sur des APCGOs de GaAs semi-isolant aux résultats qui ont été obtenus

également sur des APGOs de GaAs semi-isolant mais également sur tous les autres types d'antennes, nous pouvons en déduire quelques généralités:

- L'écrantage du champ de polarisation de l'antenne apparaît sur tout type de substrat lorsqu'ils sont excités par une impulsion laser ayant une énergie de photon, $h\nu$, qui est supérieure à la largeur de bande interdite du semi-conducteur. En effet, ce phénomène a été observé expérimentalement sur des semi-conducteurs de GaAs, InP et RDSOS [77, 78, 163, 170]. La saturation du champ électrique THz a été observée dans tous les cas lorsque l'on excite l'antenne avec de fortes fluences. L'ajustement de courbe fut toujours réalisé à l'aide de l'équation (3.22)
- L'écrantage du champ de polarisation de l'antenne est un phénomène qui apparaît pour toutes les valeurs de champ de polarisation de l'antenne. En effet, ce phénomène a été démontré sur des APCGOs de InP et de GaAs polarisés par des champs électriques allant de 2kV/cm jusqu'à 12 kV/cm [78, 171]. D'autre part, il a été également observé expérimentalement que la fluence de saturation, F_{sat} , est indépendante du champ de polarisation de l'antenne.

3-2-2 : Dépendance du rayonnement THz en fonction du champ de polarisation

La figure 3.3 (B) montre la variation de la valeur du champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de GaAs semi-isolant en fonction du champ de polarisation de l'antenne. Les points sont les valeurs expérimentales alors que les courbes ont été obtenues par un ajustement de courbe linéaire. Cette étude a été réalisée pour trois valeurs de fluences optiques (5.7, 14.3 et 42.8 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$). Ces valeurs ont été choisies de façon à être inférieures, approximativement égales et supérieures à la fluence de saturation, F_{sat} , de l'antenne (10.82 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$). Nous observons une dépendance linéaire du champ électrique THz en fonction du champ électrique de polarisation et ce pour les trois valeurs de fluence optique. La valeur maximale de champ de polarisation est de 10

kV/cm ce qui représente la valeur de la rigidité diélectrique du GaAs lorsqu'il est utilisé comme APCGO.

Contrairement à l'étude précédente, portant sur la variation du champ électrique THz en fonction de la fluence optique, nous n'observons aucune saturation du champ électrique THz crête. La tension de polarisation de l'antenne a été augmentée jusqu'à 1000 V (pour un champ électrique respectif de 10 kV/cm). Les différentes droites ont été ajustées linéairement et les pentes trouvées sont de 1, 2 et 2.5 pour les fluences optiques de 5.7, 14.3 et 42.8 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$. On constate que la pente du graphique double lorsque l'on augmente la fluence optique de 5.7 à 14.3 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$. Cependant, l'augmentation de la pente est beaucoup plus faible lorsque l'on augmente la fluence optique de 14.3 à 42.8 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$. Ces résultats mettent en évidence qu'il est avantageux de travailler en dehors du régime d'écrantage THz. Le même type d'étude a été réalisé sur des APCGOs de GaAs semi-isolant [77, 78, 163], de InP [77, 78] et de RDSOS [77, 170]. Toutes ces études ont montré que le champ électrique THz augmente de façon linéaire en fonction du champ de polarisation. La seule limite physique est la tension critique de l'antenne à partir de laquelle l'antenne subit des dommages qui peuvent aller jusqu'à la destruction de celle-ci.

À partir d'un champ de polarisation de 8 kV/cm, Nous avons constaté des phénomènes tels que les décharges Corona, un échauffement thermique de l'antenne pouvant aller jusqu'à la destruction complète de l'antenne si nous n'arrêtons pas la tension et/ou l'excitation optique. Avant la destruction complète de l'antenne, ces phénomènes provoquent une diminution de la valeur de champ électrique THz dans le temps. Par conséquent, ce sont ces phénomènes physiques qui déterminent la tension de claquage de l'antenne et qui limitent la tension maximale que l'on peut appliquer à l'antenne. Il est à noter que la valeur maximale de champ électrique que nous avons pu appliquer aux bornes de l'antenne est nettement inférieure à la valeur de la rigidité diélectrique du GaAs semi-isolant (400 kV/cm [173]). Cependant, il a été observé expérimentalement que la valeur de rigidité diélectrique sur des commutateurs photoconducteurs de GaAs semi-isolants illuminés par une impulsion laser à 800 nm est de l'ordre de 20 kV/cm [174]. La fluence optique utilisée sur des commutateurs de tensions est nettement inférieure à celle utilisée par des antennes PC pour la génération d'ondes THz. La tension critique maximale que l'on peut appliquer à l'antenne dépend

donc très fortement de la fluence que nous utilisons. D'autres paramètres tels que la longueur d'onde d'excitation, la durée d'impulsion laser, le taux de répétition du laser, le type de tension appliqué (DC, AC, à impulsion) et le substrat influencent la valeur de la tension maximale que l'on pourra appliquer à l'antenne. Pour une APCGO de GaAs semi-isolant, polarisée par une source de tension DC, illuminée par une impulsion laser à la longueur d'onde de 800 nm avec une fluence optique égale à la fluence de saturation, la valeur du champ de polarisation critique de l'antenne est de l'ordre de 10 kV/cm. Cependant, si nous voulons une utilisation prolongée de l'antenne dans le temps, il est conseillé de ne pas dépasser la valeur de champ de polarisation de 6 kV/cm.

3-3 : Comparaison de différents matériaux pour la réalisation des antennes photoconductrices

Dans cette partie, nous allons comparer différents matériaux qui peuvent être ou qui ont été utilisés comme substrats pour la génération d'ondes THz par des antennes PC. Le tableau 2-1 liste les différents paramètres des matériaux. Nous y trouvons : La rigidité diélectrique E_c , la largeur de bande interdite E_g , la mobilité des porteurs de charge μ , le temps de vie des porteurs de charge τ_c , la résistivité d'obscurité ρ et la conductivité thermique du matériau K .

On a vu dans le chapitre 2, que le RD-SoS, l'InP et le GaAs ont été les premiers matériaux utilisés pour la génération d'ondes THz par les antennes PC. À partir du tableau 3-1, on comprend les raisons pour lesquelles les différents groupes ont utilisé ces matériaux. Leur tension de claquage est d'environ 10 kV/cm et ils ont une largeur de bande interdite inférieure à 1.55 eV qui sont les deux conditions essentielles à la génération d'ondes THz par les antennes PC.

Cependant, il a été démontré que le cristal de GaAs est un meilleur choix que les deux autres du fait de sa mobilité des porteurs de charge qui est grandement supérieure. En effet, l'équation (3-22) prédit qu'un matériau avec une faible fluence de saturation (et donc inversement une grande mobilité des porteurs de charges) va avoir le champ électrique THz qui va saturer plus rapidement lorsque l'on augmentera la fluence optique qu'un matériau possédant une grande fluence de saturation. Ainsi, si nous disposons de

peu d'énergie optique, quand nous travaillons avec un oscillateur Ti :Saphir par exemple, il est important de travailler avec des matériaux ayant une très grande mobilité des charges. Enfin, le GaAs a une très grande résistivité d'obscurité ($10^6 \Omega/\text{cm}$) ce qui permet d'appliquer de grandes valeurs de champ de polarisation (souvent généré par une tension DC) et ce sans avoir une haute valeur de courant d'obscurité responsable de l'échauffement thermique de l'antenne. Un échauffement limité permet de réduire les risques d'endommagement de l'antenne et d'augmenter sa durée de vie (quelques mois d'utilisation).

Cristal	E_c (kV/cm)	E_g (eV)	μ (cm ² /V.s)	τ_c (ps)	ρ (Ω/cm)	K (W/cmK)
GaAs S.I.	10	1.44	9500	2-10	10^6 - 10^8	0.27
GaAs B.T.	>10	1.44	150-200	0.3-1	10^6	0.27
As : GaAs	20	1.44	>100	0.25	10^5	0.27
InP S.I.	12	1.34	200	50-100	10^6	0.68
Diamant	2000	5.46	2800		10^{11} - 10^{18}	25
ZnO	élevé	3.34	130-150	10-50	10^5 - 10^7	0.6
GaN	200	3.40	1250	≥ 150	$\geq 10^8$	1.3
ZnSe_{mono}	60	2.67	300-600	≥ 500	10^{12}	0.18
ZnSe_{poly}	80	2.67	30-300	≥ 500	10^{12}	0.18
RD-SoS	12	1.10	30	0.6	10^7	0.15

Tableau 3-1: Paramètres des matériaux semi-conducteurs qui ont été testés pour la fabrication d'antennes photoconductrices utilisées pour la génération d'ondes THz [175-179]

3-3-1 : L'influence du temps de vie des porteurs de charge

Il y a un paramètre du tableau 3-1 qui n'a pas été abordé. Il s'agit du temps de vie des porteurs de charge. Nous avons évoqué dans le chapitre 2-2-2, l'importance

d'effectuer la détection d'ondes THz par échantillonnage photoconductif avec une antenne qui a un très court temps de vie des porteurs de charge. Cela permet notamment d'augmenter la largeur du spectre THz détecté. Pour les antennes émettrices, le temps de vie des porteurs de charge joue également un rôle important sur l'émission d'ondes THz. Par exemple, un temps de vie des porteurs de charge ultracourt (<1 ps) va changer la forme temporelle de l'impulsion THz. On a vu que le champ électrique THz en champ lointain est proportionnel à la dérivée temporelle du courant surfacique (équation (2-1) et (3-25)). Un court temps de vie des porteurs de charge va induire une décroissance très rapide du courant ce qui se traduira dans la forme temporelle du champ électrique THz par une augmentation de la partie ayant une polarité négative [180]. La figure 3-4, tirée des expériences de Park *et al*, illustre ce principe [82]. Park *et al* ont comparé les formes temporelles des impulsions THz générées par une APCGO de GaAs fait à basse température (BT) et par une APCGO de GaAs semi isolant (SI). Il a été démontré que la partie négative du champ électrique THz était plus prononcée lorsque la génération d'ondes THz est réalisée avec une antenne de GaAs BT dont le temps de vie des porteurs de charge est de 0.35 ps. Lorsque l'impulsion THz est générée par une antenne de GaAs semi-isolant, dont le temps de vie des charges est de 5 ps, la partie négative de l'impulsion devient très petite mais très longue en durée.

D'autre part, il a été démontré par des simulations numériques que lorsque le temps de vie des porteurs de charge est inférieur à 1 ps, l'amplitude du champ électrique crête rayonné en champ lointain et la durée de l'impulsion THz diminuent [181-183]. La figure 3-4 illustre également ce phénomène. Les conséquences de la réduction de la durée de l'impulsion THz est un spectre plus large. En revanche, la réduction de l'amplitude du de champ électrique THz crête est une chose que nous voulons éviter afin de réaliser des sources de radiations THz de hautes intensités.

Il y a un autre aspect que la réduction de la durée de vie des porteurs de charge entraîne : la diminution de la moyenne du photocourant. Cette baisse de photocourant va entraîner une diminution de l'échauffement thermique de l'antenne par effet joule. Par conséquent, un matériau avec un très court temps de vie des charges va supporter des valeurs de champs de polarisation supérieures. Ainsi, la diminution du champ électrique

THz crête subie par les matériaux ayant des temps de vie de charge très courts est compensée voir même augmentée par l'augmentation du champ de polarisation de l'antenne.

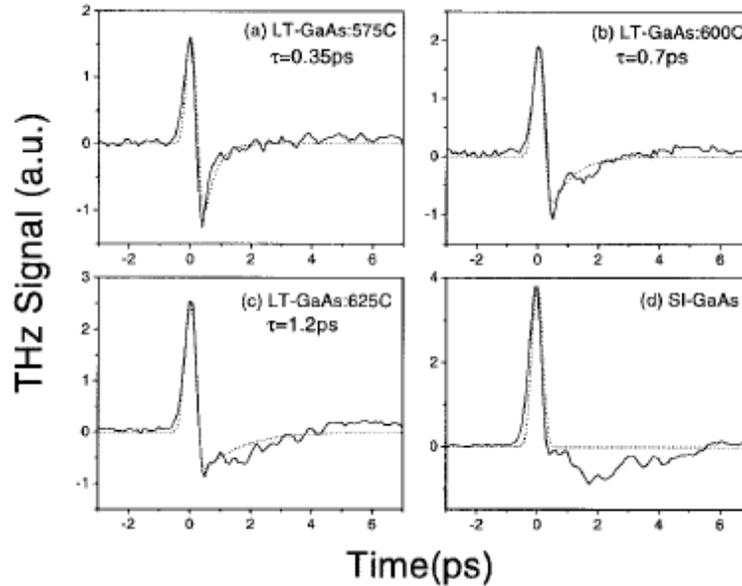


Figure 3-4: Illustration de l'influence des temps de vie des porteurs de charge sur la forme temporelle des impulsions THz générées par des antennes photoconductrices de grande ouverture de GaAs BT et de GaAs SI. Les durées de vie des porteurs de charge sont 0.35 (a), 0.7 (b), 1.2 (c) et environ 5 ps (d) [82]

Le GaAs basse température est un matériau avec un très court temps de vie des charges. Cependant, ses caractéristiques sont difficilement reproductibles d'un substrat de GaAs basse température à un autre. La qualité du substrat dépend très fortement de la température de croissance et de la qualité du recuit thermique. Il existe une autre technique, plus facile à contrôler, qui réalise des cristaux avec de très faibles temps de vie. Il s'agit de la technique d'implantation ionique. Cette technique consiste à implanter des ions d'un matériau dans un autre substrat. À l'aide de cette technique, plusieurs groupes de recherche ont implanté des matériaux comme l'arséniure, l'oxygène, l'azote et le fer afin d'obtenir des cristaux de GaAs avec de très brefs temps de vie des porteurs de charges. Ils ont comparé les performances des antennes THz fabriquées à partir des cristaux de GaAs implantés à une antenne de GaAs SI [184-186]. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec de l'oxygène et de l'arséniure. Les conclusions furent que grâce au

très court temps de vie des charges au sein du cristal, les antennes supportaient des tensions de polarisation supérieures à celle que les antennes de GaAs non implanté pouvaient supporter. Finalement, ces antennes implantées obtenaient des intensités de rayonnement THz supérieures à celles d'une antenne de GaAs SI.

3-3-2 : L'influence de la rigidité diélectrique pour la génération d'ondes THz de hautes intensités

Nous avons étudié dans la section ci-dessus, l'influence qu'un bref temps de vie des porteurs de charge peut avoir sur la forme temporelle de l'impulsion THz. Cependant, lorsque le temps de vie des charges est très long (supérieur à 20 ps), alors la variation du temps de vie des charges influence très peu la forme temporelle de l'impulsion THz.

Ainsi, lorsque nous travaillons avec des matériaux possédant un long temps de vie des charges, le moyen le plus simple et le plus efficace pour augmenter l'intensité des sources THz est d'appliquer le plus haut champ de polarisation. Nous avons vu par l'équation (3-36) et démontré par les expériences à la section (3-5-2) que le champ électrique THz crête est linéairement proportionnel au champ de polarisation et que le champ électrique THz ne subit aucune saturation. Ainsi, la limite d'augmentation du champ de polarisation est définie par la tension de claquage de l'antenne. La tension de claquage de l'antenne est tout simplement reliée à la rigidité diélectrique du matériau par la relation suivante :

$$V_c = E_c \times d_e \quad (3-40)$$

où d_e est la distance inter-électrode de l'antenne. Afin de développer des sources THz de hautes intensités, des groupes de recherche ont testé des cristaux semi-conducteurs de grandes largeurs de bande interdite. Ce type de semi-conducteur a généralement une très grande tension de claquage. Le changement de l'état semi-conducteur à l'état conducteur d'un cristal semi-conducteur sous l'effet d'un champ électrique est le résultat de l'ionisation par impact électronique. Lorsqu'un électron libre est accéléré par un champ électrique, il se déplace et gagne de l'énergie cinétique. Lorsque cette énergie est suffisamment grande (supérieure à l'énergie de la largeur de bande interdite), l'électron

peut exciter un autre électron de la bande de valence en lui transférant suffisamment d'énergie pour le rendre libre. Par la suite, ce nouvel électron est lui-même accéléré sous l'action du champ électrique et peut à son tour créer l'ionisation par impact électronique. Il se crée alors un phénomène d'avalanche qui va briser l'état semi-conducteur du cristal [187].

Appartenant aux semi-conducteurs ayant une grande largeur de bande interdite, le diamant est celui qui possède la plus grande rigidité diélectrique. À partir des valeurs des paramètres listés dans le tableau 3-1, on peut voir que le diamant a une grande mobilité des porteurs de charge, une grande résistivité et une très haute conduction thermique. Par conséquent, le diamant est un excellent candidat à la génération d'ondes THz par des APCGOs. Yoneda *et al* ont démontré la génération d'ondes THz en utilisant des APCGOs de diamant polycristallin [179]. Le diamant polycristallin peut être fabriqué par un procédé de dépôt chimique en phase vapeur. Une antenne à structure interdigitale fut construite sur une surface de 3×3 cm. La distance inter-électrode était de $20 \mu\text{m}$. Ils ont démontré que lorsque l'antenne est polarisée par un champ de 100 kV/cm , l'énergie THz par unité de surface rayonnée par l'antenne était supérieure à l'énergie qui est rayonnée par une antenne de GaAs polarisée par un champ de 10 kV/cm ($0.1 \mu\text{J/cm}^2$ contre $0.07 \mu\text{J/cm}^2$). En revanche, du fait de sa très grande largeur de bande interdite (5.5 eV), un laser Kr*Fa été utilisé pour illuminer la surface de l'antenne. Ce laser a une longueur d'onde de 248 nm , une impulsion de 10 mJ avec une durée de 500 fs . En conséquence, la durée d'impulsion THz était relativement longue (1.5 ps) ce qui limitait la largeur du spectre THz.

D'autres cristaux semi-conducteurs ont fait l'objet de recherches pour démontrer leur potentiel à générer des ondes THz intenses par des APCGOs. Par exemple, le GaN (Nitrure de Galium) et le ZnO (oxyde de zinc) [176, 177, 188] ont également été testés. Tout aussi prometteur que le diamant, le GaN a d'excellentes propriétés pour générer des ondes THz de hautes intensités. Cependant, il a deux inconvénients majeurs. Premièrement, il est très difficile de fabriquer des cristaux de GaN ayant de grandes dimensions. D'autre part, la largeur de bande interdite de 3.4 eV a forcé les utilisateurs à illuminer l'antenne avec la troisième harmonique d'un laser amplifié Ti :Saphir L'énergie

des photons émis à la longueur d'onde de 266 nm est de 4.66 eV. Cette énergie est suffisante pour permettre aux charges libres de diffuser vers les vallées latérales de la bande de conduction et notamment la vallée X qui a une largeur de bande, E_X , de 4.6 eV. La photoexcitation d'un semi-conducteur avec un excès d'énergie entraîne la production d'une grande population de phonons chauds hors équilibre. Dans cette situation, les charges libres ne peuvent pas relaxer avant que la population de phonons chauds relaxe [189]. La conséquence sur la forme temporelle de l'impulsion THz est une augmentation de la durée d'impulsion. Heyman *et al* ont démontré ce phénomène en générant une impulsion THz en utilisant une antenne de GaAs excitée à la longueur d'onde de 400 nm [190]. Pour une antenne de GaN excitée à la longueur d'onde de 266 nm, la durée de l'impulsion THz est d'environ 8 ps ce qui limite très fortement la largeur du spectre THz détecté [176].

Le ZnO a une largeur de bande interdite qui est juste un peu supérieure à l'énergie des photons émis par la seconde harmonique d'un laser Ti :Saphir. La génération d'ondes THz a été démontrée sur des antennes de ZnO excitée par un laser UV. Il a été observé une forte saturation de l'intensité THz rayonnée à partir de 800 V/cm [177]. Plus récemment, il a été démontré que la puissance THz rayonnée par des antennes de ZnO ne saturait pas pour des valeurs de champ de polarisation allant jusqu'à 14 kV/cm. L'antenne a été fabriquée à partir de la déposition d'un film de ZnO sur du saphir [188].

À l'INRS-EMT, nous disposons au sein du laboratoire LSF (Laboratoire de Sources Femtoseconde) d'une gamme de laser Ti : Saphir de très grandes puissances crêtes [191]. Nous avons vu que certains cristaux semi-conducteurs avaient d'excellentes propriétés pour la génération d'ondes THz à partir d'APCGOs. Cependant, leurs très grandes largeurs de bandes interdites font qu'il est difficile de les exciter efficacement avec des lasers Ti :Saphir. D'après le tableau 3-1, le ZnSe (Sélénure de Zinc) est un cristal qui a une largeur de bande de 2.7 eV. Cette énergie est juste inférieure à l'énergie des photons émis à la longueur d'onde de 400 nm (3.1 eV). D'autre part, ce cristal a une valeur de rigidité diélectrique d'au moins 80 kV/cm (dans les conditions d'utilisation d'une APCGO) et une mobilité des porteurs de charges comprise entre 300 et 600 cm^2/Vs . Nous avons donc décidé de développer, fabriquer et étudier des APCGOs de

ZnSe. Ces antennes peuvent être excitées en utilisant la première ou la seconde harmonique des lasers Ti :Saphir. En effet, à la longueur d'onde de 800 nm, l'absorption à deux photons va permettre le passage de paires de trous et d'électrons de la bande de valence à la bande de conduction.

Il a déjà été démontré que le ZnSe polycristallin est un excellent candidat à la génération d'ondes THz de hautes intensités [192]. À partir d'une micro-antenne, Holzman *et al* ont observé une dépendance linéaire du champ électrique THz pour des champs de polarisation allant jusqu'à 125 kV/cm lorsque l'antenne est illuminé par une impulsion laser à la longueur d'onde de 800 nm. Cette valeur de champ de polarisation, très supérieure à la valeur de la rigidité diélectrique du ZnSe donnée dans le tableau 3-1, a été appliquée sur une distance inter-électrodes de 9 μm . Cette petite distance inter-électrodes a permis d'appliquer cette valeur de champ de polarisation sans briser l'antenne.

D'autre part, Holzman *et al* ont également démontré une dépendance linéaire du champ électrique THz en fonction de la densité de la fluence et ce pour des valeurs allant jusqu'à 28 mJ/cm^2 . Cette dépendance linéaire est contraire au comportement hyperbolique du champ électrique THz en fonction de la fluence d'une antenne PC de GaAs. Cette différence s'explique par le processus d'absorption à deux photons qui est mis en jeu quand on excite une antenne de ZnSe à la longueur d'onde de 800 nm. L'absorption à deux photons est un processus non-linéaire du troisième ordre qui dépend de l'intensité optique au carré et donc qui a lieu pour de très fortes intensités optiques.

Dans le cadre de ma thèse, nous avons décidé de construire une source THz de haute intensité à partir d'une APCGO de ZnSe. Afin de pouvoir illuminer une grande surface de cristal de ZnSe, nous avons besoin d'une impulsion optique possédant une grande énergie à la longueur d'onde de 800 nm ou de 400 nm. La prochaine section va décrire le processus qui permet de générer des impulsions laser de grandes énergies.

3-4 : La source laser

Le Laboratoire de Sources Femtosecondes (LSF), connu également sous le nom de projet ALLS (Advanced Laser Light Source, 21 M\$), a été l'un des trois projets canadiens subventionnés dans le cadre du Fonds de projets internationaux de la Fondation Canadienne pour l'Innovation (FCI) et consiste en une facilité nationale de laser de lasers femtosecondes multifaisceaux. L'infrastructure compte de nombreuses chaînes de lasers accessibles à la communauté scientifique : les chaînes lasers multi-kHz, 100Hz/4TW, 10Hz/10TW et 200TW, la ligne d'imagerie et d'absorption X ultra-courte, les lignes à champ intense ainsi que la ligne de diffraction d'électrons induite par laser [191].

La ligne multi-kHz est celle que j'ai la plus couramment utilisée au cours de mon doctorat. À la base, ce laser Ti : Saphir avait un taux de répétition de 1 kHz et générait des impulsions d'une durée de 25 fs et d'une énergie de 5 mJ. Il y avait la possibilité de changer le taux de répétition du laser à 5 kHz. Dans cette configuration, l'énergie des impulsions était de 1 mJ. Au cours de mon doctorat, ce laser a subi quelques modifications. Aujourd'hui, cette ligne fonctionne à 2.5 kHz générant des impulsions d'une durée de 25 fs et d'une énergie de 3.2 mJ. Ce type de laser est basé sur la technique d'amplification par l'amplification à dérive de fréquence ("Chirped Pulse Amplification" en anglais ou CPA) [193]. La figure 2-4 illustre le principe de cette technique.

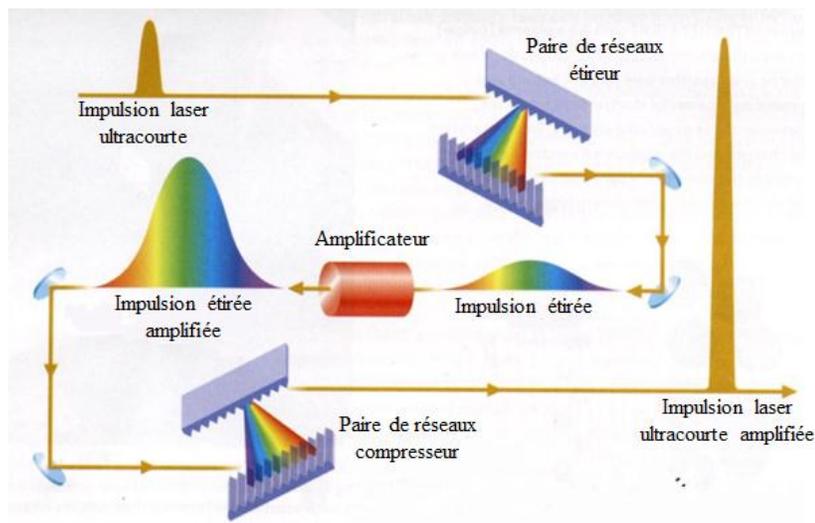


Figure 3-5 : Principe du fonctionnement d'un laser amplifié par CPA

Un laser amplifié est composé de trois modules distinctifs : Un oscillateur, une chaîne d'amplification et un compresseur. L'oscillateur est lui-même un laser Ti :Saphir qui émet une impulsion infrarouge à la longueur d'onde de 800 nm. Cet oscillateur fonctionne en verrouillage de mode ("mode locking" en anglais) et a son cristal d'émission qui est pompé par un laser dont la longueur d'onde d'émission est de 532 nm. L'oscillateur produit des impulsions d'une durée de 25 fs, d'une énergie de 6 nJ à un taux de répétition de 75 MHz (pour une puissance moyenne de 450 mW).

Par la suite, les impulsions laser ultracourtes vont se diriger vers un amplificateur. L'amplificateur comprend un étireur, un sélecteur d'impulsion, un amplificateur régénératif et un amplificateur à multiples passages. La raison pour laquelle les impulsions doivent être étirées avant d'être amplifiées est liée aux effets non-linéaires causés par le passage des impulsions au travers des optiques de transmission. Par exemple, une impulsion ayant une énergie de 10 mJ avec une durée de 25 fs a une intensité qui dépasse 25 GW/cm^2 . Une telle intensité optique a la capacité de changer l'indice de réfraction du verre utilisé dans l'amplificateur régénératif ce qui peut altérer la propagation des impulsions. Afin d'éviter ce phénomène, une paire de réseaux étire temporellement l'impulsion laser de 25 fs jusqu'à 270 ps.

Par la suite, un sélecteur d'impulsion, qui est une cellule de Pockels, permet de sélectionner une impulsion et ainsi de réduire la fréquence d'opération à la fréquence du laser Ti :Saphir amplifié (dans le cas du laser multi-kHz, il s'agit de 2.5 kHz). Cette étape permet de diminuer la puissance moyenne et ainsi de contrôler l'échauffement des cristaux.

Ensuite, l'impulsion est guidée vers la chaîne d'amplification. Cette dernière est constituée de l'amplificateur régénératif et de deux autres étages d'amplification. Ces trois étages d'amplification sont pompés par des lasers Nd :YAG (dopé en Néodyme) doublés en fréquence (532 nm). Afin de ne pas endommager les cristaux, la taille du faisceau est augmentée dans chaque étage d'amplification afin de diminuer la densité d'énergie.

Enfin, l'impulsion étirée et amplifiée entre dans le compresseur afin de reformer l'impulsion ultracourte. Le compresseur est composé principalement d'une paire de réseaux qui a pour fonction de ramener au même moment toutes les fréquences que nous avons étalées dans le temps au cours du passage dans l'étireur. C'est en réduisant la distance parcourue des composantes des basses fréquences vis-à-vis de la distance parcourue par les hautes fréquences que l'impulsion peut être comprimée temporellement. Notons également que la durée de l'impulsion compressée peut être changée en variant la distance entre les deux réseaux.

Au cours de ce chapitre, nous avons développé la théorie de la génération d'ondes THz par les APCGOs. Nous avons déterminé le comportement du champ électrique THz d'une APCGO de GaAs semi-isolant en fonction de la fluence optique et du champ de polarisation. Nous avons abordé les limites des APCGOs en évoquant la saturation du champ électrique THz lorsque l'antenne est illuminée par de fortes fluences optiques. Dans le chapitre 4, nous allons étudier la génération d'ondes THz par des APCGOs de ZnSe.

Chapitre IV

Génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices de grandes ouvertures de ZnSe

Au cours de ce chapitre, nous nous efforcerons de démontrer la capacité des APCGOs de ZnSe à générer des impulsions THz de hautes intensités. Dans ce chapitre, nous montrons les premiers résultats obtenus durant nos recherches sur la génération d'ondes THz utilisant des APCGOs de ZnSe. Ces expériences ont été réalisées dans le laboratoire UOP (Ultra fast Optical Processing) de l'INRS-EMT. D'autre part, nous comparerons les performances des APCGOs de ZnSe aux performances des APCGOs de GaAs semi-isolant afin de démontrer le plus grand potentiel des APCGOs de ZnSe pour générer des impulsions THz de hautes intensités par rapport aux APCGOs de GaAs.

4-1 : Le cristal de ZnSe

Le cristal de ZnSe est un cristal semi-conducteur ayant une large bande interdite (2.7 eV). Il appartient au groupe II-VI (zinc chalcogène) des cristaux semi-conducteurs qui contient aussi les cristaux de ZnS (sulfure de zinc), ZnTe, ZnO, CdSe (séléniure de cadmium) et CdO (oxyde de cadmium). Sa couleur est jaune orangée. Il est très difficile à trouver à l'état naturel. Historiquement, il a été découvert en 1955 au Zaïre sous la forme d'un minéral. La structure cristalline la plus commune du ZnSe est cubique à faces centrées. La figure 4-1-(b) illustre cette structure. Cependant, le cristal de ZnSe peut également avoir une structure cristalline hexagonale [194]. Le ZnSe est un matériau inerte, non hygroscopique qui est très efficace dans de nombreuses applications optiques. C'est un matériau relativement mou qui est facilement usinable. En contrepartie, c'est un matériau qui se raye très facilement. Il est réputé pour avoir une grosse résistance aux chocs thermiques et est très stable thermiquement [195].

La première utilisation scientifique du ZnSe a été étudiée en 1976. Le ZnSe a été dopé au chrome puis utilisé comme milieu amplificateur afin d'émettre des ondes infrarouges [196]. Ce cristal a commencé à être utilisé au début des années 90 dans les lasers diodes. Il a été démontré que le ZnSe pouvait être utilisé afin de réaliser une structure à puits quantique pour émettre des impulsions lasers dont la longueur d'onde est de 490 nm. Par la suite, beaucoup de recherches sur le cristal de ZnSe ont porté sur les propriétés de photoluminescences [197,198].

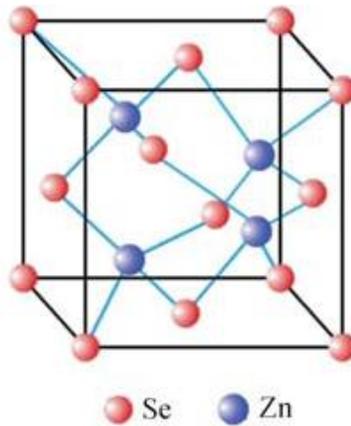


Figure 4-1: Structure cubique à faces centrées du cristal de ZnSe [194]

Actuellement, la plus grande application du ZnSe est l'utilisation pour des fenêtres optiques, lentilles, prismes pour des optiques utilisés aux longueurs d'ondes infrarouges. En effet, le ZnSe est hautement transparent dans des larges gammes de fréquences allant du jaune à l'infrarouge lointain. Afin d'augmenter la transparence du ZnSe dans ces gammes de longueurs d'ondes, la croissance de ce cristal est effectuée traditionnellement par dépôt chimique en phase vapeur (Chimical Vapor Deposition en anglais ou CVD). Le ZnSe est donc très utilisé comme optique de transmission pour des applications utilisant les lasers au CO₂ dont la longueur d'onde est de 10.6 μm . La figure 4-2 montre la transmission d'une fenêtre de ZnSe de 2 mm d'épaisseur pour des longueurs d'ondes allant du visible à l'infrarouge lointain [199].

Une des applications réalisées avec des cristaux de ZnSe et qui nous intéresse grandement est la fabrication de photo-commutateur de haute tension [178, 200, 201]. Il a été démontré que le ZnSe était un matériau montrant de grandes aptitudes à la photo-commutation de puissance. Le ZnSe est capable de résister à de hautes tensions et de

fortes densités de courant qui sont les deux principales caractéristiques recherchées pour les commutateurs. Par exemple, à partir d'un commutateur ayant une distance inter-électrode de 5 mm, Elezzabi *et al* ont démontré la commutation d'une tension de 11 kV et un courant de 1 kA en quelques nanosecondes. Cela correspond à une puissance de 11 MW. La densité de courant dans le commutateur a été déterminée à $4.5 \times 10^5 \text{ A.cm}^{-2}$ [78]. Cho *et al* ont démontré la commutation de tension de 7 kV (pour un champ de 70 kV/cm) par un commutateur de ZnSe polycristallin lorsqu'il est illuminé avec une densité de flux optique de $0.4 \mu\text{J/cm}^2$ à la longueur d'onde de 473 nm. En revanche, ils ont montré également, qu'un cristal monocristallin de ZnSe avait une tension de claquage inférieure au ZnSe polycristallin. Ils attribuèrent ce phénomène à un grand nombre d'impuretés dans le monocristal de ZnSe, ce qui engendrait une diminution de la résistivité du cristal et entraînait par conséquent un emballement thermique au sein du commutateur.

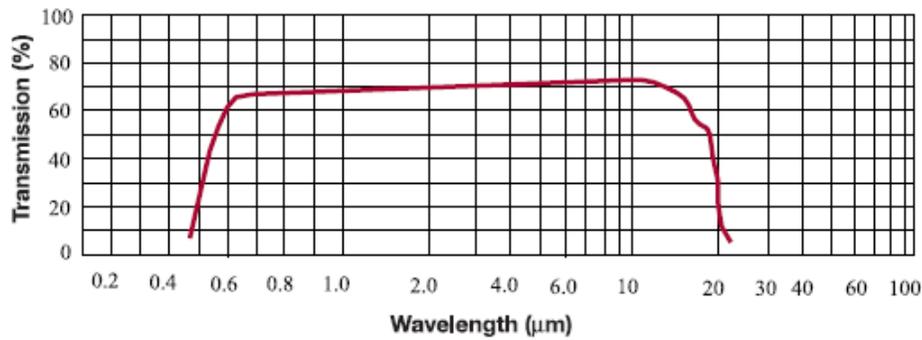


Figure 4-2: Transmission d'une fenêtre de ZnSe de 2 mm d'épaisseur pour des longueurs d'onde allant du visible à l'infrarouge lointain [199]

Plusieurs études ont été faites sur le cristal de ZnSe dans le domaine des ondes THz. Par exemple, la dynamique des porteurs de charge a été étudiée dans un cristal de ZnSe par un montage pompe optique-sonde THz (POST) [202]. Également, il a été démontré que les ondes THz peuvent moduler la photoluminescence d'un cristal de ZnSe [203]. Enfin, il a été démontré à l'aide d'une expérience pompe THz-sonde optique (PTSO) qu'un champ électrique THz intense peut induire un effet Stark dans des puits quantiques de ZnSe/ZnMgSe et ainsi moduler l'absorption des excitons [204].

Le cristal de ZnSe a également de très bonnes propriétés électro-optiques (EO) puisque son coefficient EO, r_{41} , vaut 2 pm/V (contre 4 pm/V pour le ZnTe). Il a été

démontré que le ZnSe peut servir à la détection d'ondes THz par échantillonnage EO [205]. Une impulsion THz dont le spectre s'étend jusqu'à 4 THz a été détectée avec un cristal de 0.15 mm d'épaisseur. Cependant, pour des cristaux de détections épais, l'orientation cristallographique aléatoire des grains du ZnSe polycristallin déforme la phase de l'impulsion THz. Ainsi, seuls des cristaux de ZnSe de faible épaisseur peuvent être utilisés pour la détection par échantillonnage EO des ondes THz.

Nous avons vu au chapitre précédent que le cristal de ZnSe polycristallin a démontré de très bonnes aptitudes pour la génération d'ondes THz intense par des antennes PC. Il a été également démontré qu'un cristal de ZnSe dont l'orientation cristallographique est (111) génère des ondes THz [206]. Wu *et al* ont mis en évidence que trois mécanismes de génération d'ondes THz étaient responsables de la génération d'ondes THz : Le redressement optique, l'effet Dember et le courant de dérive. Il a été également démontré que ce sont les mécanismes du redressement optique et de l'effet Dember qui sont dominants pour de fortes fluences optiques alors que c'est le mécanisme de courant de dérive qui est dominant pour de faibles fluences optiques.

4-2 : La génération d'ondes THz par des antennes photoconductrices de grandes ouvertures de ZnSe

Dans cette section, nous allons étudier la génération d'ondes THz par des APCGOs de ZnSe. Cette section suit le format de mon premier article [207]. Nous avons étudié deux types de cristaux de ZnSe : un cristal de ZnSe monocristallin et un cristal de ZnSe polycristallin. Pour les deux types de cristaux, nous avons étudié le comportement des antennes PC lorsqu'elles sont illuminées et excitées par une impulsion laser aux longueurs d'onde de 400 nm et de 800 nm. Lorsque la photoexcitation met en jeu une impulsion laser à 400 nm, la photo-absorption mettra en jeu des photons ayant une énergie supérieure à la largeur de bande interdite du ZnSe (l'énergie des photons est de 3.1 eV contre une largeur de bande interdite de 2.7 eV). En revanche, quand la photoexcitation est réalisée à l'aide d'une impulsion laser à 800 nm, on parlera de photoabsorption de l'antenne PC par des photons ayant une énergie inférieure à la largeur de bande interdite du ZnSe (dans ce cas, l'énergie des photons est de 1.55 eV). Enfin, la

dernière partie de ce chapitre sera consacrée à l'étude de la comparaison des performances des APCGOs de ZnSe aux performances des APCGOs de GaAs SI

4-2-1 : Le montage expérimental

La figure 4-3 montre le dispositif expérimental utilisé majoritairement pour les expériences qui ont permis l'obtention des résultats présentés au cours du chapitre 4. Ce dispositif permet la génération par des antennes photoconductrices et la détection par échantillonnage EO des ondes THz. La source laser est un laser Ti :Saphir qui génère des impulsions à la longueur d'onde de 800 nm, avec une énergie de 2.4 mJ, une durée de 120 fs et un taux de répétition de 1 kHz

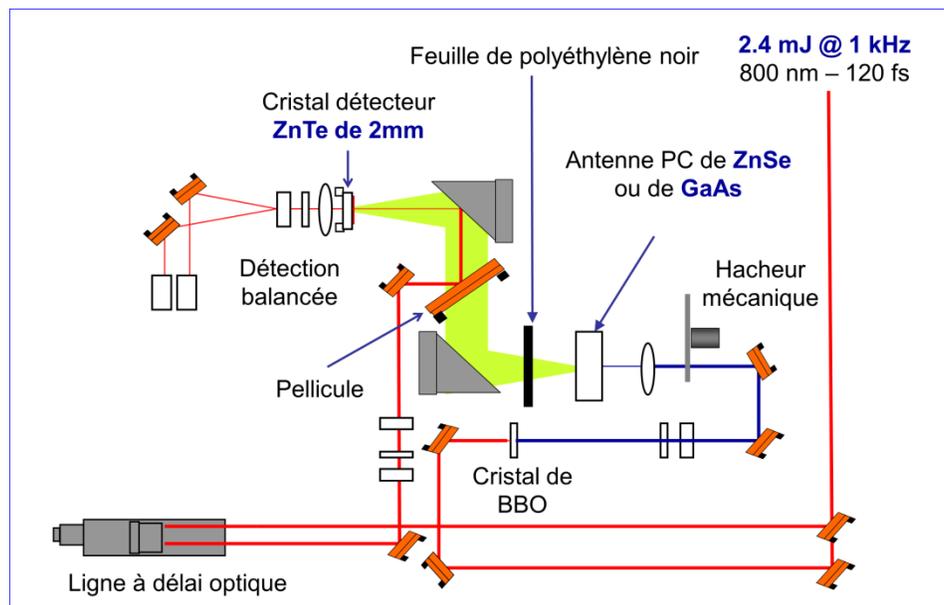


Figure 4-3 : Schéma du montage expérimental permettant la génération par des antennes photoconductrices et la détection par échantillonnage électro-optique des ondes THz.

Le faisceau Ti : Saphir est séparé en deux par une lame séparatrice. Environ 90% de l'énergie laser est envoyée dans le chemin de la pompe optique, alors que les 10 % restants sont envoyés dans le chemin de la sonde optique. Nous avons donc un montage expérimental traditionnel pompe-sonde. L'impulsion laser pompe est utilisée pour la génération des ondes THz par les antennes PC, alors que l'impulsion laser sonde est utilisée pour la détection des ondes THz par échantillonnage EO. Dans le chemin de la pompe optique, nous plaçons un cristal de BBO (béta borate de barium) afin de générer la

seconde harmonique du laser Ti : Saphir. Cette impulsion ultracourte, à la longueur d'onde de 400 nm, est utilisée afin de photoexciter l'antenne de ZnSe avec une énergie de photon supérieure à la largeur de bande interdite du cristal. Le cristal de BBO est retiré lorsque nous voulons photoexciter les antennes PC de ZnSe ou de GaAs à la longueur d'onde de 800 nm. Une lentille, possédant une longueur focale, f , de 7.5 cm est utilisée afin de réduire la taille du faisceau laser et ainsi augmenter la fluence optique. Nous plaçons l'antenne avant le point focal, de telle sorte à avoir le diamètre du faisceau laser qui fait 3 mm (à $1/e^2$). Le diamètre du faisceau laser a été mesuré par une technique de lame de couteau ("knife edge technique" en anglais).

Toutes les antennes PC (GaAs SI, ZnSe monocristallin et polycristallin) que nous avons étudié au cours de ce chapitre ont été fabriquées de la même façon. Les cristaux ont une épaisseur de 500 μm et polis sur les deux faces. Les cristaux de GaAs ont été achetés à la compagnie El Cat, les cristaux de ZnSe monocristallins ont été achetés à MTI et les cristaux de ZnSe polycristallins ont été achetés à Lambert Optics. L'orientation des cristaux de GaAs et de ZnSe monocristallins est de (100) afin d'éviter la génération d'ondes THz par d'autres procédés. Les antennes ont été fabriquées en déposant des électrodes d'une largeur de 2 mm et d'une distance inter-électrodes de 1 mm avec de la peinture d'argent. Les électrodes sont placées sur des faces opposées afin d'augmenter la tension maximale que l'on peut appliquer avant l'ionisation de l'air. D'autre part, de la colle siliconée a été déposée sur les électrodes afin d'éviter les décharges Corona [178]. Les antennes PC ont été polarisées à l'aide d'une source de haute tension DC Stanford Research. La source peut délivrer 5 kV avec un courant de 5 mA pour une puissance de 25 W. Les ondes THz sont rayonnées dans l'espace libre et sont collimatées puis focalisées sur le cristal détecteur par une paire de miroirs paraboliques hors axe de 90° (MPHA). Ces miroirs ont des revêtements de protection en or. Ils ont un diamètre de 50 mm et une distance focale de 100 mm. Après les antennes PC, on place une feuille de polyéthylène noire de haute densité qui laisse passer les ondes THz et bloque l'énergie laser résiduelle [208].

La détection des ondes THz est faite par la technique d'échantillonnage EO telle que décrite dans la section 2-2-1. Le cristal de ZnTe orienté (110) a une épaisseur de 1

mm. Un délai optique dans le chemin du faisceau sonde permet de balayer temporellement l'impulsion THz avec des pas optiques d'une durée de 50 fs. Ainsi pour chaque point de mesure du champ électrique THz, l'impulsion laser sonde subit un effet Pockels qui est proportionnel à la valeur de champ électrique THz. Les changements induits dans la polarisation de l'impulsion sonde sont détectés par deux photodiodes en mode différentiel, le tout synchronisé avec un hacheur mécanique pour effectuer la détection par amplificateur "lock-in" [141, 142]. Par la suite, nous reconstituons la forme temporelle de l'impulsion THz.

4-2-2 : Forme temporelle et spectre des impulsions THz générées par des antennes photoconductrices de grandes ouvertures de ZnSe

La figure 4-4 montre les formes temporelles normalisées d'impulsions THz générées par des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin photoexcitées à la longueur d'onde de 400 nm. Les distances inter-électrodes des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin sont respectivement de 3 mm et 8 mm, Les fluences optiques sont de $250 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et $350 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et le champ électrique de polarisation est de 3.3 kV/cm et 3.1 kV/cm pour l'APCGO de ZnSe monocristallin et l'APCGO de ZnSe polycristallin.

Lors de cette expérience, le faisceau THz rayonné par ce type d'antenne est très peu divergent puisque les dimensions de l'antenne sont plus grandes que les longueurs d'ondes THz, Par conséquent, nous avons utilisé une configuration expérimentale nécessitant un seul MPHA pour focaliser le faisceau THz sur le cristal détecteur de ZnTe. Il est à noter également, que toutes les expériences qui vont être décrites dans ce chapitre ont été réalisées dans l'air ambiant et non dans une atmosphère purgée par l'azote. Il est recommandé de faire des expériences impliquant les ondes THz dans une atmosphère purgée à l'azote puisque la vapeur d'eau contenue dans l'air absorbe fortement le rayonnement THz [209]. Enfin, les deux formes temporelles des impulsions THz ont été normalisées afin de faire une comparaison directe des deux formes.

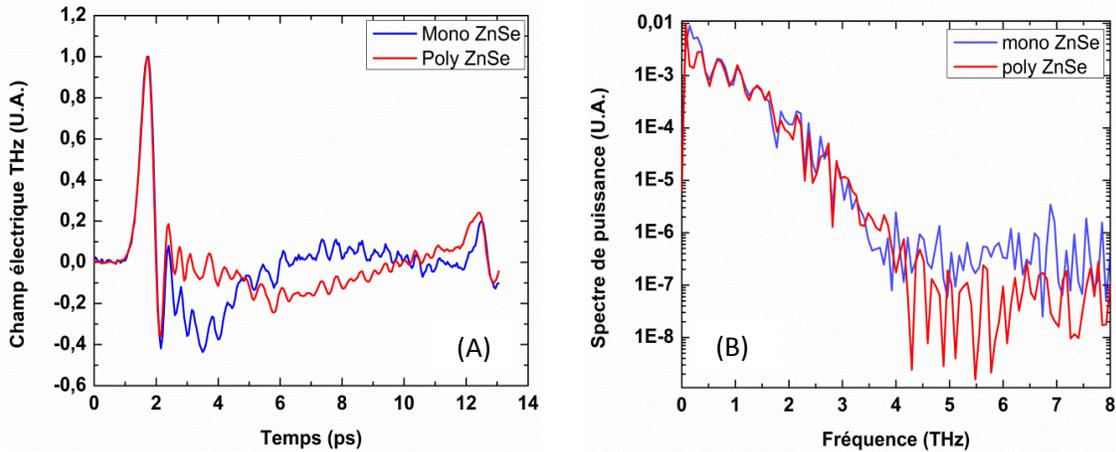


Figure 4-4: (A) Formes temporelles normalisées d'impulsions THz générées par des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin excitées à la longueur d'onde de 400 nm. (B) Spectres de puissance THz obtenus par transformées de Fourier associées aux formes temporelles présentées en (A).

Dans la figure 4-4 (A), on observe la forme temporelle des impulsions THz générées par des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin. La première constatation est que ces deux formes sont quasiment identiques. Nous sommes en présence de deux impulsions THz demi-cycle. Nous observons une impulsion initiale positive d'une durée de 560 fs (à $1/e$), suivie par une longue partie négative que l'on qualifiera de queue. Dans le cas d'un cristal de ZnSe monocristallin, la durée de la queue est de 3 ps alors que dans le cas du ZnSe polycristallin la durée de la queue est de 6 ps. Nous attribuons cette différence à une diminution du photocourant plus rapide dans le cas du cristal de ZnSe monocristallin. Des mesures prises par diffractométrie de rayon X (DRX) nous ont révélé la présence d'impuretés de fer au sein du monocristal de ZnSe. Ces impuretés ont probablement piégé les charges libres ce qui a eu pour conséquence de réduire le temps de recombinaison des charges de ce cristal. D'autre part, nous remarquons également des oscillations dans la queue des impulsions THz. Ces oscillations peuvent être attribuées à l'absorption des ondes THz par la vapeur d'eau. Enfin, l'écho situé à 12 ps, provient de la réflexion de l'impulsion THz à l'interface du cristal de ZnSe avec l'air.

La figure 3-4 (B) montre les spectres de puissance THz calculés par transformée de Fourier des traces temporelles des impulsions THz générées par des APCGOs de Znse monocristallin et polycristallin. Puisque les deux formes temporelles sont quasiment

identiques, nous avons également les deux spectres qui sont quasiment identiques. Pour les deux antennes, le spectre THz s'étend jusqu'à 3.5 THz. Cependant, on peut constater un niveau de bruit qui est plus haut pour le spectre obtenu avec l'antenne de ZnSe monocristallin. D'autre part, nous retrouvons les pics d'absorption de l'eau aux fréquences 1.4, 1.85, 2.22 et 2.4 THz [210]. Les spectres obtenus sont comparables à ceux qui sont obtenus avec des APCGOs de GaAs et sont la caractérisation d'un spectre obtenu à partir d'une impulsion demi-cycle [163, 211-213].

Par la suite, nous nous sommes également intéressés à la génération d'ondes THz par les APCGOs de ZnSe excités par une impulsion laser à la longueur d'onde de 800 nm. La figure 4-5 montre la forme temporelle et le spectre de puissance THz des impulsions THz générées par une APCGOs de ZnSe monocristallin excités à 400 nm et 800 nm. Les formes temporelles des impulsions THz ont été normalisées. Les fluences optiques sont de $175 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et $1,6 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ et le champ électrique de polarisation est de 3.3 kV/cm et 2.5 kV/cm pour l'APCGO de ZnSe monocristallin excités à 400 nm et 800 nm.

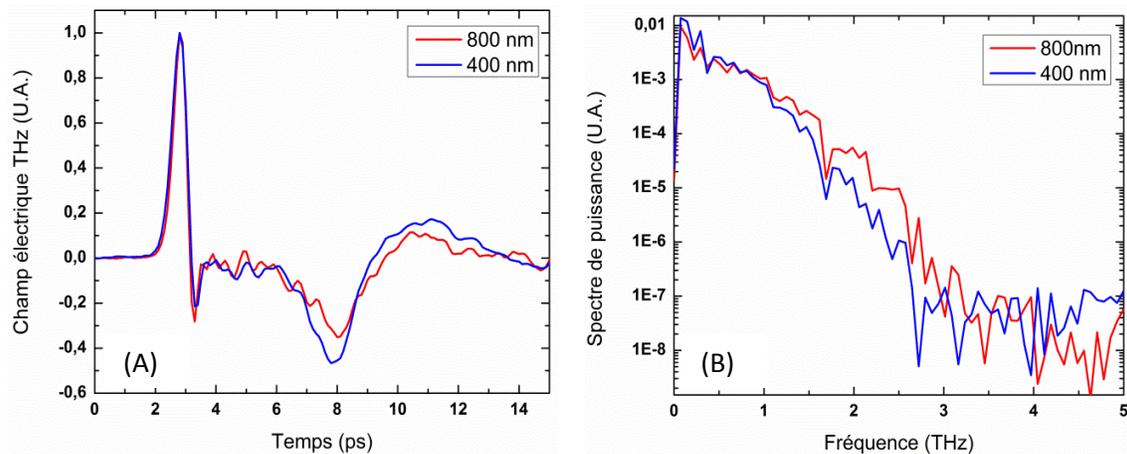


Figure 4-5 : (A) Formes temporelles normalisées d'impulsions THz générées par une APCGO de ZnSe monocristallin excités aux longueurs d'onde de 400 et 800 nm. (B) Spectres de puissances THz obtenus par transformées de Fourier associées aux formes temporelles présentées en (A).

À partir de la figure 4-5 (A), nous n'observons aucune différence majeure sur la forme temporelle des impulsions THz lorsque la longueur d'onde d'excitation est de 400 nm ou 800 nm. Nous pouvons seulement noter une diminution de la durée de l'impulsion lorsque la longueur d'onde d'excitation est de 800 nm (540 fs contre 560 fs). La petite

augmentation de la durée d'impulsion THz lorsque l'on excite l'antenne à la longueur d'onde de 400 nm peut-être attribuée au fait que la durée de l'impulsion laser à 400 nm est supérieure à celle de l'impulsion laser à 800 nm. En effet, le doublage de fréquence a été effectué dans un cristal de BBO de 600 μm d'épaisseur ce qui provoque une augmentation de la durée de l'impulsion laser. Nous pouvons noter également une petite différence de la profondeur du premier pic négatif entre la forme de l'impulsion THz générée par une APCGO de ZnSe monocristallin excitée à 400 nm. Cette différence est attribuée à la différence de fluence d'excitation lors de ces mesures. La figure 4-5 (B) montre les spectres de puissance calculés par transformée de Fourier des formes temporelles des impulsions THz tracées dans la figure 4-5 (A). La conséquence directe de la diminution de la durée de l'impulsion THz est l'augmentation du signal pour des fréquences supérieures à 1 THz dans le spectre THz.

4-2-3 : Étude du comportement du rayonnement THz en fonction de la fluence

Dans cette section, dans les sections précédentes, ainsi que dans celles qui vont suivre au cours de ce chapitre, il est très important de noter que les valeurs du champ électrique THz sont en unités arbitraires. La calibration du champ électrique THz est difficile lorsque l'énergie THz est insuffisante pour être mesurée par un détecteur pyroélectrique ou par une caméra infrarouge. Cependant, les grandeurs de champ électrique THz qui sont inscrites dans les graphiques sont des mesures relatives dont l'amplitude est fonction de l'amplitude réelle du champ électrique THz. D'autre part, nous pouvons comparer les valeurs de champs électriques insérées dans un même graphique. En revanche, nous ne pouvons pas comparer les valeurs de champs électriques THz insérées dans différents graphiques. Les raisons sont que la puissance de la sonde optique, les constantes de l'amplificateur "lock-in" ainsi que d'autres paramètres qui affectent l'amplitude du champ électrique THz détecté par échantillonnage EO pouvaient varier d'une expérience à une autre.

Les figures 4-6 (A) et (B) montrent la variation du champ électrique THz crête généré par des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin en fonction de la

fluence optique. Nous avons tracé trois courbes pour trois valeurs de champ de polarisation. Les antennes sont photoexcitées à la longueur d'onde de 400 nm.

À partir de la figure 4-6, nous observons que le champ électrique THz crête rayonné par les APCGOs de ZnSe dépend du champ de polarisation de l'antenne et de la fluence optique. Les points sont les mesures expérimentales alors que les courbes ont été tracées à l'aide d'un ajustement de paramètres fait à partir de l'équation suivante :

$$E_{THz,pic} \propto \beta \frac{F}{F + F_{sat}} \quad (4-1)$$

où β est une constante qui dépend du champ de polarisation de l'antenne. On peut constater que cette fonction est similaire à l'équation (3-22) qui donne la valeur du champ électrique crête rayonné par une APCGO.

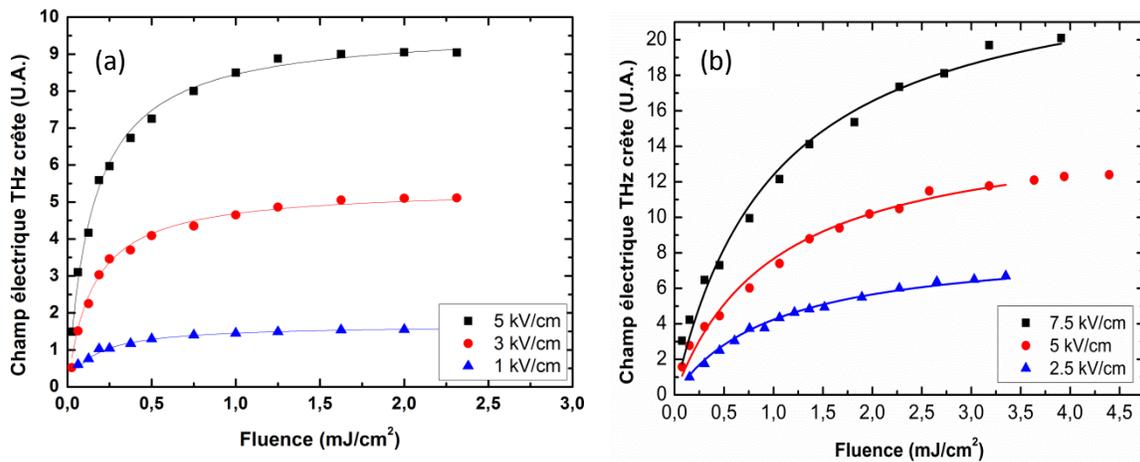


Figure 4-6: Variation du champ électrique THz crête en fonction de la fluence pour trois différentes valeurs de champ de polarisation de l'antenne pour une APCGO de ZnSe monocristallin (A) et pour une APCGO de ZnSe polycristallin (B). Les courbes indiquent les meilleurs ajustements de paramètres faits à partir de l'équation (4-1). Les fluences de saturations sont de 0.15 mJ/cm^2 pour le ZnSe monocristallin et 1.01 mJ/cm^2 pour le ZnSe polycristallin.

À partir de la figure 4-6, nous observons que le champ électrique THz rayonné par des APCGOs de ZnSe est proportionnel au champ de polarisation de l'antenne et à la fluence optique. On observe également une saturation du champ électrique THz crête lorsque les antennes sont excitées avec de fortes fluences optiques. Cette saturation est due à l'écrantage du champ de polarisation de l'antenne par le champ électrique THz. D'autre part, on peut remarquer que la saturation du champ électrique THz est toujours

observable même si nous augmentons le champ de polarisation de l'antenne. À partir de l'équation (4-1), nous déterminons la valeur de la fluence de saturation à 0.15 ± 0.02 mJ/cm^2 pour le cristal monocristallin de ZnSe et 1.01 ± 0.07 mJ/cm^2 pour le cristal de ZnSe polycristallin. À partir de ces valeurs, et en utilisant l'équation (3-23), on obtient la valeur de la mobilité des charges qui est de 267 cm^2/Vs pour le cristal de ZnSe monocristallin et 40 cm^2/Vs pour le cristal de ZnSe polycristallin. La mobilité des charges dans le ZnSe monocristallin est relativement faible. Cela peut être expliqué par la présence d'impuretés de fer dans notre substrat qui a probablement causé une baisse de la mobilité des charges [214]. À partir de ces données, on observe qu'il faut plus d'énergie optique pour faire travailler l'antenne de ZnSe polycristallin dans le régime d'écrantage THz que dans le cas d'une antenne de ZnSe monocristallin.

4-2-4 : Étude du comportement du rayonnement THz en fonction du champ de polarisation

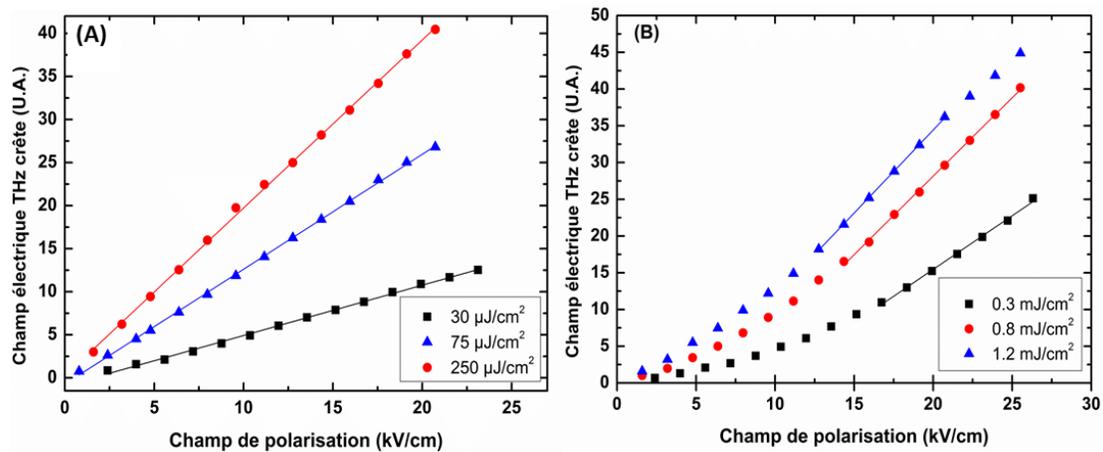


Figure 4-7 : Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de ZnSe monocristallin (A) et polycristallin (B) en fonction du champ de polarisation. Les antennes sont excitées à la longueur d'onde de 400 nm avec trois valeurs distinctes de fluence.

La figure 4-7 montre la variation du champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de ZnSe monocristallin (A) et polycristallin (B) en fonction du champ de polarisation lorsque les deux antennes sont excitées à la longueur d'onde de 400 nm. Les trois courbes tracées ont été obtenues pour trois valeurs de fluence. Ces trois valeurs sont 3×10^{-2} , 7.5×10^{-2} et 0.25 mJ/cm^2 pour le monocristal de ZnSe et 0.3 , 0.8 et 1.2 mJ/cm^2

pour le polycristal de ZnSe. Ces trois valeurs de fluence ont été prises de façon à avoir une valeur qui est inférieure à la fluence de saturation, une valeur qui est supérieure à la fluence de saturation et une valeur qui est à peu près égale à la fluence de saturation de l'antenne. À partir de la figure 4-7 (A), nous observons que le champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de ZnSe monocristallin a une dépendance linéaire vis-à-vis du champ de polarisation de l'antenne. Cette dépendance linéaire est constatée jusqu'à 23 kV/cm. Au-delà de cette valeur, nous avons observé des décharges Corona et une augmentation du courant moyen traversant l'antenne qui est la conséquence d'une augmentation de la température de l'antenne. Ces deux paramètres ont conduit à la destruction totale des antennes.

Dans la figure 4-7 (B), le champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de ZnSe polycristallin varie non-linéairement en fonction du champ de polarisation. Une dépendance linéaire est toutefois observée à partir de 15 kV/cm. Un comportement non-linéaire identique fut observé par Stone *et al* [81] alors qu'ils travaillaient avec des antennes de GaAs. Le comportement non linéaire est attribué au fait que les contacts métalliques (dans notre cas la peinture d'argent) sont considérés comme des contacts Schottky. Des contacts Schottky sont caractérisés par la présence d'une barrière de potentiel à la jonction métal semi-conducteur. Pour un même métal, la valeur de la barrière de potentiel est proportionnelle à la largeur de bande interdite. Il n'est donc pas surprenant de voir un comportement non-linéaire du champ électrique THz en fonction du champ de polarisation dans la figure 4-7 (B) quand on utilise de la peinture d'argent pour fabriquer les électrodes sur des cristaux semi-conducteurs de large bande interdite. Cependant, nous avons également démontré un comportement linéaire du champ électrique THz en fonction du champ de polarisation pour un cristal monocristallin dans la figure 4-7 (A) qui indiquerait que le contact fait avec de la peinture d'argent est un contact ohmique. La raison pour laquelle nous avons un contact ohmique est que le cristal de ZnSe monocristallin est dopé au fer, ce qui a provoqué une baisse suffisante de la barrière de potentiel pour rendre le contact ohmique [215].

4-2-5 : Comparaison des performances des APCGOs de ZnSe excitées aux longueurs d'onde de 400 et 800 nm

Dans cette section, nous allons étudier le comportement des APCGOs de ZnSe monocristallin lorsqu'elles sont excitées aux longueurs d'onde de 400 et 800 nm. Dans le cas où la longueur d'onde optique est de 400 nm, l'énergie des photons est supérieure à la largeur de bande interdite du cristal de ZnSe. Par conséquent, le processus mis en jeu est l'absorption à un photon. En revanche, dans le cas où la longueur d'onde optique est de 800 nm, l'énergie des photons est inférieure à la largeur de bande interdite. Par conséquent, le processus mis en jeu est l'absorption non linéaire à multiples photons.

Dans notre cas, il s'agit de l'absorption à deux photons puisque $\frac{E_g}{2} \leq h\nu \leq E_g$ où E_g est la largeur de bande interdite. L'absorption à deux photons est un effet non-linéaire du troisième ordre. La figure 3-8 illustre le principe de l'absorption à un photon et deux photons. Lorsque le processus mis en jeu est l'absorption à un photon, le processus est linéaire. Ainsi, l'atténuation de l'intensité de l'onde optique traversant le cristal est proportionnelle à l'intensité de l'onde optique et peut s'écrire tel que [216]:

$$\frac{dI}{dz} \propto -\alpha I(z) \quad (4-2)$$

où α est le coefficient d'absorption du cristal semi-conducteur à la longueur d'onde mise en jeu et $I(z)$ est l'intensité optique. En revanche, lors de l'absorption à deux photons, l'atténuation de l'onde optique n'est pas proportionnelle à l'intensité, mais à l'intensité élevée au carré tel que [217] :

$$\frac{dI}{dz} \propto -\alpha_2 I^2(z) \quad (4-3)$$

où α_2 est le coefficient d'absorption du cristal à deux photons et est proportionnel à la susceptibilité du troisième ordre. Ce phénomène non-linéaire n'apparaîtra que lorsque nous utilisons des puissances crêtes laser élevées (de l'ordre du MW/cm²) [218].

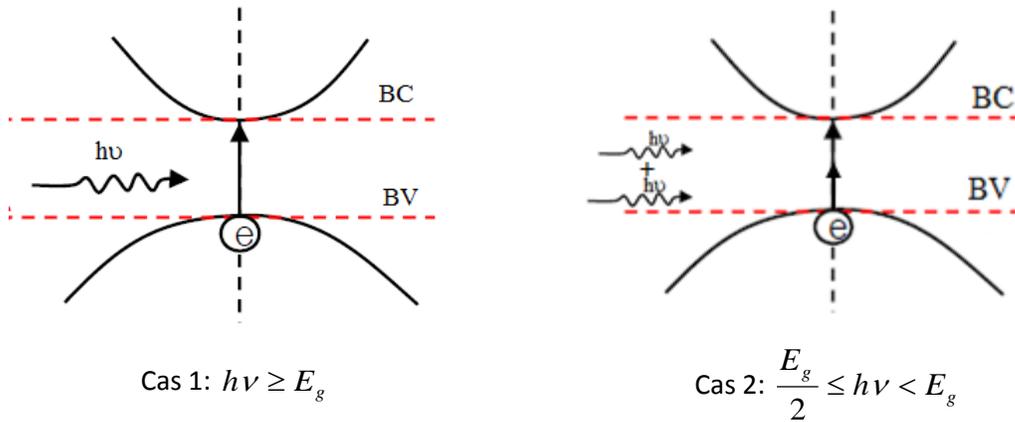


Figure 4-8: Illustration du processus d'absorption dans les cristaux semi-conducteurs. Cas 1 : L'énergie des photons est supérieure à la largeur de bande interdite (un photon crée une paire de trou et d'électron). Cas 2 : l'énergie des photons est inférieure à la largeur de bande interdite (deux photons créent une paire de trou et d'électron).

La figure 4-9 montre les variations de champ électrique THz crête généré par une APCGO de ZnSe monocristallin lorsque l'antenne est excitée à la longueur d'onde de 400 et de 800 nm. Le champ de polarisation est de 3 kV/cm dans les deux cas. Nous observons que le comportement du champ électrique THz en fonction de la fluence optique est très différent lorsque l'on excite l'antenne à la longueur d'onde de 800 nm et 400 nm. Lorsque la longueur d'onde est de 400 nm, on retrouve un comportement hyperbolique tel qu'observé dans la section 4-2-3. Dans ce cas-là, le champ électrique THz crête suit l'équation (4-1). Pour de fortes fluences optiques, nous observons la saturation du champ électrique THz.

En revanche, lorsque la longueur d'onde mise en jeu est de 800 nm, on remarque qu'il faut une plus grande fluence optique pour commencer à détecter le signal THz ($200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ à 800 nm contre $20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ à 400 nm). Cette différence est la conséquence de la nécessité d'exciter l'antenne avec de hautes fluences optiques à 800 nm pour créer l'absorption à deux photons. D'autre part, nous observons une évolution quadratique du champ électrique THz crête jusqu'à $0.7 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Par la suite, la dépendance du champ électrique THz crête est linéaire jusqu'à $2.1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Au-delà de cette intensité, nous commençons à observer la saturation du champ électrique THz. Il est très important de noter que dans la figure 4-9, les unités sont arbitraires, cependant les valeurs des deux courbes peuvent être comparées et nous voyons que chaque courbe sature pour la même

valeur de champ électrique THz crête. L'écrantage du champ de polarisation de l'antenne par le champ électrique THz apparaît pour toutes les longueurs d'onde d'excitation. Nous ne pouvons pas utiliser l'équation (4-1) pour faire l'ajustement des paramètres montrant l'évolution du champ électrique THz crête en fonction de la fluence lorsque l'antenne est excitée à la longueur d'onde de 800 nm. Cependant, si nous définissons la fluence de saturation comme étant la valeur de la fluence optique avec laquelle on doit exciter l'antenne pour avoir la moitié de la valeur maximale du champ électrique THz crête, alors on obtient une fluence de saturation de 1.23 mJ/cm^2 à 800 nm alors que cette valeur est de 0.15 mJ/cm^2 à 400 nm. Pour rappel, la valeur de la fluence de saturation pour une APCGOs de ZnSe polycristallin excitée à 400 nm a été définie à 1.01 mJ/cm^2 à 400 nm.

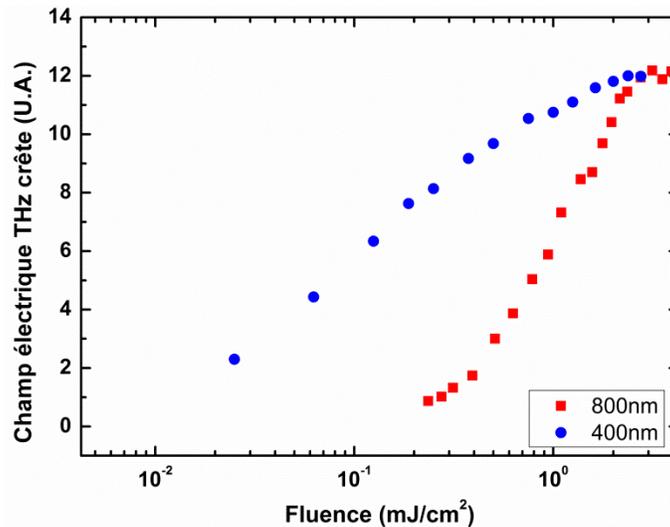


Figure 4-9: Variation du champ électrique THz crête rayonné par une APCGO de ZnSe monocristallin excitée aux longueurs d'ondes de 400 et 800 nm en fonction de la fluence.

Il est à noter également que nous avons observé un échauffement prématuré de l'antenne ainsi que l'apparition de décharges Corona à des tensions inférieures lorsque l'antenne est excitée à 800 nm plutôt qu'à 400 nm. Ces phénomènes sont les conséquences directes de l'obligation d'utiliser de plus fortes intensités optiques pour exciter l'antenne à la longueur d'onde de 800 nm. Par conséquent, en utilisant le processus d'absorption à deux photons pour exciter l'antenne, nous n'avons pas la possibilité d'appliquer une tension de polarisation aussi grande que lorsque nous utilisons

le processus d'absorption à un photon. À la suite de cette étude, nous avons constaté qu'il était préférable d'exciter les antennes de ZnSe à la longueur d'onde de 400 nm.

4-3 : Comparaison des performances des APCGOs de ZnSe et GaAs

Dans cette section, nous allons comparer les performances de rayonnement d'ondes THz des APCGOs de ZnSe et de GaAs lorsque l'on illumine les antennes avec des longueurs d'onde qui ont une énergie de photons qui est supérieure à la largeur de bande interdite du cristal. Ainsi, lorsque nous considérerons une antenne de ZnSe, la longueur d'onde d'excitation sera de 400 nm alors que lorsque nous considérerons une antenne de GaAs, la longueur d'onde d'excitation sera de 800 nm. Cette comparaison est utile pour deux raisons : i) nous allons estimer quel est le matériau (ZnSe ou GaAs) qui a le plus grand potentiel pour générer des impulsions THz de hautes intensités par la technique des APCGOs et ii) nous allons estimer quel matériau va nous permettre d'obtenir la meilleure efficacité THz. L'efficacité THz est le rapport de l'énergie THz divisée par l'énergie optique. Dans le cas des APCGOs, l'efficacité THz est définie par la relation [162] :

$$\eta = \frac{\tau E_b^2}{2FZ_0} \left(\frac{F}{F + F_{sat}} \right)^2 \quad (4-4)$$

où τ est la durée de l'impulsion THz, F est la fluence optique, E_b est le champ de polarisation de l'antenne, Z_0 est l'impédance du vide et F_{sat} est la fluence de saturation telle que défini par l'équation (3-23). L'efficacité THz maximale est obtenue quand $F=F_{sat}$. On obtient alors [162] :

$$\eta_{max} = \frac{\tau E_b^2}{8Z_0 F_{sat}} \quad (4-5)$$

Ainsi, nous voyons que l'efficacité maximale des APCGOs est proportionnelle au carré du champ de polarisation, mais est également inversement proportionnelle à la fluence de saturation. Or on a vu au chapitre 3, dans l'équation (2-23), que la fluence de saturation est inversement proportionnelle à la mobilité des charges. Par conséquent, le taux de conversion maximal des APCGOs est également linéairement proportionnel à la

mobilité des charges. Dans le chapitre 3, nous avons vu l'importance de travailler avec des cristaux semi-conducteurs de large bande interdite afin de profiter de leurs plus grandes rigidités diélectriques. En revanche, l'équation (4-5) nous montre également qu'il est très important de travailler avec des cristaux qui n'ont pas une mobilité des charges trop réduite afin de ne pas trop baisser l'efficacité THz. Nous allons donc étudier et déterminer si le cristal de ZnSe peut compenser sa faible mobilité des charges ($267 \text{ cm}^2/\text{V.s}$) par sa grande tension de claquage.

4-3-1 : Comparaison du rayonnement THz par des APCGOs de ZnSe et GaAs en fonction de la fluence et du champ de polarisation

La figure 4-10 montre le champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs, ZnSe monocristallin et ZnSe polycristallin en fonction de la fluence optique. Le champ de polarisation est de 3 kV/cm pour les trois antennes. La longueur d'onde d'excitation des antennes est de 800 nm pour l'antenne de GaAs et de 400 nm pour les antennes de ZnSe. Les points sont les valeurs expérimentales alors que les courbes ont été obtenues à l'aide d'ajustement de paramètres fait à partir de l'équation (4-1).

Rappelons que les antennes étudiées ici ont toutes le même design. Les électrodes étaient en peinture d'argent dont les dimensions sont 2 mm pour la largeur et 1 mm pour la distance inter-électrode. Chaque électrode est sur chacune des faces du cristal. Sur la figure 4-10, nous observons une saturation du champ électrique THz en fonction de la fluence optique pour les antennes de GaAs et de ZnSe monocristallin. Nous observons également que la saturation du champ électrique THz de l'APCGO de GaAs apparaît pour de faibles fluences optiques. Cela est en accord avec ce qui a déjà été démontré sur la génération d'ondes THz à partir des APCGOs de GaAs [77, 78, 163]. La saturation du champ électrique THz de l'APCGO de ZnSe monocristallin apparaît pour des fluences optiques supérieures à celles du GaAs. En revanche, nous n'observons pas une saturation nette du champ électrique THz généré par l'APCGO de ZnSe polycristallin et ce pour des fluences optiques allant jusqu'à $3.5 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. On peut supposer que si nous avions continué à augmenter la fluence optique, nous aurions pu observer le même type de saturation. Malheureusement, la quantité d'énergie laser maximale à la longueur d'onde

de 400 nm est limitée par l'efficacité du processus de génération de la seconde harmonique obtenue à partir d'un cristal de BBO. Cela nous a empêché de continuer la courbe pour de très grandes valeurs de fluences optiques.

Les différentes valeurs de fluences à partir desquelles la saturation du champ électrique THz des trois antennes apparaît s'expliquent par la différence de mobilité des charges entre les trois matériaux. Ces trois valeurs de mobilités des charges donnent trois valeurs de fluence de saturation différentes. La procédure d'ajustement des paramètres effectuée à partir de l'équation (4-1) a permis de déterminer les valeurs des fluences de saturation de $0.011 \pm 7 \times 10^{-4} \text{ mJ/cm}^2$, $0.15 \pm 0.022 \text{ mJ/cm}^2$ et $1.01 \pm 0.065 \text{ mJ/cm}^2$ pour les antennes de GaAs, ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin. Le second paramètre dans l'ajustement des paramètres est la valeur maximale du champ électrique THz crête. Ces valeurs sont $8.55 \pm 0.11 \text{ U.A}$ (Unité Arbitraire), $8.50 \pm 0.13 \text{ U.A}$. et $8.52 \pm 0.1 \text{ U.A}$. pour les antennes de GaAs, ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin. Rappelons que même si les unités du graphique sont des unités arbitraires, nous pouvons comparer les valeurs de chaque courbe. Nous pouvons donc en déduire que quand les dimensions des antennes et les valeurs des champs de polarisation sont identiques, les amplitudes maximales du champ électrique THz crête saturent à la même valeur. Ce phénomène est prévu par la théorie et est provoqué par l'écrantage du champ de polarisation par le champ électrique THz.

Pour continuer notre comparaison des performances des APCGOs de GaAs et de ZnSe, la figure 4-11 montre le comportement du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs et de ZnSe monocristallin en fonction du champ de polarisation. L'antenne de GaAs a été excitée à la longueur d'onde de 800 nm alors que l'antenne de ZnSe a été excitée à la longueur d'onde de 400 nm. Les fluences optiques pour les antennes de GaAs et de ZnSe monocristallin étaient de $92 \mu\text{J/cm}^2$ et $700 \mu\text{J/cm}^2$. Ces deux valeurs ont été choisies pour être très supérieures aux fluences de saturation respectives des deux cristaux et que les antennes travaillent dans le régime d'écrantage THz. Ainsi, nous pouvons faire une comparaison directe des valeurs de champ électrique crête générés par les deux antennes.

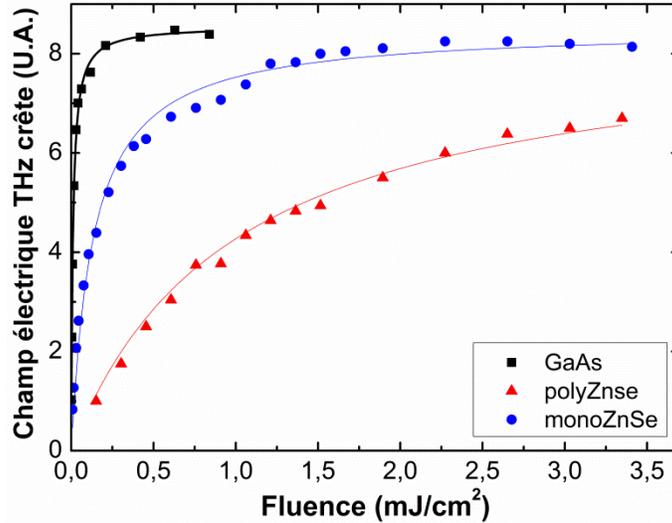


Figure 4-10 : Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs, ZnSe monocristallin et ZnSe polycristallin en fonction de la fluence. Les longueurs d'onde d'excitation sont 800 nm pour le GaAs et 400 nm pour le ZnSe monocristallin et polycristallin.

Comme nous l'avons déjà observé et évoqué dans les chapitres 2 et 3, la figure 4-11 montre la dépendance linéaire du pic de champ électrique THz en fonction du champ de polarisation. Cependant, l'antenne de GaAs ne supporte pas des champs de polarisation supérieurs à 11 kV/cm. La ligne rouge indique la valeur de la rigidité diélectrique d'une antenne de GaAs. En revanche, des champs de polarisation allant jusqu'à 14 kV/cm ont pu être appliqués sans observer la destruction de l'antenne de ZnSe. La figure 4-11 démontre qu'à dimensions égales, l'antenne de ZnSe monocristallin permet de générer des valeurs de champs électriques THz supérieures par rapport aux valeurs de champs électriques THz générés par une antenne de GaAs.

Bien que les deux fluences optiques étaient très largement supérieures aux fluences de saturation, nous observons une différence de pente entre les deux droites. Cette différence est attribuée au fait que le champ électrique THz crête généré par une antenne de GaAs, excité par une fluence optique de $92 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, est légèrement supérieur à celui généré par une antenne de ZnSe monocristallin, excité par une fluence optique de $700 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, lorsque les deux champs de polarisation sont identiques (voir figure 4-10).

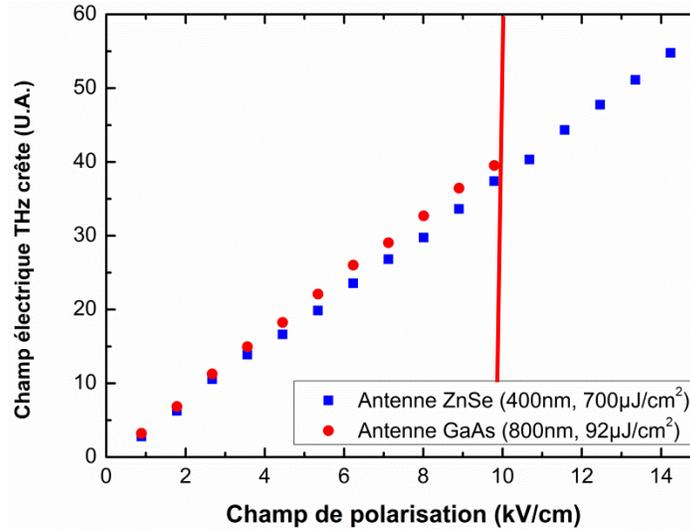


Figure 4-11 : Variation du champ électrique THz crête rayonné par des APCGOs de GaAs et ZnSe monocristallin en fonction du champ de polarisation. Les longueurs d'onde d'excitation sont 800 nm pour le GaAs et 400 nm pour le ZnSe monocristallin. La ligne rouge représente la valeur maximale de champ de polarisation applicable à l'antenne de GaAs.

4-3-2 : Évaluation de l'efficacité THz des APCGOs de GaAs et de ZnSe

Dans cette section, nous allons présenter les calculs qui vont nous aider à estimer l'efficacité THz de ces antennes et ainsi déterminer quelle antenne a la meilleure efficacité THz.

Paramètres	GaAs	ZnSe _{mono}	ZnSe _{poly}
Mobilité des charges μ (cm^2/Vs)	4000	267	40
Densité de flux de saturation F_{sat} ($\mu J/cm^2$)	10.5	150	1010
Durée d'impulsion THz τ à 1/e (ps)	0.9	0.56	0.56

Tableau 4-1: Récapitulatif des valeurs utilisées lors du calcul de l'efficacité THz maximale

Dans nos précédentes expériences, nous avons observé que le champ limite de polarisation d'une antenne de GaAs est de 10 kV/cm. Au-delà de cette valeur, nous brisons l'antenne. En revanche, pour des antennes de ZnSe monocristallin et

polycristallin, nous avons pu appliquer des tensions DC jusqu'à 23 kV/cm sans observer de rupture de l'antenne. Il a même été relaté dans la littérature que des commutateurs de ZnSe ont résisté à des champs électriques allant jusqu'à 80 kV/cm [178]. Pour atteindre ces valeurs de champ électrique, Elezzabi *et al* ont utilisé une source de tension pulsée et non une source de tension continue. La source de tension pulsée limite l'échauffement au sein du cristal. Plus récemment, Holzmann *et al* ont démontré la relation linéaire entre le champ électrique THz et le champ de polarisation jusqu'à 125 kV/cm [192]. À partir de l'équation (4-5), nous avons calculé l'efficacité THz maximale des sources THz de GaAs, ZnSe monocristallin et polycristallin en fonction du champ de polarisation de l'antenne. Les valeurs utilisées pour le calcul de l'efficacité THz maximale sont inscrites dans le tableau 4-1.

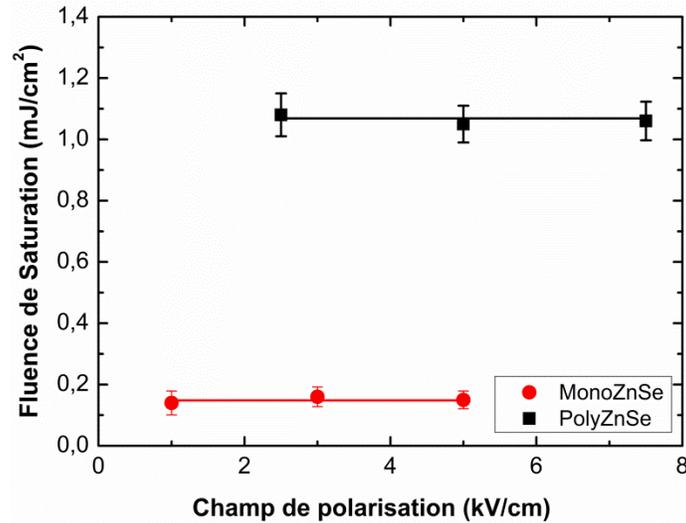


Figure 4-12 : Variation de la fluence de saturation des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin en fonction du champ de polarisation. La longueur d'onde d'excitation est dans les deux cas 400 nm.

Il est important de noter que les équations (4-4) et (4-5) ne sont valides que si la fluence de saturation est indépendante du champ de polarisation. La figure 4-12 montre la dépendance de la fluence de saturation en fonction du champ de polarisation pour des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin. Ces résultats ont été obtenus à partir des données tirées de la figure 4-6. À partir de la figure 4-12, nous démontrons que la fluence de saturation des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin est

indépendante du champ de polarisation pour des valeurs de champs allant jusqu'à 7.5 kV/cm. Dans la suite de cette section, nous allons considérer que la fluence de saturation des APCGOs de ZnSe monocristallin et polycristallin est indépendante du champ de polarisation pour des valeurs de champ allant jusqu'à 80 kV/cm.

La figure 4-13 montre la variation quadratique de l'efficacité THz maximale pour des APCGOs de GaAs, de ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin en fonction du champ de polarisation. Nous observons que l'efficacité THz maximale d'une antenne de ZnSe polycristallin est toujours inférieure à celle d'une antenne de ZnSe monocristallin. Cela est la conséquence de la plus faible mobilité des charges dans le ZnSe polycristallin par rapport au ZnSe monocristallin (40 contre 267 cm²/Vs).

On observe également que l'efficacité THz maximale d'une APCGO de ZnSe monocristallin polarisée par un champ de 23 kV/cm est inférieure à celle d'une APCGO de GaAs polarisée à 10 kV/cm (7.13×10^{-4} contre 2.84×10^{-3}). Ainsi, au cours de nos expériences, même si l'antenne de ZnSe monocristallin génère des valeurs de champ électrique THz crête supérieures à celles de l'antenne de GaAs, l'efficacité THz de l'antenne de ZnSe était toujours inférieure à celle de l'antenne de GaAs.

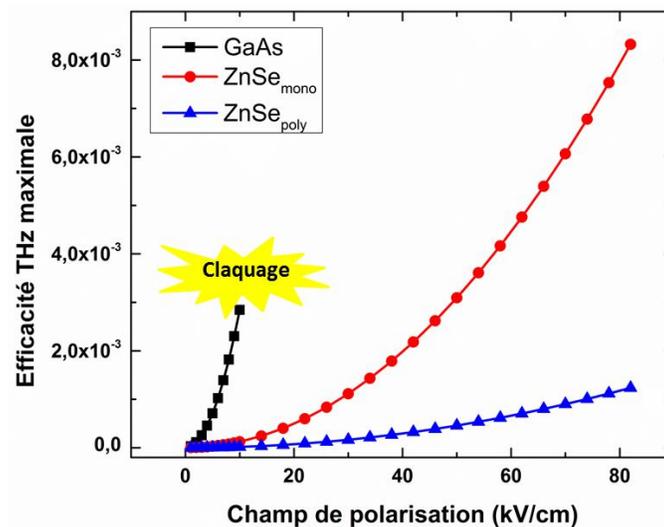


Figure 4-13 : Variation de l'efficacité THz maximale des APCGOs de GaAs, de ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin en fonction du champ de polarisation.

Cependant, alors que la valeur maximale du champ de polarisation pour une antenne de GaAs est de 10 kV/cm, nous pouvons augmenter le champ de polarisation jusqu'à 80 kV/cm pour les antennes de ZnSe. Ainsi, on constate que si nous appliquons un champ de polarisation de 48 kV/cm à une antenne de ZnSe monocristallin, alors l'efficacité THz maximale de cette antenne sera égale à celle d'une antenne de GaAs polarisée par un champ de 10 kV/cm (2.84×10^{-3}). Il est à noter également qu'une antenne de ZnSe polycristallin ne peut pas atteindre cette valeur d'efficacité THz maximale même lorsqu'elle est polarisée par un champ de 80 kV/cm. Dans ce cas-ci, l'efficacité THz maximale a une valeur de 1.18×10^{-3} .

Dans le cas d'une APCGO de ZnSe monocristallin, l'efficacité THz maximale qui peut être atteinte quand l'antenne est polarisée par un champ de 80 kV/cm est de 7.92×10^{-3} . Cette valeur est approximativement trois fois supérieure à l'efficacité THz maximale que l'on peut obtenir avec une antenne de GaAs. Cependant, pour pouvoir polariser une antenne avec un tel champ électrique, il faut travailler avec une source de haute tension pulsée afin de réduire l'échauffement thermique de l'antenne. Il faut surtout placer l'antenne dans le vide afin de ne pas ioniser l'air par le champ électrique de polarisation. L'ionisation de l'air crée un arc électrique et fait passer l'air d'un état isolant à un état conducteur. La rigidité diélectrique de l'air à température ambiante et à pression atmosphérique est approximativement de 30 kV/cm [219]. D'autre part, la génération d'ondes THz à partir d'une antenne de ZnSe requiert l'utilisation d'un cristal doubleur de fréquence comme le BBO ou le KDP (dihydrogène phosphate de potassium) afin de générer la seconde harmonique de laser Ti :Saphir. Une bonne efficacité de doublage de fréquence avec un cristal de BBO est d'environ 35 % [220]. Ainsi, en incluant le taux de conversion du doublage de fréquence d'un cristal de BBO dans le calcul de l'efficacité THz maximale d'une antenne de ZnSe monocristallin, lorsque cette antenne est polarisée à 80 kV/cm, nous obtenons une valeur d'efficacité THz qui est équivalente à celle d'une antenne de GaAs polarisée à 10 kV/cm.

On rappelle que les valeurs des efficacités THz maximales n'ont été que calculées. Nous n'avons pas pu déterminer expérimentalement ces valeurs. En effet, l'énergie THz par les différentes APCGOs au cours des expériences n'a pas pu être

mesurée car le détecteur pyroélectrique n'est pas suffisamment sensible. D'autre part, le champ électrique THz n'a pas été calibré car il était très difficile de mesurer la taille de la tache focale du faisceau THz sur le cristal détecteur et de calibrer la réponse linéaire électro-optique du cristal de ZnTe. Néanmoins, on peut rapprocher la valeur du taux d'efficacité THz de 2.84×10^{-3} obtenue avec une APCGO de GaAs à 10 kV/cm à la valeur de l'efficacité THz maximale obtenue par You *et al* avec une APCGO de GaAs polarisée à 10.6 kV/cm [15]. La différence de valeur peut s'expliquer partiellement par le fait que You *et al* ont utilisé une densité de flux optique de $40 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ce qui est environ quatre fois la densité de flux de saturation d'une antenne de GaAs. Par conséquent, son efficacité THz n'était pas l'efficacité THz maximale. Enfin, l'équation (3-5) n'est qu'une approximation de l'efficacité THz. Par exemple, cette équation ne prend pas compte des caractéristiques spatiales de l'impulsion THz.

Afin de nous assurer que nos estimations sur les valeurs de l'efficacité THz maximale sont justes et réalistes, nous allons calculer et comparer le ratio δ entre l'efficacité THz maximale des APCGOs de ZnSe monocristallin et l'efficacité THz maximale des APCGOs de GaAs que nous avons obtenu au cours de nos expériences. On peut écrire δ par :

$$\delta = \frac{\eta_{\text{ZnSe}}}{\eta_{\text{GaAs}}} \quad (4-6)$$

où η est l'efficacité THz et s'exprime par :

$$\eta = \frac{W_{\text{THz}}}{W_{\text{opt}}} \quad (4-7)$$

où W_{THz} est l'énergie THz et W_{opt} est l'énergie optique utilisée pour générer l'impulsion THz. L'énergie THz peut être exprimée par [162] :

$$W_{\text{THz}} = \frac{\tau A |E_{\text{THz}}^{\text{pk}}|^2}{2Z_0} \quad (4-8)$$

où τ est la durée d'impulsion THz à $1/e$, A est la taille de la tache focale du faisceau THz sur le cristal détecteur et $E_{\text{THz}}^{\text{pk}}$ est la valeur de champ électrique THz crête. Dans le cas où les émetteurs THz sont les APCGOs de ZnSe et de GaAs et que ces antennes ont les

mêmes dimensions, on peut supposer que les dimensions de la tache focale à la position du cristal détecteur sont identiques pour les deux sources. Ainsi, quand les valeurs des pics de champ électrique des deux sources sont identiques, le ratio δ devient :

$$\delta = \frac{\tau_{ZnSe} W_{opt,GaAs}}{\tau_{GaAs} W_{opt,ZnSe}} \quad (4-9)$$

Le tableau 3-2 liste les différents paramètres des APCGOs de GaAs et de ZnSe monocristallin obtenus à partir de la figure 4-10 lorsque nous avons étudié la génération d'ondes THz par les APCGOs de GaAs et de ZnSe.

Paramètres	GaAs	ZnSe _{mono}
<i>Champ électrique THz crête E_{THz}^{pk}</i> (U.A.)	4.67	4.67
<i>Champ de polarisation E_b</i> (kV/cm)	3	3
<i>Densité de flux optique W_{opt}</i> ($\mu\text{J}/\text{cm}^2$)	10.5 (800 nm)	139 (400 nm)
<i>Durée d'impulsion THz τ à 1/e</i> (ps)	2.39	2
<i>Ratio d'efficacité δ</i>	6.3×10^{-2}	

Tableau 4-2: Paramètres utilisés pour le calcul du ratio d'efficacité THz δ des APCGOs de ZnSe monocristallin et de GaAs

À partir du tableau 4-2, nous calculons un ratio d'efficacité THz δ de 6.3×10^{-2} lorsque les APCGOs de ZnSe monocristallin et de GaAs sont polarisées à 3 kV/cm et excitées à la fluence de saturation. Pour comparaison, le même ratio d'efficacité THz calculé à partir de la figure 4-13 pour des antennes polarisées à 3 kV/cm est de 4.3×10^{-2} . Nous avons donc les deux résultats qui ont le même ordre de grandeur et ça nous indique que les valeurs de l'efficacité THz maximales calculées à partir de l'équation (4-5) pour des APCGOs de GaAs, de ZnSe monocristallin et de ZnSe polycristallin et tracées dans la figure 4-13 sont réalistes.

Nous venons donc de démontrer que les antennes de ZnSe monocristallin, excitées à la longueur d'onde de 400 nm, peuvent générer des impulsions THz ayant une efficacité qui est équivalente à celle d'une antenne de GaAs excitée à la longueur d'onde de 800 nm. Cependant, le gros avantage de travailler avec des APCGOs de ZnSe monocristallin est de pouvoir générer des impulsions THz de hautes intensités tout en utilisant une taille de cristal modérée en excitant l'antenne avec une grande énergie optique. Imaginons une antenne de ZnSe monocristallin ayant une distance inter-électrode de 3 cm illuminée à la longueur d'onde de 400 nm. Sachant que le faisceau optique est de forme circulaire, la surface de l'antenne illuminée est de 7.06 cm^2 . Afin d'exciter l'antenne avec une densité de flux optique égale à la densité de flux de saturation ($150 \mu\text{J}/\text{cm}^2$), nous avons besoin d'une impulsion optique ayant une énergie de 1.06 mJ à la longueur d'onde de 400 nm. Cette énergie optique associée à un champ de polarisation de 80 kV/cm nous permettraient de générer des impulsions THz de $8.40 \mu\text{J}$. Maintenant, si nous voulons générer ces mêmes impulsions THz en utilisant une APCGO de GaAs excitée par une fluence optique égale à la fluence de saturation ($10.5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$), il faudrait une impulsion laser de 2.95 mJ à la longueur d'onde de 800 nm. Dans ces conditions, la surface illuminée de l'APCGO de GaAs par le faisceau laser serait de 281.5 cm^2 ce qui correspond à une distance inter-électrode et à un diamètre de faisceau de 18.93 cm (7.55 pouces). Il n'est pas pratique ni commun de travailler avec des optiques et des cristaux de si grandes dimensions. D'autre part, afin d'éviter de travailler avec des tensions de l'ordre de 200 kV, nous devrions utiliser une structure interdigitale avec une distance inter-électrode d'une dizaine de micromètres. La fabrication d'une telle structure requiert l'utilisation d'une technique de photolithographie classique qui serait très difficile à obtenir sur une telle surface. À l'aide de cet exemple très simple, nous mettons en évidence qu'il est plus avantageux de travailler avec des APCGOs de ZnSe monocristallin que des APCGOs de GaAs pour générer des impulsions THz de hautes intensités afin de pouvoir profiter de sa haute fluence de saturation mais aussi de sa grande efficacité.

Le prochain chapitre va introduire l'APCGO interdigitale de ZnSe que nous avons fabriquée au cours de mon doctorat. Nous décrirons le processus de fabrication, mais surtout nous allons démontrer une nouvelle technique nous permettant de réaliser la mise

en forme d'impulsion THz et d'augmenter l'énergie THz générée par des APCGOs à structure interdigitale.

Chapitre V

Mise en forme d'impulsions THz et génération d'ondes THz de hautes intensités

Au cours de ce chapitre, nous allons mettre en évidence les résultats nous permettant de caractériser la source THz intense que nous avons développée à l'Institut National de Recherche Scientifique-Centre Énergie, Matériaux et Télécommunication (INRS-EMT). D'autre part, nous allons montrer une nouvelle technique nous permettant de réaliser la mise en forme d'impulsion THz sur des antennes à structure interdigitale. Cette technique qui repose sur l'application d'un masque de phase binaire va également nous permettre d'augmenter l'énergie THz générée par des antennes interdigitales et par conséquent va nous permettre aussi d'augmenter l'efficacité THz de ces antennes.

Il est à noter qu'au cours de ce doctorat, nous avons dû faire face à de nombreux problèmes. L'un d'entre eux a été la qualité des cristaux de ZnSe achetés à des fournisseurs de cristaux. Comme nous l'avons expliqué au cours du chapitre 4, il est préférable de travailler avec des antennes photoconductrices de ZnSe monocristallin plutôt que des antennes photoconductrices de ZnSe polycristallin afin de bénéficier de leurs plus grandes mobilités des charges et ainsi avoir des sources THz plus efficaces. Cependant, après avoir cru, à deux reprises, avoir acheté des cristaux de ZnSe monocristallins ayant de grandes dimensions, nous nous sommes aperçus que c'était des cristaux de ZnSe polycristallin. Ainsi, la plupart des résultats obtenus pour l'écriture de ce chapitre ont été obtenus avec des cristaux de ZnSe polycristallin.

5-1 : La mise en forme d'impulsions THz

Cette section repose sur l'article écrit dans Optics Letters : "THz pulse shaping and improved optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask" [221].

5-1-1 : Le masque de phase binaire

Nous avons vu au cours du chapitre 2 qu'il était avantageux de travailler avec des antennes photoconductrices à structure interdigitale. En effet, ce type d'antenne permet de garder une grande surface photoexcitable, tout en réduisant la distance inter-électrodes. Ainsi, nous n'avons pas l'obligation de polariser les antennes avec de très hautes tensions afin d'obtenir les très grandes valeurs de champ de polarisation nécessaires à la génération d'impulsions THz intenses. Cependant, deux antennes voisines de l'antenne à structure interdigitale génèrent des impulsions THz ayant des polarités opposées. Si ces deux impulsions se propagent en champ lointain, elles interféreront de façon destructive. Afin d'éviter ce phénomène, un masque opaque binaire doit être utilisé pour ne permettre que la génération d'impulsions THz ayant la même polarité. En se propageant en champ lointain, ces multiples impulsions THz vont interférer de façon constructive. Ainsi, l'utilisation d'un masque opaque couvre la moitié de la surface totale de l'antenne. Par conséquent, l'utilisation de ce masque opaque limite l'énergie THz rayonnée par ce type d'antenne ainsi que l'efficacité THz.

Dans cette section, nous démontrons la possibilité de réaliser la mise en forme d'impulsions THz et d'augmenter l'efficacité THz à partir d'une antenne interdigitale couverte par un masque de phase binaire. Le masque de phase binaire permet de générer des impulsions THz monocycles et symétriques en illuminant toutes les antennes de la structure interdigitale tout en évitant la création d'interférence destructive. La figure 5-1 montre le principe de fonctionnement d'un masque de phase binaire. L'impulsion THz monocycle et symétrique provient de la superposition en champ lointain des deux impulsions THz demi-cycle mais de polarités opposées, générées de façon non simultanées par les antennes non-couvertes et couvertes par le masque de phase binaire. Le délai temporel entre l'impulsion THz demi-cycle à polarité positive et celle à polarité négative est proportionnelle à l'épaisseur du masque tel que :

$$\Delta t = \frac{d(n_q - n_a)}{c} \quad (5-1)$$

où d est l'épaisseur des lames composant le masque, n_a et n_q sont les indices de réfraction de l'air et du matériau du masque à la longueur d'onde d'illumination de

l'antenne et c est la célérité de la lumière. Il est à noter que le matériau du masque doit être transparent à la longueur d'onde laser. Le masque introduit donc un décalage de phase entre l'impulsion THz à polarité positive et l'impulsion THz à polarité négative permettant de créer une impulsion THz monocycle et symétrique.

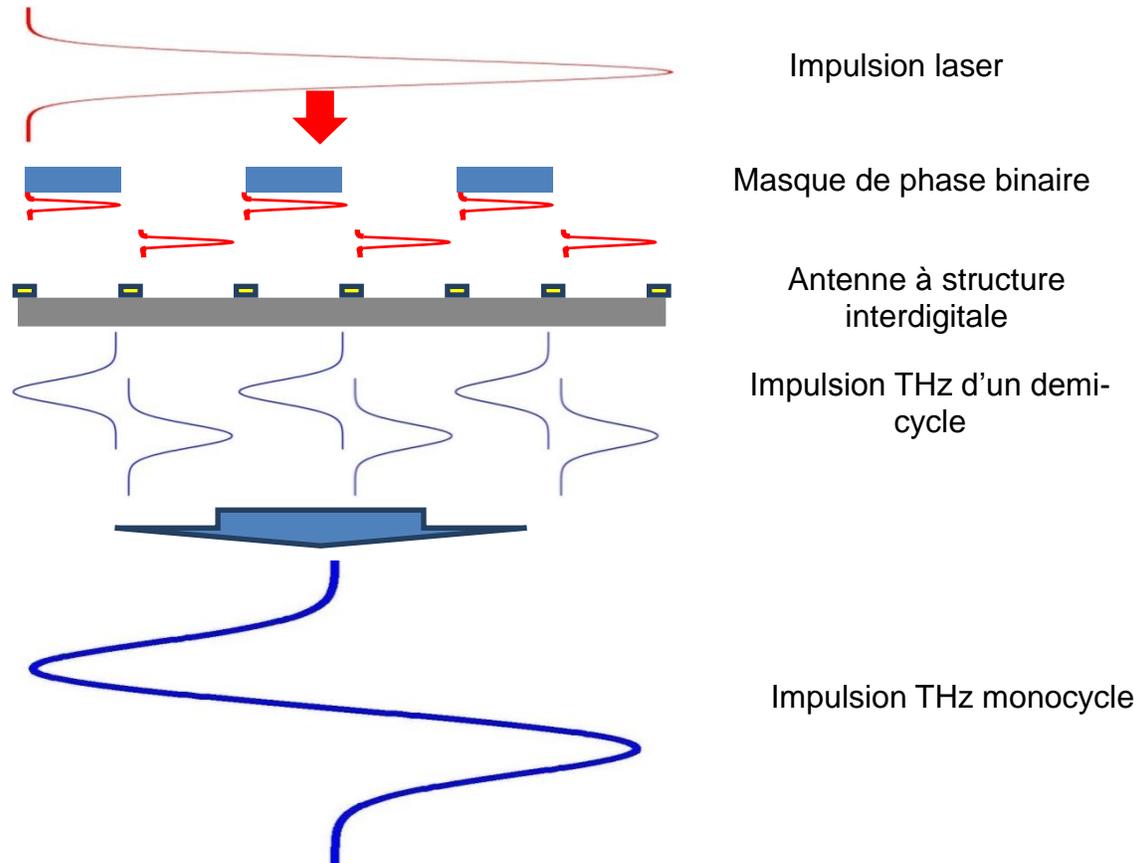


Figure 5-1: Principe du masque de phase binaire appliqué sur une antenne à structure interdigitale pour la génération d'impulsions THz monocycle

Il est à noter que cette technique, qui est très simple d'utilisation, peut également être appliquée sur n'importe quel émetteur qui nécessite une illumination périodique comme c'est le cas pour les émetteurs THz par effet Photo-Dember [222].

5-1-2 Conditions expérimentales

La figure 5-2 illustre la configuration expérimentale que nous avons utilisée pour démontrer la mise en forme d'impulsion THz par l'application d'un masque de phase sur une antenne à structure interdigitale de GaAs. Le laser amplifié Ti :Saphir délivre des impulsions à une longueur d'onde de 800 nm, d'une énergie de 500 μ J, d'une durée

d'impulsion de 60 fs à un taux de répétition de 10 kHz. La détection des ondes THz est faite par échantillonnage EO à l'aide d'un cristal de ZnTe orienté en (100) d'une épaisseur de 1 mm. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, un délai optique dans le chemin sonde permet de balayer temporellement l'impulsion THz.

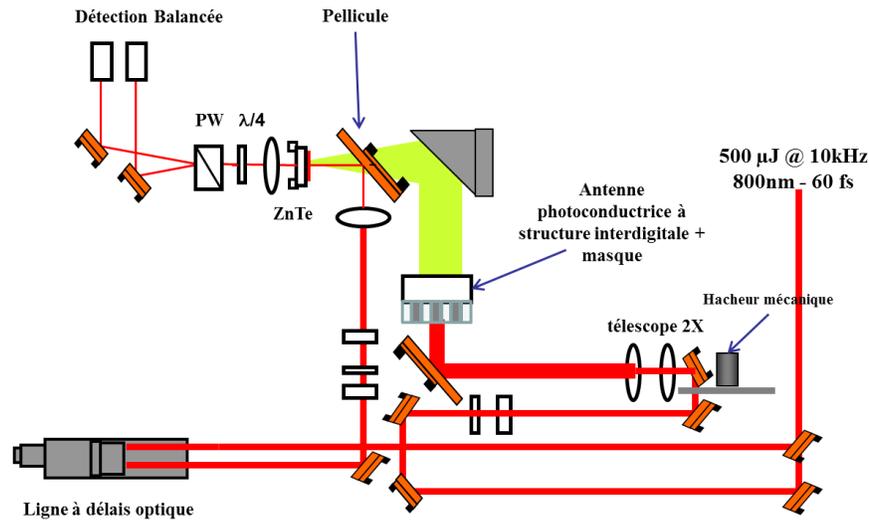


Figure 5-2: Schéma expérimental pour réaliser la mise en forme d'impulsions THz à partir d'une antenne photoconductrice interdigitale de GaAs et d'un masque de phase binaire. La détection des ondes THz est effectuée par échantillonnage EO (PW : Prisme Wollaston, $\lambda/4$: Lame quart d'onde).

Au cours des expériences, un amplificateur de tension AC capable de générer des tensions de 360 V a été utilisé pour polariser l'émetteur THz. L'antenne de GaAs à structure interdigitale que nous avons étudiée est composée de sept antennes identiques. Les électrodes ont une distance inter-électrodes de 3 mm, une longueur de 2.5 cm et une largeur de 200 μm . Nous avons choisi de travailler avec une distance inter-électrode grande (3 mm) afin de pouvoir très facilement placer le masque de phase sur la structure interdigitale. D'autre part, ceci nous permet également de ne pas subir l'écrantage du champ électrique THz par le champ statique de coulomb créé par la séparation des charges. La largeur totale de la structure interdigitale est de 2.1 cm. Afin d'illuminer entièrement la structure interdigitale de l'antenne, nous avons placé un télescope dans le chemin pompe afin de doubler la taille du faisceau laser. La taille (à $1/e^2$) à la sortie du télescope est de 3.4 cm. Le faisceau THz généré par cette source est collimaté. Nous avons utilisé un MPHA à 90° ayant ouverture F de 2 (2 pouces de diamètre et 4 pouces

de distance focale) pour focaliser le faisceau THz sur le détecteur de ZnTe. La composition des électrodes est du titane (20 nm) utilisé comme couche d'adhésion et de l'or (100 nm). Les techniques utilisées pour déposer les électrodes sont la photolithographie classique et l'évaporation par faisceau d'électrons. Ces antennes ont été fabriquées au laboratoire CRN2 à l'université de Sherbrooke. Au cours des expériences, nous avons utilisé cinq masques de phase binaire ayant cinq épaisseurs différentes et un masque opaque. Les masques de phase sont composés de trois lames de quartz ayant une largeur de 3 mm et une longueur de 3 cm afin de couvrir parfaitement les électrodes. La figure 4-3 montre une photo et une illustration de l'antenne de GaAs couverte par un masque de phase binaire d'une épaisseur de 170 μm .

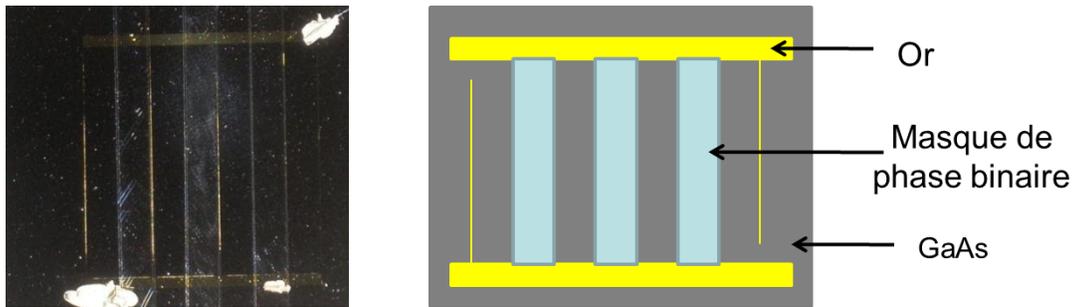


Figure 5-3: Photo et illustration de l'antenne interdigitale de GaAs recouverte par un masque de phase binaire d'une épaisseur de 170 μm .

5-1-3 : Résultats expérimentaux : La mise en forme d'impulsions THz

Les premiers résultats obtenus avec la source de GaAs à structure interdigitale sont les formes temporelles des impulsions THz générées lorsque l'on utilise un masque opaque traditionnel, un masque de phase binaire d'une épaisseur de 510 μm et lorsque aucun masque n'est utilisé. Afin de pouvoir comparer très facilement les différentes formes d'impulsions générées par les différents masques, nous avons gardé constante la fluence (14 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$) et le champ de polarisation de l'antenne (1.2 kV/cm). La figure 5-4 (A) montre les différentes formes temporelles d'impulsions THz générées par l'antenne interdigitale de GaAs. Nous avons introduit un décalage entre les formes d'impulsions pour faciliter la comparaison. La figure 5-4 (B) montre les spectres de puissance associés

aux impulsions obtenues avec le masque de phase binaire de 510 μm et le masque opaque.

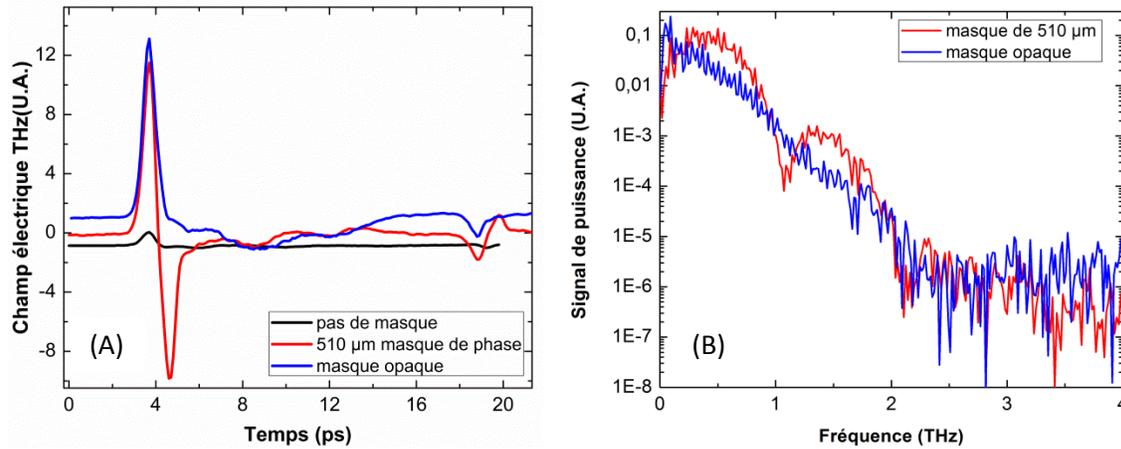


Figure 5-4 : (A) Formes temporelles des impulsions THz générées par l'antenne interdigitale de GaAs recouverte par un masque opaque, un masque de phase binaire de 510 μm et aucun masque. (B) Transformées de Fourier associées aux impulsions THz obtenues lors de l'utilisation du masque de phase binaire et du masque opaque.

À partir de la figure 5-4, nous observons la génération d'une impulsion THz asymétrique demi-cycle lorsque nous utilisons un masque opaque. Nous avons un pic positif suivi d'une longue queue négative. Cette forme d'impulsion THz est comparable en tout point à la forme d'impulsion THz qui peut être générée par les APCGOs de GaAs semi-insolant [76, 163]. Cependant, cette forme est légèrement différente de celle qui est générée par des antennes à structure interdigitale de GaAs [76, 85,87]. En effet, ces groupes de chercheurs ont étudié le comportement des antennes à structure interdigitale ayant une distance inter-électrodes très petite ($<50 \mu\text{m}$). Ainsi, la forme de l'impulsion THz générée est fortement influencée par l'écrantage du champ électrique THz par le champ statique de Coulomb. Ainsi, malgré le fait que leurs antennes sont dites de grande ouverture, la forme temporelle de l'impulsion THz par ce type d'antenne ressemble en tout point à celles qui peuvent être générées par des micro-antennes de GaAs semi-insolant.

En appliquant un masque de phase binaire de 510 μm d'épaisseur sur la structure interdigitale de l'antenne de GaAs, les impulsions THz générées sont des impulsions monocycles et symétriques. Il est à noter que la durée de l'impulsion monocycle est

légèrement inférieure au double de la durée de l'impulsion demi-cycle. Ce point sera discuté plus en détail plus loin dans cette section. Enfin, on s'aperçoit que lorsque nous n'appliquons aucun masque sur la structure interdigitale, le champ électrique THz est quasiment nul. En principe, nous nous attendions à ne détecter aucun signal THz. En effet, nous rappelons qu'en absence de masque, des interférences destructives se créent entre les deux impulsions THz ayant des polarités opposées. Nous attribuons le faible signal THz à la configuration géométrique très particulière de notre antenne interdigitale. En effet, notre antenne interdigitale est composée d'un nombre impair d'antennes (7) ce qui rend impossible la destruction totale du champ électrique THz en champ lointain lorsque la structure interdigitale n'est pas couverte par un masque.

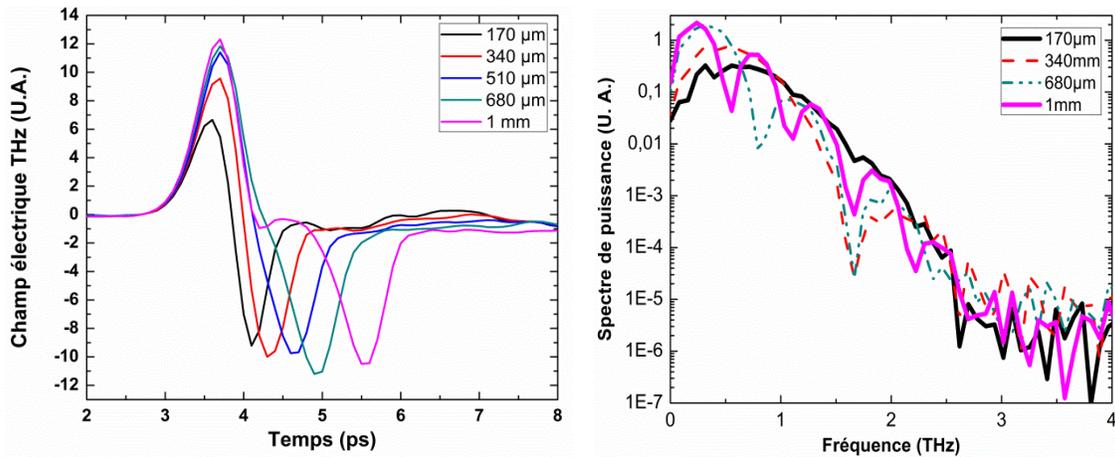


Figure 5-5 : (A) Formes temporelles des impulsions THz générées par l'antenne interdigitale de GaAs excitée par une fluence de $14 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ et polarisée par un champ de $1.2 \text{ kV}/\text{cm}$ couverte par les masques de phase binaire de 0.17 , 0.34 , 0.51 , 0.68 et 1 mm d'épaisseur. (B) Transformées de Fourier associées aux impulsions obtenues dans (A).

La figure 5-5 (A) montre les formes temporelles des impulsions THz générées par une antenne de GaAs à structure interdigitale couverte par des masques de phase binaires d'une épaisseur de 0.17 , 0.34 , 0.51 , 0.68 et 1 mm . La figure 5-5 (B) montre les spectres de puissance associés aux impulsions tracées dans la figure 5-5 (A). La principale constatation que l'on peut faire est que l'épaisseur du masque utilisé pour couvrir la structure interdigitale de l'antenne est cruciale dans la réalisation de la mise en forme d'impulsion THz. En effet, lorsque l'on utilise des masques de phase fins (par exemple lorsque l'épaisseur est inférieure à 0.51 mm), nous avons les deux impulsions THz demi-cycles dont les polarités sont opposées mais qui se chevauchent partiellement dans le

temps. Par conséquent, l'utilisation de ces masques implique une réduction de la valeur du champ électrique THz crête, mais aussi une réduction de la durée d'impulsion. Ce phénomène est particulièrement observable lorsque l'on réduit l'épaisseur du masque de 0.51 mm à 0.17 mm.

Par la suite, si nous appliquons des masques dont l'épaisseur est supérieure à 0.51 mm, nous n'observons pas de variations majeures de la valeur du champ électrique THz crête. En revanche, nous continuons d'observer une augmentation de la durée d'impulsion THz. En effet, en continuant à augmenter l'épaisseur du masque, nous augmentons le délai entre la génération des deux impulsions THz demi-cycle, ce qui a pour effet de décaler dans le temps l'apparition du pic négatif de l'impulsion monocycle.

Les modifications que le masque de phase binaire induit sur la forme temporelle des impulsions THz sont également visibles dans le domaine fréquentiel. Si nous observons les différents spectres de puissance dans la figure 5-5 (B), on observe un déplacement vers les hautes fréquences du pic de fréquence du spectre THz lorsque l'on réduit l'épaisseur du masque de phase binaire. Par exemple, le pic de fréquence se situe à 0.23 THz lorsque l'on utilise un masque ayant une épaisseur de 1 mm alors que le même pic de fréquence se situe à 0.46 THz lorsqu'on utilise le masque ayant une épaisseur de 0.17 mm. Ce déplacement du pic de fréquence vers des fréquences supérieures est la conséquence directe de la réduction de la durée de l'impulsion THz. On observe également, que l'amplitude maximale du spectre de puissance augmente en augmentant l'épaisseur du masque utilisé. Enfin, les spectres s'étendent jusqu'à 2.5 THz quelle que soit l'épaisseur du masque utilisé. On remarque la présence d'oscillations dans les spectres qui ont été obtenus en utilisant les masques ayant des épaisseurs de 0.34, 0.68 et 1mm. Ces creux sont causés par les interférences entre les deux impulsions THz distinctes ce qui module le spectre THz avec un espacement de fréquence qui est inversement proportionnel au délai introduit par le masque entre les deux impulsions THz.

5-1-4 : Évaluation de l'augmentation de l'efficacité THz

Nous venons de vérifier que l'application d'un masque de phase binaire sur une antenne interdigitale permet de générer des impulsions THz monocycles symétriques et de faire de la mise en forme d'impulsion THz en modulant la durée d'impulsion THz et l'amplitude du champ électrique crête. Cependant, en introduction, j'ai mentionné que l'application d'un masque de phase binaire permettait également d'augmenter l'efficacité THz de ces émetteurs en augmentant l'énergie THz générée. L'énergie THz est liée à la valeur du champ électrique crête et à la durée d'impulsion par la formule (4-8) [162]. Ainsi, l'application d'un masque de phase binaire plutôt qu'un masque opaque sur la structure interdigitale permet d'augmenter l'énergie THz en augmentant la durée de l'impulsion THz tout en maintenant constante la valeur du champ électrique THz crête.

Lors du déroulement de ces expériences, nous ne disposions que d'un détecteur pyroélectrique pour mesurer l'énergie THz. Ce type de détecteur ne peut généralement pas mesurer des énergies inférieures à 0.1 μJ . Il est à noter qu'une erreur a été insérée lors de la fabrication de l'émetteur de GaAs à structure interdigitale. En effet, lors de la fabrication d'antennes interdigitales, il est très important que la distance entre l'électrode principale (celle qui relie tout le peigne d'électrodes et qui va servir à la connexion des fils électriques) et le bout du peigne d'électrodes soit au moins égale à la distance inter-électrodes du peigne d'électrodes. Il se trouve que dans notre cas, cette distance n'était que de 1 mm (comparée aux 3 mm de la distance inter-électrodes). Ainsi, nous ne pouvons pas appliquer des tensions supérieures à 1000 V, ce qui équivaut à un champ de polarisation de l'antenne de 3.3 kV/cm, sans risquer de briser l'antenne par l'impact d'ionisation. Par conséquent, la valeur de l'énergie des impulsions THz n'était pas suffisamment grande pour pouvoir être directement détectée par un détecteur pyroélectrique.

Afin de pouvoir faire une comparaison de l'énergie THz générée avec les différents masques, nous avons intégré les spectres de puissance obtenus dans les figures 5-4 (B) et 5-5 (B). La valeur des spectres de puissance intégrés est proportionnelle à l'énergie THz. La figure 5-6 montre l'évolution de la valeur des spectres de puissance

intégrés en fonction de l'épaisseur des masques. La ligne noire correspond à la valeur du spectre de puissance intégré du masque opaque. Sa valeur est de 0.54 U. A.. Je rappelle que même si les signaux des spectres de puissance sont en unités arbitraires, leurs valeurs sont relatives. Ainsi, les valeurs des spectres de puissance intégrés peuvent être comparées. Nous observons que les valeurs des spectres de puissance intégrés augmentent quand on augmente l'épaisseur du masque. Cela est vrai pour une épaisseur de masque allant jusqu'à 0.68 mm. Par la suite, nous atteignons un plateau qui provient du fait que même si nous continuons à augmenter le délai (donc l'épaisseur du masque) entre les deux impulsions THz, nous ne modifions plus la forme temporelle de l'impulsion THz.

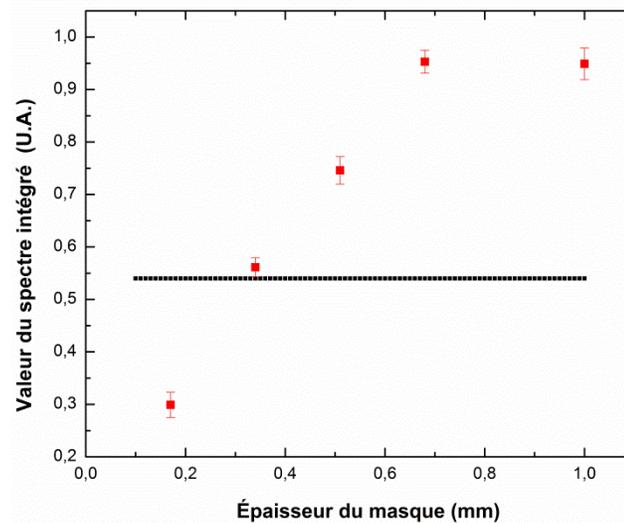


Figure 5-6 : Variation des valeurs des spectres de puissance intégrés en fonction de l'épaisseur des masques. La ligne noire correspond à la valeur de l'intégral du spectre de puissance obtenue avec le masque opaque.

Nous observons également que seule la valeur du spectre intégré du masque de 0.17 mm est inférieure à la ligne noire. Cela signifie qu'en travaillant avec des masques de phase binaires ayant une épaisseur supérieure ou égale à 0.38 mm, nous sommes en mesure de faire de la mise en forme d'impulsion THz, mais en plus, nous augmentons l'efficacité THz de l'APCGO interdigitale. La valeur maximale des spectres de puissance intégrés a été obtenue avec le masque d'une épaisseur de 0.68 mm. Cette valeur est de 0.95 U.A.. En calculant le ratio entre cette valeur et celle obtenue avec le masque opaque, nous obtenons une augmentation maximale de l'efficacité THz de 1.76. En théorie on

aurait dû obtenir un ratio de 2 puisque l'utilisation du masque de phase binaire nous permet de doubler la surface excitable de l'antenne. Cependant, je rappelle que notre antenne avait une structure géométrique très particulière puisque seulement 3 antennes sur 7 étaient couvertes par le masque de phase. Ainsi, l'augmentation de l'efficacité THz de notre source ne pouvait pas être supérieure à $7/4$ ce qui correspond à une valeur de 1.75. Cette valeur est en accord avec l'augmentation d'efficacité THz que nous avons observée expérimentalement.

5-2 : Méthode de fabrication de l'antenne de grande ouverture de ZnSe à structure interdigitale

Dans cette section, nous allons décrire la méthode de fabrication qui a été utilisée pour fabriquer les antennes de grandes ouvertures de ZnSe. Avant d'aller dans la salle blanche, il a fallu définir les dimensions de l'antenne. Pour faire cela, il a fallu prendre en considération plusieurs paramètres. Par exemple, nous ne pouvons pas découper des lames de quartz longues de 3 cm avec une largeur inférieure à 1 mm. Cependant, le paramètre le plus important à définir est la distance inter-électrodes des doigts d'électrodes de la structure interdigitale. Avant de définir une distance inter-électrodes, il faut savoir quelle est la tension maximale que nous avons à notre disposition et aussi quel est le champ maximum de polarisation que nous pouvons appliquer.

5-2-1 : Étude de la génération d'ondes THz à partir d'une APCGO de ZnSe placée dans une chambre à vide

Nous avons mentionné dans les chapitres 1, 2 et 3 que nous devons appliquer la tension la plus haute possible entre les électrodes de l'antenne de ZnSe afin de générer des impulsions THz intenses. Or la rigidité diélectrique de l'air (3.3 kV/mm) est très inférieure à celle d'un cristal de ZnSe (8 kV/mm). Le moyen le plus simple pour ne pas être limité par la rigidité diélectrique de l'air est de travailler dans le vide. En effet, le phénomène responsable de l'arc électrique qui se crée lorsque nous appliquons un champ électrique dont la valeur est supérieure à la rigidité diélectrique d'un gaz, est l'ionisation des molécules par la collision entre un électron, ayant une grande énergie cinétique, et

des molécules qui composent le gaz. Ainsi, on peut implicitement comprendre que moins il y a de molécules présentes entre les deux électrodes, moins la probabilité de collision entre un électron et une molécule est grande. Par conséquent, dans le cas d'une faible pression, il faut que l'électron gagne plus d'énergie cinétique que dans le cas de la pression atmosphérique pour créer un arc électrique. Cette augmentation d'énergie cinétique est obtenue en augmentant la valeur de champ électrique. La figure 5-7 montre l'évolution de la rigidité diélectrique de l'air en fonction de la pression.

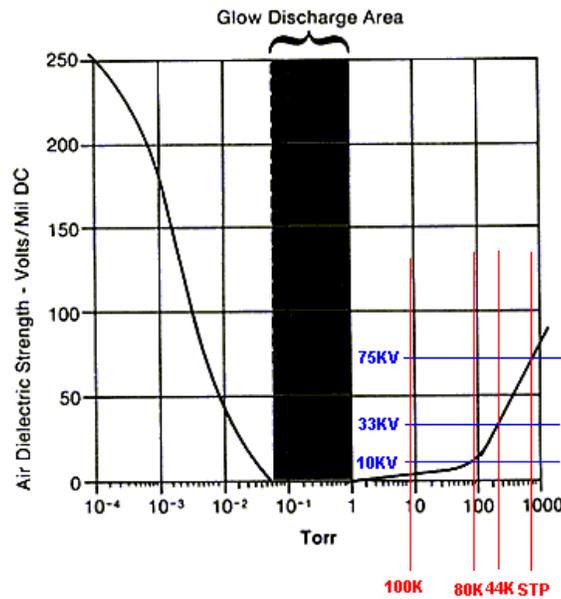


Figure 5-7: Variation de la rigidité diélectrique de l'air en fonction de la pression pour une distance inter-électrodes d'un pouce [223]

À partir de la figure 4-7, qui est obtenue à partir de la loi de Paschen [224], nous voyons clairement que si nous travaillons à des pressions inférieures à 10^{-4} Tors, la rigidité diélectrique du vide sera nettement supérieure à celle du cristal de ZnSe (100 kV/cm pour le vide contre 80 kV/cm pour le ZnSe).

Ainsi, nous avons testé la capacité d'une antenne de ZnSe à générer des ondes THz lorsqu'elle est placée dans une chambre à vide. L'antenne a été fabriquée en déposant des électrodes avec de la peinture d'argent. La distance inter-électrodes est de 380 μm . Le cristal de ZnSe monocristallin est identique à celui qui a été étudié au chapitre 3. L'antenne est polarisée par une source de tension DC. La description du système de détection est identique à celle qui a été décrite dans la section 4-2-1.

L'élément supplémentaire est la chambre à vide qui est reliée à une pompe turbo afin de faire un vide d'environ 10^{-6} Tors. Les dimensions de la chambre sont de 4 pouces de long et 1 pouce de diamètre. La fenêtre d'entrée, transparente à 400 nm, est en quartz. La fenêtre de sortie, transparente aux ondes THz, est en silicium haute résistance [225]. Un cristal de BBO génère la seconde harmonique du laser amplifié kHz Ti :Saphir de ALLS. La détection des ondes THz a été réalisée par échantillonnage E.O à partir d'un cristal de ZnTe orienté (110) de 1 mm d'épaisseur.

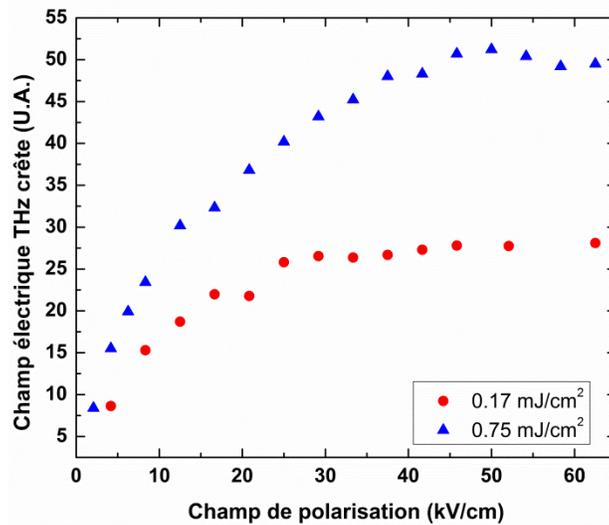


Figure 5-8: Variation du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation. L'antenne est illuminée avec des fluences de 0.17 et 0.75 mJ/cm² à la longueur d'onde de 400 nm

La figure 5-8 montre le comportement du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation de l'antenne. L'antenne est excitée à la longueur d'onde de 400 nm par deux valeurs de fluence (0.17 et 0.75 mJ/cm²). Dans les deux cas, nous observons la saturation du champ électrique THz à partir d'un champ de polarisation de 20 kV/cm. La saturation du champ électrique THz en fonction du champ de polarisation est contraire à ce qui a été observé dans l'air (voir figure 4-7). Nous attribuons ce phénomène à l'augmentation de température au sein du substrat de l'antenne provoquée par la source de tension DC. Cet échauffement est augmenté dans le vide du fait de l'absence de refroidissement du substrat par convection. L'augmentation de température au sein du cristal engendre une diminution de la mobilité des charges [226, 227]. Nous avons vu au chapitre 3 que la fluence de saturation des antennes est inversement proportionnelle à la

mobilité des charges. Il faut se rappeler que la valeur de la fluence de saturation a été déterminée au chapitre 3 à 0.15 mJ/cm^2 . La fluence d'excitation est de 0.17 mJ/cm^2 et 0.75 mJ/cm^2 . Nous avons établi aux chapitres 3 et 4 que lorsque la fluence d'excitation est proche de la fluence de saturation, alors les variations de champ électrique THz sont fortement sensibles aux variations de fluence. À contrario, quand la fluence d'excitation est très supérieure à la fluence de saturation, le champ électrique THz varie très peu avec la fluence. Dans notre cas, il faut avoir un raisonnement un peu différent. L'équation (3-22) démontre que le champ électrique THz crête dépend de la fluence, mais est aussi inversement proportionnel à la fluence de saturation. Dans notre cas, lorsque l'antenne est excitée avec une fluence de 0.17 mJ/cm^2 , une faible augmentation de la fluence de saturation introduit une diminution plus prononcée du champ électrique THz crête que lorsque nous excitons l'antenne avec une fluence de 0.75 mJ/cm^2 . Ainsi, en considérant que l'échauffement de l'antenne est principalement causé par la dissipation de la chaleur au sein du cristal par effet Joule et non pas par la fluence d'excitation, alors l'augmentation de la fluence de saturation est identique dans les deux cas. Cependant, l'influence de l'augmentation de la fluence de saturation est beaucoup plus importante lorsque la fluence d'excitation de l'antenne est de 0.15 mJ/cm^2 que lorsqu'elle est de 0.75 mJ/cm^2 . Ainsi, nous observons une saturation plus prononcée du champ électrique THz crête lorsque l'antenne est excitée à 0.15 mJ/cm^2 que lorsqu'elle est excitée à 0.75 mJ/cm^2 .

Nous avons démontré que placer l'antenne de ZnSe dans une chambre à vide n'est pas une solution envisageable pour que le champ de polarisation ne soit pas limité par la rigidité diélectrique de l'air. Il est évident que la solution idéale serait de placer l'antenne dans un cryostat afin de travailler sous vide et de refroidir le cristal. Cela serait d'autant plus intéressant que la mobilité des électrons à la température de 77° K est supérieure à la mobilité des électrons à la température de 300° K . Ainsi, nous pourrions générer des impulsions THz intenses mais aussi avoir une source THz possédant une meilleure efficacité. Cependant, avant de placer l'antenne dans un cryostat, qui est une solution très onéreuse, il faut pouvoir déterminer avec précision quelle valeur d'énergie THz nous pouvons générer à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe.

5-2-2 : L'encapsulation de l'antenne

Afin de ne pas avoir la valeur du champ de polarisation de l'antenne limitée par la rigidité diélectrique de l'air, nous avons essayé d'encapsuler l'antenne de ZnSe. L'encapsulation consiste à déposer une couche mince d'un matériau diélectrique tel que du SiO₂ ou du plastique sur un autre matériau. Cette technique est couramment utilisée dans l'industrie des semi-conducteurs afin de protéger les composants contre les dommages et les différentes attaques chimiques que peut provoquer par exemple la vapeur d'eau contenue dans l'air. L'encapsulation rend la performance des matériaux encapsulés plus stables dans le temps [228].

La technique d'encapsulation a également été utilisée sur les antennes photoconductrices pour générer des ondes THz [229]. Il a été démontré qu'une antenne de GaAs encapsulée par une fine couche de Si₃N₄ (nitrure de silicium) pouvait générer des champs électriques THz de plus grandes amplitudes que ceux qui sont générés par une antenne de GaAs non encapsulée. L'augmentation du champ électrique a été attribuée à l'augmentation de la rigidité diélectrique du cristal de GaAs. Ainsi, des tensions plus grandes ont été appliquées aux bornes de l'antenne engendrant une augmentation du champ électrique rayonné.

Plus récemment, il a été démontré qu'une antenne PC passivée et encapsulée génère des champs électriques THz de plus grandes amplitudes que ceux qui sont générés par une antenne PC de GaAs [230]. L'augmentation de la valeur du champ électrique, THz, pour une fluence fixe, est attribuée à la diminution de la densité de sites du piégeage des électrons engendrant une augmentation de la valeur du photocourant et donc du champ électrique THz pour une antenne passivée comparée à une antenne non passivée. D'autre part, il a été mis en évidence qu'en choisissant adéquatement l'épaisseur de la couche de Si₃N₄ servant à l'encapsulation de l'antenne, la couche de Si₃N₄ devient une couche antireflet et diminue fortement la réflexion de l'impulsion laser.

Afin de tester l'encapsulation sur les antennes de ZnSe, nous avons fait fabriquer une antenne PC de ZnSe ayant une distance inter-électrode de 400 μm par laboratoire CRN2. Les électrodes sont en Ti/Au. Des tentatives de dépositions de fines couches de

SiO₂ puis de Si₃N₄ ont été réalisées. Ces matériaux ont été choisis, car ils ont une rigidité diélectrique très supérieure comparée à celles de l'air et du ZnSe [231]. Malheureusement, pour une raison inexplicée, ces tentatives n'ont pas été couronnées de succès. Il se trouve que les couches de SiO₂ et de Si₃N₄ laminaient sur le substrat de ZnSe. Même en réduisant l'épaisseur de la couche mince à 100 nm, nous n'obtenions pas une bonne adhérence. Finalement, afin d'obtenir une bonne adhérence sur le substrat de ZnSe, une couche de photo-résine SU-8, d'une épaisseur de 4 µm, a été appliquée sur la couche de Si₃N₄.

La figure 5-9 montre l'évolution du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation générée par une antenne de ZnSe encapsulée. La longueur d'onde d'excitation est de 400 nm et la fluence est de 0.20 mJ/cm². Le dispositif expérimental est presque identique à celui qui a été utilisé dans la section 5-2-2. Les deux seules différences sont le taux de répétition du laser et la source de tension. Le laser avait un taux de répétition de 2.5 kHz alors que la source de tension générant une tension AC était composée d'un générateur de fonction couplé à un amplificateur de tension pouvant monter jusqu'à 4000 V. Il est à noter que la fréquence de la tension AC était de 337 Hz et que le signal sortant du générateur de fonction était également utilisé comme "hacheur électronique" en envoyant son signal à l'amplificateur "lock in" pour réaliser la détection des ondes THz. La taille du faisceau laser sur l'antenne de ZnSe est de 1.5 mm (1/e²).

On observe une dépendance linéaire du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation pour des valeurs allant jusqu'à 56 kV/cm. Il n'a pas été possible d'appliquer des valeurs de champs de polarisations supérieures puisque nous avons brisé l'antenne. Avec la technique d'encapsulation, nous n'observons aucune saturation du champ électrique THz crête. Nous avons placé une ligne bleue verticale qui signale la valeur de la rigidité diélectrique du GaAs (10 kV/cm) et une ligne verticale rouge qui signale la rigidité diélectrique de l'air (47 kV/cm). La rigidité diélectrique de l'air a été déterminée en plaçant deux électrodes plates de cuivre dans l'air séparées par une distance de 400 µm. L'arc électrique qui signifie l'ionisation des molécules de l'air est apparu pour une tension de 1880 V. Ainsi nous voyons qu'à l'aide d'une encapsulation

sur l'antenne, nous sommes en mesure d'appliquer des champs de polarisation qui sont supérieurs à la rigidité diélectrique de l'air.

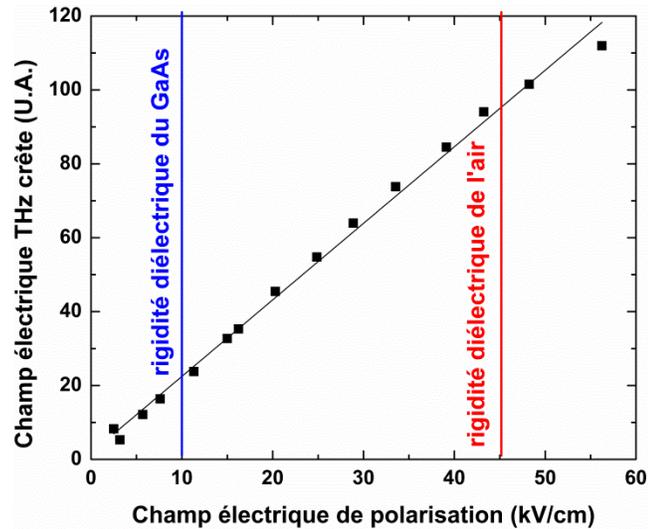


Figure 5-9: Variation du champ électrique THz crête en fonction du champ de polarisation pour une antenne de ZnSe encapsulée par des couches de Si_3N_4 et Su-8. La fluence est de 0.2 mJ/cm^2 à la longueur d'onde de 400 nm. La ligne bleue représente la rigidité diélectrique d'une antenne de GaAs et la ligne rouge représente la rigidité diélectrique de l'air.

Le bris de l'antenne a été constaté pour un champ de polarisation de 56 kV/cm. Ce champ est inférieur à la rigidité diélectrique du ZnSe. La figure 5-10 montre les dommages causés à l'antenne. Comme nous pouvons le voir, la chaleur dégagée par effet joule a déformé la couche d'encapsulation. Nous pensons que c'est la couche de photo-résine qui a été endommagée puisque cette dernière est un matériau ayant une très faible conductivité thermique (0.2 W/mK). D'autre part, nous pouvons voir que les électrodes ont également été endommagées. En observant attentivement, on s'aperçoit que c'est uniquement l'or qui a été endommagé. Nous pensons que sous l'effet de la chaleur et de l'action du champ de polarisation de l'or a migré créant ainsi un court-circuit entre les deux électrodes et ainsi empêchant la génération d'ondes THz [232].

Nous venons de voir que l'encapsulation de l'antenne peut être une solution très intéressante puisqu'elle permet de ne pas avoir le champ de polarisation de l'antenne limité par la rigidité diélectrique de l'air mais aussi de stabiliser ses performances dans le temps. Cependant, il reste encore beaucoup de travail pour développer cette technique sur

un substrat de ZnSe afin d'obtenir des bonnes propriétés d'adhésion et diélectriques de la couche déposée sur l'antenne. Pour des raisons de temps et de coûts, nous avons préféré mettre de côté cette solution.

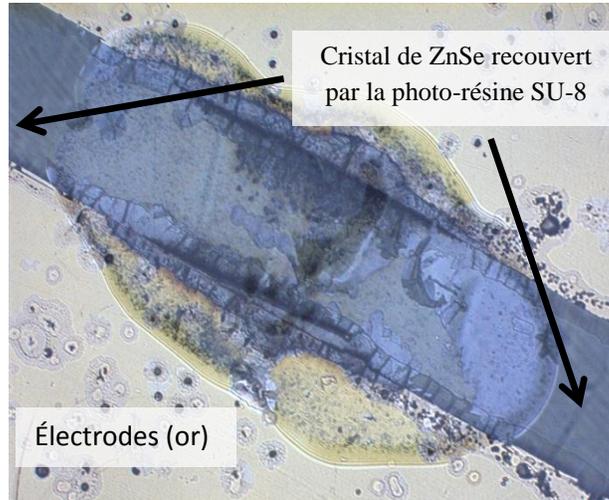


Figure 5-10: Photo montrant les dommages subis par l'antenne de ZnSe encapsulée après avoir appliqué un champ de polarisation de 56 kV/cm et une fluence de 200 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$.

5-2-3 : Choix du motif de l'antenne

À l'INRS-EMT, dans le laboratoire LSF, nous disposons d'une gamme de lasers amplifiés Ti :Saphir qui nous permettent de générer suffisamment d'énergie optique à la longueur d'onde de 400 nm pour illuminer une très grande surface de cristal de ZnSe à une très haute fluence. Cependant, nous voulons travailler avec des cristaux fins afin de limiter l'absorption des ondes THz par le cristal de ZnSe. Le cristal de ZnSe est très peu absorbant aux basses fréquences THz (3.5 cm^{-1} à 0.5 THz) mais est moyennement absorbant pour de hautes fréquences THz (12 cm^{-1} à 2 THz) [233, 234]. Ainsi, nous avons voulu limiter l'épaisseur des cristaux à 1 mm. La surface maximale des cristaux que nous avons pu acheter est de 9 cm^2 (un carré de 3 cm de côté).

La distance inter-électrodes a été choisie en fonction de la source de haute tension que nous avons en notre possession. Cette source est capable de délivrer des impulsions de haute tension négative allant jusqu'à -7 kV. Nous rappelons que la rigidité diélectrique du ZnSe est de 80 kV/cm. Ainsi, la distance inter-électrodes maximale avec laquelle nous

pouvons travailler est de 900 μm . Pour la fabrication de la première antenne, nous avons fixé la distance inter-électrodes à 800 μm . La figure 4-11 montre le motif utilisé lors de la fabrication des premières antennes.

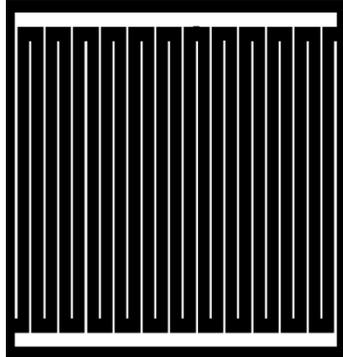


Figure 5-11: Motif de l'antenne interdigitale de grande ouverture de ZnSe. L'espace inter-électrodes est de 0.8 mm. La largeur des électrodes est de 200 μm et la longueur est de 23 mm.

5-2-4 : Fabrication des antennes interdigitales de ZnSe

Dans cette section, nous allons décrire la méthode de fabrication des antennes interdigitales de ZnSe. Nous avons fabriqué toutes les antennes utilisées dans la suite du chapitre au laboratoire LMF situé au sein de l'École polytechnique de Montréal. Le protocole de fabrication est le suivant :

- Photolithographie
- Dépôts des électrodes
- Technique du lift off

La technique de photolithographie est la plus employée pour l'élaboration de microstructures [235]. Elle consiste à reproduire le motif d'un masque optique sur une résine photosensible. Lorsque ce type de résine est exposée à un rayonnement (UV en général), sa chimie change de telle façon que la partie exposée (ou inversement la partie ombrée selon la résine choisie) puisse être dissoute dans une solution de développement. Le protocole pour réaliser la photolithographie en utilisant une résine négative AZ5214 EIR est le suivant :

- (1) Nettoyer l'échantillon en le rinçant dans l'acétone puis le méthanol et enfin dans l'eau distillée. Faire sécher l'échantillon à l'aide de gaz d'azote.

- (2) Placer l'échantillon sur une plaque chauffante à 175 °C pendant au moins 15 minutes.
- (3) Placer l'échantillon sur la centrifugeuse. Déposer la résine sur toute la surface du substrat et le faire tourner à 4000 tours par minute pendant 30 secondes. L'épaisseur de la résine est d'environ 1.5 µm.
- (4) Placer l'échantillon sur une plaque chauffante en mettant la face recouverte de résine en haut. Faire un recuit à 110° C pendant 1min et 30s. Ce recuit a pour but de durcir la résine.
- (5) Placer l'échantillon dans l'aligneuse de masque (Karl Suss MA-4). Aligner l'échantillon sous le masque négatif. Faire le contact entre le masque et l'échantillon. Puis exposer au rayonnement d'une source UV ($\lambda = 350nm$) pendant 10 s avec une puissance de 4.1 mW. Le temps d'exposition est primordial pour la réussite du processus. Par exemple, un temps d'exposition trop long rendrait un mauvais contraste entre le motif et le reste de la résine. Il est à noter que le masque a été imprimé sur un transparent par la compagnie Mardigraph. L'utilisation d'un tel masque réduit la résolution (environ 20 µm) que l'on peut obtenir comparée à la résolution que l'on peut obtenir avec l'utilisation d'un masque de chrome, mais nous offre plus de flexibilité du fait de son coût réduit.
- (6) Placer l'échantillon sur une plaque chauffante à 104° C pendant 1min et 20s pour un nouveau recuit.
- (7) Replacer l'échantillon dans l'aligneuse sans le masque et l'exposer pendant 30 s. les étapes (6) et (7) ont pour buts de rendre la résine négative et ainsi inverser l'image.
- (8) Plonger l'échantillon dans une solution de MF19. Agiter pendant 1 min, retirer et rincer à l'eau distillée. La solution de MF19 est une solution de développement qui dissout la résine qui n'a pas été exposée la première fois.

À la fin de l'étape de la photolithographie, nous avons notre cristal de ZnSe recouvert par la résine avec des ouvertures à l'endroit où l'on veut déposer le métal pour faire les électrodes. L'étape suivante est donc la métallisation de l'antenne. Le dépôt métallique a été réalisé par évaporation par faisceau d'électrons. Le principe consiste à déposer dans le vide des fines couches métalliques par dépôt physique en phase vapeur. Un faisceau

d'électrons, créé par un filament chaud, est dirigé dans un creuset où est contenu le métal à évaporer. Le métal, sous l'effet de la chaleur, se transforme en phase vapeur, et peut se propager partout dans la chambre à vide. Ainsi, toute la surface du substrat est couverte par le métal. Un manuel très détaillé indique le processus à suivre tout au long du dépôt. Le paramètre très important à respecter est d'avoir un taux de déposition compris entre 1 et 1.5 angströms par seconde. Dans un premier temps, 20 nm de chrome ont été déposés. Puis dans un second temps 150 nm d'or ont été déposés. La couche de chrome est une couche d'adhésion et permet à l'or d'adhérer au cristal de ZnSe. D'autre part, il était prévu aussi d'utiliser le chrome pour faire diffuser des atomes de chrome au sein de la structure du ZnSe après un recuit thermique afin de faciliter la création d'un contact ohmique [236]. Les contacts ohmiques sont très importants pour la génération d'ondes THz par les antennes PC puisqu'ils augmentent l'efficacité des antennes et l'intensité des impulsions THz générées [237, 238]. La figure 5-12 décrit les principales étapes pour la déposition des électrodes sur le substrat de ZnSe.

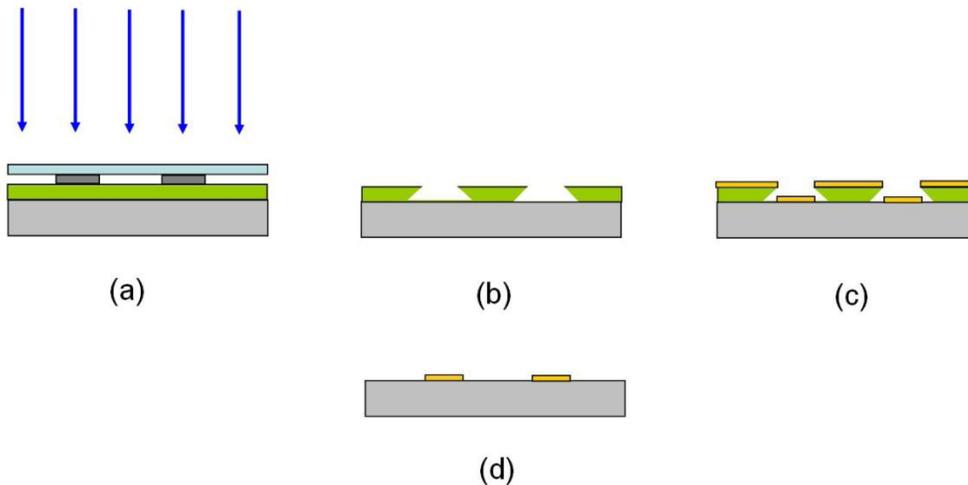


Figure 5-12: Illustration du principe de fabrication des antennes interdigitales de ZnSe. (a) Première exposition avec le masque optique et une résine négative. (b) État de la résine après le processus complet de photolithographie. (c) Dépôt de couche mince métallique par évaporation par faisceau d'électrons. (d) Échantillon après lift-off

5-3 : Caractérisation de l'APCGO interdigitale de ZnSe

Dans cette section, nous allons caractériser la source THz qui est l'APCGO interdigitale de ZnSe qui nous a permis de générer des impulsions THz intense. Nous allons déterminer le comportement de l'énergie THz en fonction du champ de polarisation et de la fluence. Nous allons mettre en évidence la mise en forme d'impulsions THz lorsque la structure interdigitale sera recouverte d'un masque de phase binaire.

5-3-1 : La source de haute tension

La source de haute tension que l'on a utilisée pour polariser les APCGOs interdigitales de ZnSe a été conçue par la société Medox Electro-optic INC. Cette source, dont les impulsions peuvent descendre jusqu'à -7kV, a été initialement conçue pour piloter les cellules de Pockels des lasers amplifiés [239]. Ainsi, dans le laboratoire LSF, nous disposons de plusieurs sources "Medox". Nous avons donc recyclé une de ces sources pour polariser nos antennes.

La source "Medox" est constituée de deux parties. La première partie contient les circuits de synchronisation et la source de haute tension CC et le signal de commutation de la triode. Cette partie est reliée à l'aide de trois câbles (un pour la haute tension CC, un pour le chauffage de la triode, un pour le signal de commutation) à la seconde partie. Ce sont les éléments insérés dans la seconde partie qui vont générer l'impulsion de haute tension. La seconde partie doit être le plus proche possible de notre antenne puisque l'impulsion de haute tension se déforme lors de la propagation dans des fils électriques.

Le principe de la source Medox est de charger un condensateur par l'intermédiaire de la source de haute tension CC. L'impulsion de haute tension est créée en fermant le commutateur, placé en aval du condensateur, qui va permettre au condensateur de se décharger. L'impulsion de haute tension est négative parce que la borne positive du condensateur est reliée à la masse. Le commutateur est une triode plane. La triode a été choisie comme commutateur car elle a un temps de fermeture très court (2.5 ns) qui détermine le temps de montée (qui pour nous est une descente) de la tension [240] et qu'elle peut fonctionner à un haut taux de répétition (dans notre cas, nous l'avons testée à

un taux de répétition de 10 kHz) [241]. Le schéma de principe de la source Medox a été placé dans l'annexe 1.

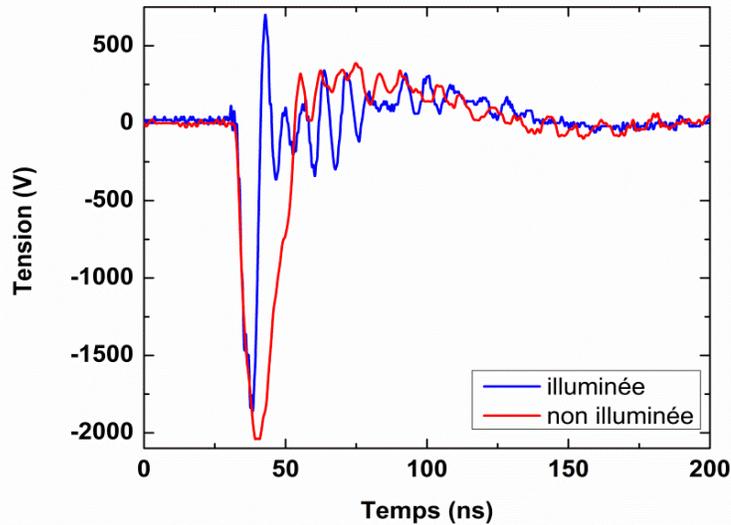


Figure 5-13: Formes temporelles des impulsions de haute tension (-2.1 kV) générées par la source Medox mesurées aux bornes de l'antenne de ZnSe quand elle est illuminée et quand elle n'est pas illuminée.

Le temps de décharge du condensateur délimite normalement la durée de l'impulsion de haute tension. Dans notre cas, la durée de l'impulsion de haute tension serait de quelques microsecondes. Cependant, pour faire fonctionner des cellules de Pockels, il faut des durées d'impulsions d'environ 20 ns ou moins. Pour réduire le temps de la durée de l'impulsion haute tension, un ensemble de 4 résistances et de 4 bobines saturables sont placées dans le circuit électronique. Les bobines associées aux résistances vont forcer la tension à chuter plus rapidement en limitant le courant. La figure 5-13 montre la forme temporelle de l'impulsion de haute tension générée par la source Médox.

Les formes d'impulsions ont été mesurées par des sondes de haute tension Lecroy PPE5kV qui ont une largeur de bande de 400 MHz. Nous observons différentes formes d'impulsions quand l'antenne est illuminée et lorsqu'elle n'est pas illuminée. Lorsque l'antenne est illuminée, la durée de l'impulsion diminue jusqu'à 7.7 ns. La réduction de la durée d'impulsion est provoquée par le fait que nous rendons conductrice l'antenne en l'illuminant. Ainsi, nous court-circuitons l'antenne, ce qui provoque la baisse brutale de la tension. D'autre part, on peut voir que la tension crête lorsque la tension est illuminée est inférieure à la tension crête quand l'antenne n'est pas illuminée. Cette diminution est

attribuée à la largeur de bande de la sonde haute tension qui est de 400 MHz. Ainsi, la sonde n'est pas assez rapide pour lire toutes les variations de la forme temporelle de l'impulsion de haute tension quand l'antenne est illuminée.

La figure 5-13 nous montre également qu'il est très important de bien synchroniser l'impulsion laser avec l'impulsion de haute tension. Étant donné la très grande différence de durée entre l'impulsion laser et l'impulsion haute tension, il faut bien faire attention à ce que l'impulsion laser frappe l'antenne au moment où la tension aux bornes de l'antenne est la plus grande. La synchronisation se fait dans un premier temps optiquement. Nous plaçons une photodiode rapide devant l'antenne. Nous branchons la photodiode avec un câble BNC à un oscilloscope. La longueur du câble BNC doit être égale à la longueur du fil de la sonde haute tension afin de limiter la différence de délai temporel entre les deux signaux. Par la suite, nous changeons le délai du signal de commutation afin de faire concorder temporellement le signal de l'impulsion de haute tension avec le signal de la photodiode. Maintenant, les deux impulsions vont arriver sur l'antenne en même temps. Cependant, il faut faire une synchronisation plus fine afin d'optimiser la génération des ondes THz par l'antenne photoconductrice. Si nous faisons une détection des ondes THz par échantillonnage EO, il suffit simplement de changer le délai de commutation afin de maximiser la valeur du champ électrique THz crête qui peut être lue directement sur l'amplificateur "lock in". Si la détection THz est effectuée à l'aide d'un détecteur pyroélectrique, alors il faut changer le délai de commutation pour maximiser le signal du détecteur pyroélectrique. Il est à noter que le délai du signal de commutation a dû être changé avec un pas temporel de 10 ps, à l'aide d'un générateur de retard numérique Stanford Research DG645, afin d'optimiser le signal THz.

5-3-2 : La mise en forme d'impulsions THz

Le premier résultat obtenu avec l'APCGO interdigitale de ZnSe est la mise en forme d'impulsions THz. Pour obtenir ce résultat, nous avons procédé exactement de la même façon que lors de la section 5-1. Nous avons appliqué différents masques sur la structure interdigitale de l'antenne. Ainsi, nous avons été capables de générer différentes

formes d'impulsions THz avec des formes allant d'impulsions asymétriques demi-cycles jusqu'à des impulsions symétriques monocycles.

Pour réaliser ces expériences, nous avons utilisé le laser amplifié Ti :Saphir multi-kHz du laboratoire LSF (3.5 mJ, 2.5 kHz, 800 nm, 35 fs). Les cristaux de ZnSe polycristallins ont été achetés à la compagnie American Elements. La méthode de fabrication des antennes est celle qui a été expliquée dans la section 5-2-4. Le montage expérimental est un montage pompe sonde. La détection des ondes THz est faite par échantillonnage EO. Le cristal de ZnTe a une orientation de (110) et une épaisseur de 1 mm. La seconde harmonique du laser Ti :Saphir, est générée par un cristal de BBO de 600 μm d'épaisseur. Après l'optimisation de l'orientation du cristal de BBO, nous obtenons des impulsions à 400 nm ayant une énergie maximale de 600 μJ . La taille du faisceau sur l'antenne est de 0.8 cm. L'antenne est partiellement illuminée. Nous n'avons pas augmenté la taille de faisceau, car l'énergie laser à la longueur d'onde de 400 nm n'est pas suffisante pour illuminer l'antenne avec une fluence qui sera au moins égale à la fluence de saturation de l'antenne. La tension de polarisation de l'antenne est générée par la source Medox. Le masque est composé de 13 lames de verre d'une largeur d'1 mm et d'une longueur de 30 mm. Deux épaisseurs de lames ont été testées (0.65 et 1 mm). Il est à noter que nous n'avons pas pu tester d'autres épaisseurs de masque, car il a été impossible de découper des lames de verre faisant 1 mm de large et 30 mm de long avec des épaisseurs de verre plus petites. Afin de réaliser un masque opaque, les lames de verre ont été recouvertes de plusieurs couches de peinture noire. Un support en aluminium a été fabriqué pour faire tenir les lames de verre. Le support du masque a été monté sur une translation manuelle afin de pouvoir faire un réglage fin sur l'alignement du masque. La figure 5-14 montre le schéma du montage expérimental.

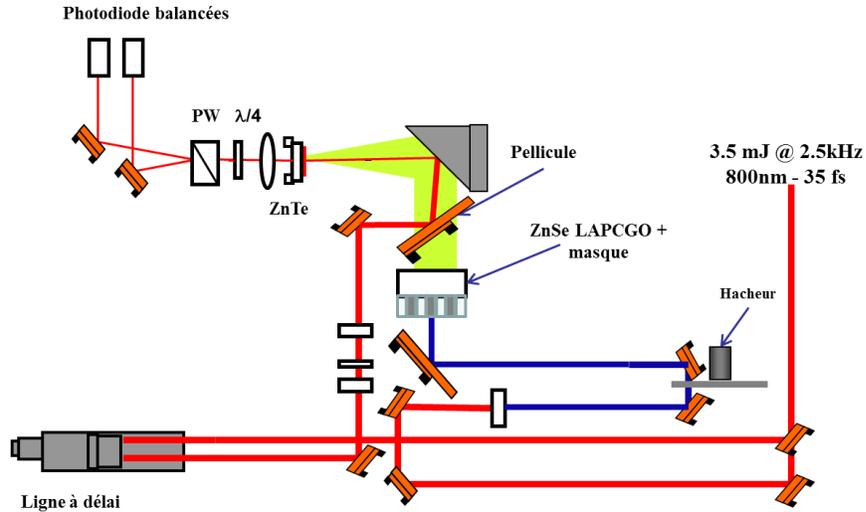


Figure 5-14: Illustration du montage expérimental permettant la détection par échantillonnage EO de la mise en forme d'impulsions THz à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe

La figure 5-15 (A) montre la mise en forme d'impulsions THz obtenue en appliquant des masques binaires sur la structure interdigitale de l'APCGO de ZnSe. La fluence d'excitation est de $200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. La tension de polarisation est de 800 V ce qui correspond à un champ de polarisation de 10 kV/cm. On observe la génération d'une impulsion THz asymétrique et demi-cycle lorsque l'on applique le masque opaque. Cette forme est très similaire à celle que l'on a obtenue dans la figure 4-4 pour une APCGO de ZnSe polycristallin. En remplaçant le masque opaque par un masque de phase binaire, la forme temporelle de l'impulsion THz passe d'une impulsion THz asymétrique demi-cycle à une impulsion THz symétrique monocycle. On observe également une diminution de la durée de l'impulsion THz monocycle en abaissant l'épaisseur du masque de phase binaire. On peut également remarquer que la valeur du champ électrique crête de l'impulsion THz générée avec le masque opaque est légèrement inférieure à celle générée avec le masque de phase binaire ayant une épaisseur d'1 mm. En principe, nous ne devrions pas observer cette différence. Cette différence peut s'expliquer par le fait que l'antenne a subi des dommages au niveau des électrodes. Nous avons constaté la fusion des électrodes provoquée par l'échauffement thermique de ces dernières par effet joule. La dégradation des électrodes avait entraîné une diminution du champ électrique THz.

Une image placée en annexe 2 montre les dégâts causés aux électrodes apparus au cours des expériences.

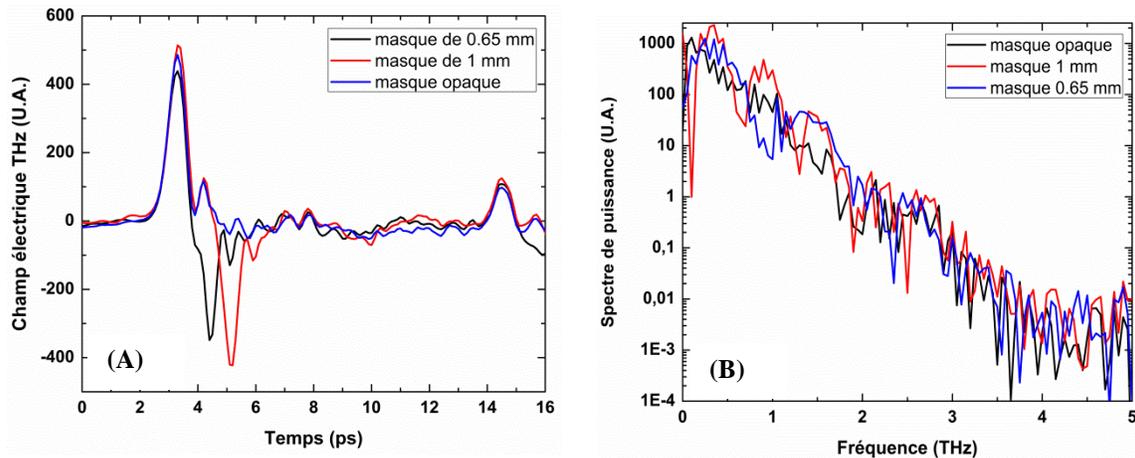


Figure 5-15: (A) Formes temporelles des impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe recouverte par un masque opaque et des masques de phases binaires ayant une épaisseur de 0.65 et 1mm. La fluence est de 0.2 mJ/cm^2 et le champ de polarisation est de 10 kV/cm . (B) Transformées de Fourier associées aux impulsions obtenues dans (A)

La figure 5-15 (B) montre les spectres de puissance obtenus par transformée de Fourier des formes temporelles des impulsions THz tracées dans la figure 5-15 (A). Nous observons que chaque spectre s'étend jusqu'à 3.5 THz environ avec un niveau de signal très supérieur au niveau de bruit. Cependant, on peut qualifier ces sources de sources THz de basses fréquences THz puisque les principales composantes fréquentielles des trois spectres sont comprises entre 0.1 et 1 THz. Ces spectres de puissances sont similaires aux spectres obtenus avec des APCGOs de GaAs. Cependant, ces spectres sont très différents des spectres obtenus avec les autres sources de radiation THz intenses comme les sources de ZnTe et LiNbO₃ qui ont leurs principales composantes fréquentielles comprises entre 0.5 et 2 THz [103, 112] mais surtout ce spectre est très différent de celui qui est obtenu avec les sources de plasma laser à deux couleurs qui ont leurs principales composantes fréquentielles comprises entre 5 et 75 THz [113, 121]. Les APCGO ont cette particularité de générer des impulsions THz comprenant des très basses fréquences THz. Ce type de sources peut avoir des applications uniques dans l'étude de l'interaction entre une impulsion THz intense avec la matière du fait de son très grand potentiel pondérateur. Enfin, on observe également

que les emplacements des pics de fréquences de chaque spectre diffèrent légèrement les uns des autres. Cependant, tous les pics de fréquences se situent à de très basses fréquences THz (<0.3 THz).

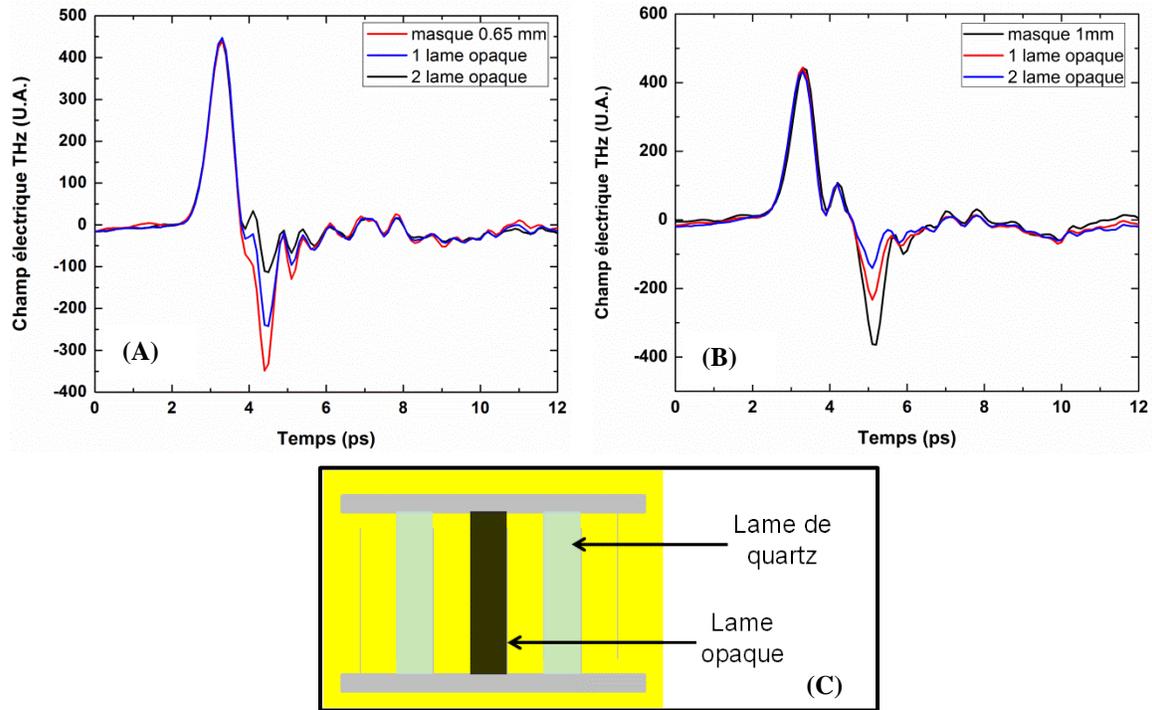


Figure 5-16 : Formes temporelles des impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe excitée à 0.2 mJ/cm^2 et polarisée à 10 kV/cm . (A) Mise en forme d'impulsion THz obtenue à partir d'un masque de phase binaire de 0.65 mm et (B) d'un masque de 1 mm . (C) Schéma de principe de l'antenne recouverte par un mélange du masque de phase et du masque opaque

La figure 5-16 montre les différentes formes temporelles d'impulsions THz que l'on peut générer à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe excitée à la longueur d'onde de 400 nm et recouverte par des masques de phases binaires de (A) 0.65 mm et (B) 1 mm et (C) représente le schéma de principe de l'antenne recouverte par un mélange du masque de phase et du masque opaque. La modulation de la valeur du champ électrique de la partie négative de l'impulsion THz a été obtenue en remplaçant des lamelles de quartz du masque de phase binaire par des lamelles opaques. Notons que, la taille du faisceau laser ne faisait que 0.8 cm et que chaque lame fait un millimètre de large. Cela explique pourquoi une seule lamelle noire engendre une diminution d'environ 30% de l'amplitude du champ électrique de l'impulsion THz de la partie négative de l'impulsion THz. Ainsi, en mixant le masque de phase binaire avec des lamelles opaques, nous sommes capables de générer n'importe quelle forme d'impulsion THz comprise

entre une impulsion asymétrique demi-cycle et une impulsion symétrique monocycle. Cela peut être très utile pour de futures applications comme l'étude du contrôle de l'orientation de certaines molécules.

5-3-3 : La mesure de l'énergie THz

Nous avons vu dans la section précédente que la génération d'ondes THz de hautes intensités avec l'APCGO interdigitale de ZnSe n'est pas possible avec le laser amplifié Ti :Saphir multi-kHz puisque nous sommes limités par l'énergie produite à 400 nm. Dans cette section, nous avons donc décidé de réaliser des expériences en utilisant un laser amplifié Ti :Saphir ayant un taux de répétition de 10 Hz, une énergie de 300 mJ et une durée d'impulsion de 45 fs afin de générer suffisamment d'énergie à la longueur d'onde de 400 nm pour illuminer la source THz avec une fluence très supérieure à la fluence de saturation. D'autre part, nous pensons que la diminution du taux de répétition du laser va permettre de limiter l'échauffement thermique des électrodes qui était la cause des dommages des électrodes constatés dans la section précédente. Enfin, afin de n'avoir aucun problème de fusion des électrodes, la largeur des électrodes a été augmentée en passant de 200 à 400 μm , la distance inter-électrodes a été diminuée à 600 μm et l'or a été remplacé par le platine. La figure 5-17 montre le schéma (A) et une photo (C) du montage expérimental ainsi qu'une photo (B) de l'antenne de l'APCGO interdigitale de ZnSe. Les nouveaux cristaux de ZnSe ont été achetés à Crystran LTD.

La seconde harmonique du laser Ti :Saphir a été générée par un cristal de KDP (Dihydrogène Phosphate de Potassium) ayant une épaisseur de 0.6 mm et un diamètre de 75 mm. Le cristal est placé juste avant le miroir de sortie du compresseur. Le diamètre du faisceau laser sur l'antenne est de 3.6 cm. Cette taille est suffisante pour illuminer totalement la surface de l'antenne. L'énergie maximale, à la longueur d'onde de 400 nm, est de 15 mJ. Il faut noter que nous avons utilisé seulement 200 mJ d'énergie laser et que nous avons orienté le cristal de KDP de telle façon à garder la polarisation de l'impulsion laser linéaire. Cette orientation du cristal de KDP n'offre pas le taux de conversion maximum.

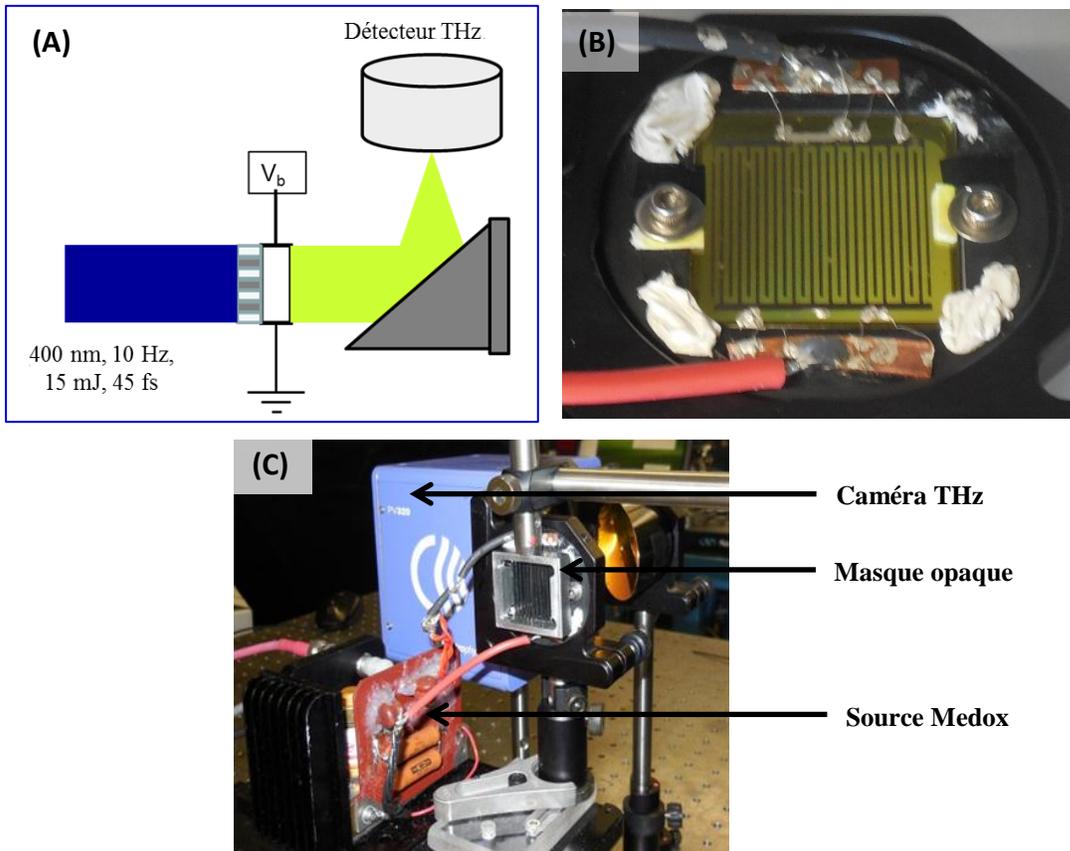


Figure 5-17: (A) Schéma du montage expérimental. (B) Photo de l'APCGO interdigital de ZnSe maintenue dans son support. (C) Photo du montage expérimental.

Le système expérimental choisi pour étudier et caractériser cette source de radiation THz intense est le plus simple possible. Un miroir dichroïque réfléchissant à 400 nm de 4 pouces de diamètre est utilisé pour guider l'impulsion laser sur l'antenne de ZnSe. Les ondes THz sont collectées par un MPHA de 90° ayant un nombre d'ouverture de 1 (2 pouces de diamètre et 2 pouces de longueur focale) et un revêtement en or.

La détection des ondes THz a été réalisée en utilisant deux détecteurs pyroélectriques. Le premier détecteur pyroélectrique provient de la compagnie Microtech Instruments et a une sensibilité de 2624 V/J à 10.6 μm . L'étalonnage pour les fréquences THz a été effectuée dans des expériences précédentes. Il a été constaté que ce détecteur est moins sensible aux fréquences THz d'un facteur 1.8 environ [103]. Ce facteur a été établi en mesurant l'énergie d'une source de radiation THz intense avec un détecteur pyroélectrique de la compagnie Microtech Instruments dont la sensibilité est de 2100 V/W à 1 THz puis en mesurant l'énergie avec le détecteur pyroélectrique de la compagnie Coherent-Moletron. Cette baisse de sensibilité est attribuée à la nature de la

couche absorbante qui est utilisée dans ce type de détecteur [172]. Ainsi, le détecteur pyroélectrique de la compagnie Coherent-Moletron délivre un signal de 1.46 mV pour une énergie de 1 μ J aux fréquences THz. Il est à noter que ce détecteur pyroélectrique est très sensible au bruit électromagnétique produit par la source Medox. Par conséquent, nous avons placé ce détecteur dans une cage de Faraday afin de limiter les perturbations créées par la source Medox. La cage de Faraday a permis de réduire le bruit électromagnétique d'un facteur 10 environ. Cependant, le bruit électromagnétique était toujours beaucoup plus important que le signal. Toute fois, comme le bruit électromagnétique était compris dans un intervalle de temps d'une durée de 20 nanosecondes alors que le temps de réponse du détecteur pyroélectrique est de l'ordre de la microseconde, la mesure de l'énergie THz était possible.

Le deuxième détecteur pyroélectrique est le détecteur THZ-I-BNC de la société Gentec dont la sensibilité est de 140 kV/W à 10.6 μ m et qui nécessite de fonctionner à 10 Hz à l'aide d'un hacheur mécanique. Le détecteur Gentec est beaucoup plus sensible que le détecteur Microtech. Nous avons donc utilisé le détecteur Gentec pour toutes les mesures d'énergies prises lors de cette campagne expérimentale. Afin de vérifier la sensibilité du détecteur Gentec dans la gamme de fréquences THz, nous avons comparé un signal de 1.42 mV obtenu avec le détecteur Microtech au signal obtenu avec le détecteur Gentec. Ce signal correspond à une énergie de 0.97 μ J. Cette mesure d'énergie a été faite en utilisant le masque de phase binaire d'un millimètre. Dans les mêmes conditions, le détecteur Gentec a généré un signal de 0.96 V. La sensibilité du détecteur Gentec pour les ondes THz est approximativement 0.1 V/ μ W.

5-3-4 : Évaluation de la tache focale

Afin d'estimer la valeur du champ électrique THz crête au point focal, nous avons besoin de l'énergie de l'impulsion THz, mais aussi des dimensions de la tache focale. Afin de visualiser la tache focale du faisceau THz, nous avons utilisé une caméra ferroélectrique de BaSrTiO₃ (BST) de modèle PV320-L2Z de la société Electrophysics. Cette caméra opère avec un hacheur mécanique interne à une fréquence de 60 Hz et possède un capteur de 320 \times 240 pixels d'une dimension de 48.5 μ m.

La figure 5-18 (A) montre l'image de la tache focale du faisceau THz correspondant à une énergie de $1.5 \mu\text{J}$ lorsque l'APCGO interdigitale de ZnSe est recouverte avec le masque de 1mm. Il est à noter que cette image a été assez dure à obtenir pour deux raisons. Le programme pilotant la caméra, qui permet l'acquisition des images, était grandement perturbé par le bruit électromagnétique introduit par la source Medox et l'antenne. Par conséquent, le programme arrêta toutes les 30 secondes environ. D'autre part, le hacheur mécanique interne de la caméra empêchait l'impulsion THz d'être détectée en permanence dans le temps par la caméra. La figure 5-18 (B) montre les courbes, supposées Gaussiennes, du profil horizontal et du profil vertical de la tache focale extraites de (A). Les dimensions de la tache focale à $1/e^2$ sont 3.2 mm pour l'axe horizontal et 2.9 mm pour l'axe vertical. La surface totale de la tache focale, considérée comme une ellipse, est de 7.28 mm^2 .

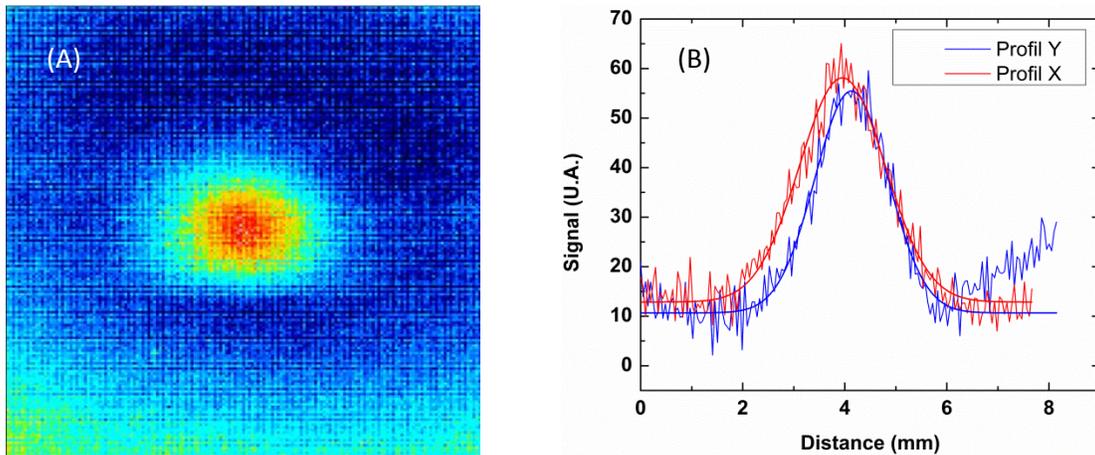


Figure 5-18 : (A) Image THz en temps réel au point focal obtenue avec une caméra ferroélectrique model PV320-L2Z d'Electrophysics. Cette image correspond à une énergie THz de $1.5 \mu\text{J}$. (B) Extraction des dimensions des axes vertical et horizontal de l'image THz obtenue en (A)

On remarque que les dimensions de la tache focale sont grandes comparées aux dimensions des taches focales obtenues avec les autres types de sources THz de hautes intensités. En effet, il a été démontré que les sources THz de ZnTe, plasma deux couleurs et LiNbO_3 avaient respectivement des dimensions de $1.91 \times 1.57 \text{ mm}$, $0.2 \times 0.2 \text{ mm}$ et $0.3 \times 0.3 \text{ mm}$ [101, 103, 112]. La raison principale pour laquelle ces dimensions sont inférieures à celles qui sont obtenues dans la figure 5-19 provient du fait que ces sources rayonnent des fréquences THz plus hautes que celles qui sont générées par une APCGO.

Dans notre cas, comme les principales composantes fréquentielles de l'impulsion THz sont comprises entre 0.05 et 1 THz et que la fréquence principale est à 0.2 THz, on peut estimer que les dimensions de la tache focale sont proches de la limite de diffraction.

Les dimensions de la tache focale sont de 2.9×3.2 mm. On constate que les dimensions de la tache focale THz sont supérieures à 2 mm qui est le diamètre du capteur des détecteurs pyroélectriques que nous avons utilisés pour les mesures de l'énergie. Il faut donc multiplier par un facteur de correction toutes les valeurs d'énergies que nous mesurerons avec le détecteur pyroélectrique Gentec pour connaître les véritables valeurs d'énergies des impulsions THz rayonnées par notre antenne. Pour déterminer ce facteur, il faut connaître quelle est la proportion d'énergie que le détecteur pyroélectrique a réellement détectée. Nous rappelons que le profil d'intensité de l'impulsion THz est supposé Gaussien. Pour obtenir ce facteur, nous avons dû calculer les valeurs des aires sous la courbe entre les positions 2.4 mm et 5.5 mm (pour une distance de 3.1 mm) et 2.95 mm et 4.95 mm (pour une distance de 2 mm) pour le profil X normalisé. Nous avons également calculé les aires sous la courbe entre les positions 2.7 mm et 5.6 mm (correspondant à une distance de 2.9 mm) et 3.1 mm et 5.1 mm (correspondant à une distance de 2 mm) pour le profil Y normalisé. Par la suite, le facteur est calculé par la relation suivante :

$$F_{correction} = \frac{A_x^{3.1mm}}{A_x^{2mm}} \times \frac{A_y^{2.9mm}}{A_y^{2mm}} \quad (5-2)$$

où $A_x^{3.1mm}$, A_x^{2mm} , $A_y^{2.9mm}$, A_y^{2mm} sont respectivement les aires sous les courbes pour une distance de 3.2 mm et 2 mm du profil X normalisé et pour une distance de 2.9 mm et 2 mm du profil Y normalisé. Les valeurs numériques de ces aires sont respectivement 2.2, 1.7, 2.0, 1.6 et nous obtenons une valeur du facteur de correction, $F_{correction}$, de 1.6.

5-3-5 : La loi d'échelle sur l'énergie THz en fonction de la fluence

La figure 5.19 (A) montre la variation de l'énergie THz en fonction de la fluence lorsque l'APCGO interdigitale de ZnSe est polarisée à 20 kV/cm et est recouverte par un masque opaque et par un masque de phase binaire de 1 mm. Le facteur de correction sur l'énergie THz n'a pas été pris en compte dans ce graphique. Nous observons une

saturation de l'énergie THz pour de fortes fluences quand l'antenne est recouverte par le masque opaque. En revanche, nous n'observons pas de saturation nette de l'énergie THz lorsque l'antenne est recouverte par le masque de 1 mm. Afin de mieux comprendre le comportement de la génération d'ondes THz par l'APCGO interdigitale de ZnSe, nous avons tracé la valeur de la racine carrée de l'énergie en fonction de la fluence dans la figure 5-19 (B). Cela équivaut à étudier le comportement du champ électrique THz crête en fonction de la fluence. Les points sont les valeurs expérimentales alors que les courbes sont tracées à l'aide d'une procédure d'ajustement des paramètres fait à partir de l'équation (4-1). Nous observons clairement et pour les deux types de masques, une forte saturation de la valeur de la racine carrée de l'énergie THz en fonction de la fluence. Ce phénomène était attendu puisqu'en augmentant fortement la fluence d'excitation, nous faisons travailler les antennes dans le régime d'écrantage THz qui amène à la saturation du champ électrique THz et à la saturation de l'énergie THz. Les ajustements des paramètres ont également permis de déterminer la fluence de saturation de l'APCGO interdigitale de ZnSe à $220 \pm 11 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. À partir de l'équation (3.23), nous obtenons une valeur pour la mobilité des électrons à $216 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Cette valeur est très supérieure à celle que l'on a obtenue dans le chapitre 4 pour des APCGOs de ZnSe polycristallin ($40 \text{ cm}^2/\text{Vs}$). Cependant, je rappelle que les cristaux proviennent de deux entreprises différentes et que les cristaux de ZnSe peuvent être de qualités différentes. Il est reconnu que certains paramètres tels que la concentration d'impuretés et la taille du grain de la structure cristalline peuvent fortement influencer la mobilité des électrons [242, 243]. Il est à noter qu'en réduisant le taux de répétition du laser à 10 Hz, nous n'avons constaté aucun problème d'échauffement thermique de l'antenne.

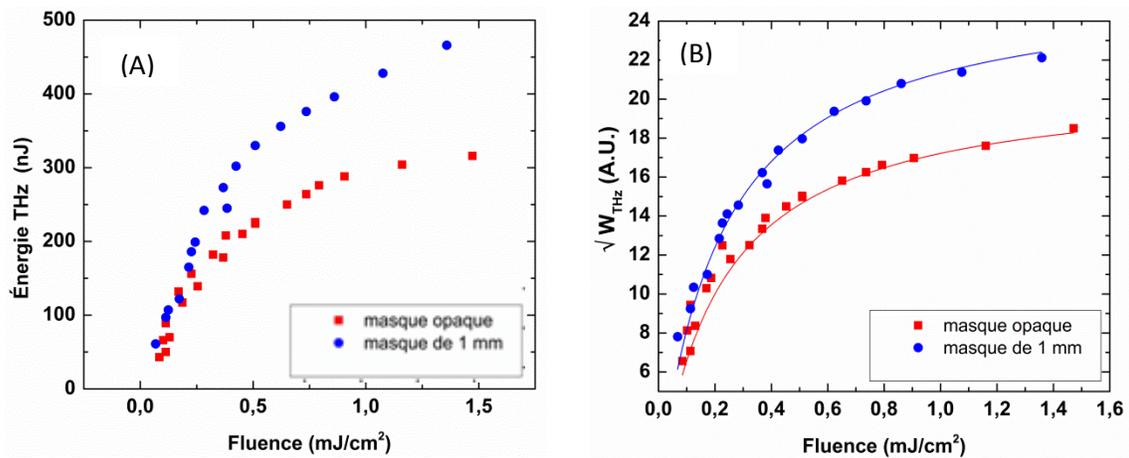


Figure 5-19: (A) Variation de l'énergie THz en fonction de la fluence pour une APCGO interdigitale de ZnSe polarisée à 20 kV/cm et recouverte par les masques opaque et de 1 mm. (B) Variation de la racine carré de l'énergie THz en fonction de la fluence dans les mêmes conditions que (A).

5-3-6 : La loi d'échelle sur l'énergie THz en fonction du champ de polarisation

Par la suite, nous avons étudié la dépendance de l'énergie THz en fonction du champ de polarisation. La figure 5-20 montre la variation de l'énergie des impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe couverte par le masque opaque et le masque de 1 mm et excitée avec une fluence de 0.55 mJ/cm^2 (A) en fonction du champ de polarisation et (B) en fonction du carré du champ de polarisation. Le facteur de correction sur l'énergie THz n'a pas été pris en compte dans ces graphiques. Pour les deux masques, nous observons une parfaite dépendance quadratique de l'énergie THz en fonction du champ de polarisation pour des champs de polarisation allant jusqu'à 35 kV/cm. La figure 5-20 (B) démontre une relation linéaire entre l'énergie THz et le carré du champ de polarisation de l'antenne lorsque l'antenne est couverte par le masque opaque ou le masque de 1 mm ce qui prouve la validité de la relation quadratique entre l'énergie des impulsions THz et le champ de polarisation de l'antenne. La valeur maximale de l'énergie THz a été obtenue en polarisant l'antenne, couverte par le masque de phase binaire de 1 mm, à 47 kV/cm. En incluant le facteur de correction sur la surface de la tache focale du faisceau THz, nous obtenons une énergie de $3.6 \pm 0.8 \mu\text{J}$. L'erreur très grande sur la mesure de l'énergie THz s'explique par la présence de décharges

Corona au moment de la mesure qui rendait très instable l'énergie THz du fait des fluctuations très fortes du champ de polarisation. Cette mesure d'énergie est évidemment la plus grande jamais enregistrée pour des antennes photoconductrices et ce même en incluant l'erreur potentielle faite sur la mesure.

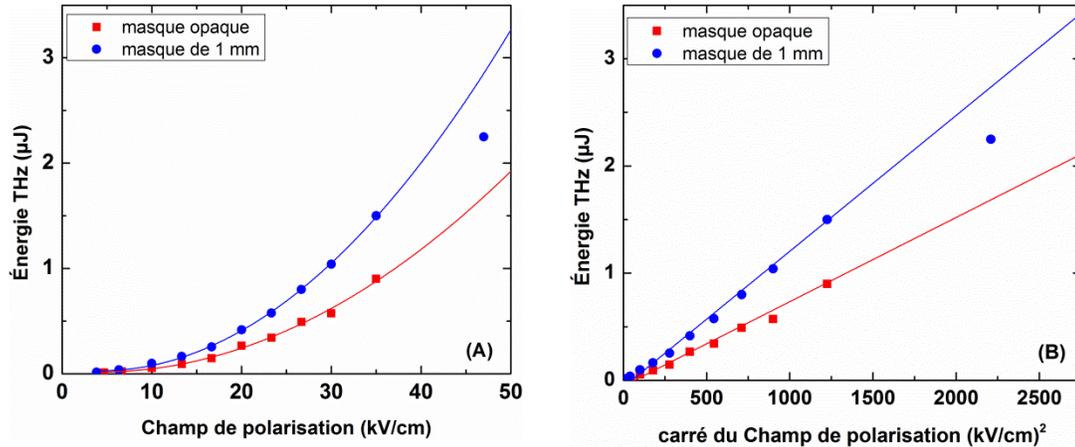


Figure 5-20: Variation de l'énergie THz générée par l'APCGO interdigitale de ZnSe, excité à la fluence de 0.55 mJ/cm^2 et couverte par les masques opaque et de 1 mm, (A) en fonction du champ de polarisation et (B) en fonction du carré du champ de polarisation.

Cependant, on constate que cette mesure d'énergie ne suit plus l'évolution quadratique de l'ajustement des paramètres tracé lorsque l'antenne est recouverte du masque de 1 mm. En suivant la relation quadratique obtenue pour le masque de 1mm dans la figure 5-20 (A), nous aurions dû obtenir une énergie de $2.86 \pm 0.2 \mu\text{J}$. En incluant le facteur de correction, cela donne une énergie de $4.6 \pm 0.3 \mu\text{J}$. Cette valeur, en incluant la barre d'erreur, est cependant comparable à la valeur mesurée. Il est à noter que la valeur du champ de polarisation de 47 kV/cm est juste inférieure à la valeur théorique de la rigidité diélectrique de l'air pour une distance inter-électrodes de $600 \mu\text{m}$ (53 kV/cm) [224]. Cela explique les très nombreuses décharges Corona observées pendant les expériences qui sont responsables de la grande marge d'erreur sur la mesure effectuée. D'autre part, si nous n'étions pas limités par la rigidité diélectrique de l'air, et en faisant l'hypothèse que la relation quadratique donnant l'énergie THz en fonction du champ polarisation est valide jusqu'à 80 kV/cm, nous aurions pu générer une impulsion THz possédant une énergie de $14 \mu\text{J}$ (après correction de la surface de la tache focale). Cette énergie serait bien entendue très inférieure à $125 \mu\text{J}$ qui est l'énergie maximale générée avec un cristal de LiNbO_3 et qui est le record actuel des sources THz dites compactes.

Cependant, cette énergie ferait des APCGO la deuxième source, en terme d'énergie générée par impulsion, derrière les sources de LiNbO_3 mais devant les sources de plasma à deux couleurs.

La figure 5-20 (A) démontre que le masque de phase binaire permet de générer plus d'énergie THz que le masque opaque. À 35 kV/cm, l'énergie THz est de 1.5 μJ avec le masque de 1 mm alors que le masque opaque permet d'obtenir une valeur de d'énergie de 0.9 μJ . On voit donc que le masque de phase permet d'augmenter l'énergie THz d'un facteur avoisinant 1.7. Dans la section 5-1, nous avons prévu qu'un masque de phase binaire pouvait augmenter l'énergie THz d'un facteur d'environ 2. Cette différence peut s'expliquer par plusieurs facteurs tels que :

- Un mauvais alignement du masque de phase. L'absence de monture rotative sur le masque ou l'antenne nous a empêché d'orienter le masque de façon parallèle à la structure interdigitale de l'antenne. Cela a engendré une diminution de l'énergie THz lorsque l'antenne est couverte par les deux types de masques, mais qui est plus prononcée dans le cas du masque de phase binaire.
- La diffraction du faisceau laser après le masque. La diffraction a fait en sorte que les multiples petits faisceaux laser chevauchaient les antennes voisines entraînant une diminution de l'énergie qui est plus prononcée dans le cas du masque de phase binaire.
- La qualité du masque opaque. Le masque opaque était seulement recouvert de peinture noire et il est fortement probable qu'une fraction de l'impulsion laser passait au travers des lames et excitait les antennes recouvertes par le masque opaque. Cela a augmenté légèrement l'énergie THz lorsque nous appliquions un masque opaque.
- Le profil spatial de l'énergie de l'impulsion à 400 nm est gaussien. Proche du centre de l'antenne, à l'endroit où la fluence laser est la plus importante, nous avons un nombre impair d'antennes qui n'étaient pas couvertes par les masques favorisant la radiation d'ondes THz à partir des antennes non couvertes par le masque.

5-3-7 : Évaluation du champ électrique THz crête

Afin de caractériser totalement l'APCGO interdigitale de ZnSe, nous devons estimer la valeur du champ électrique THz crête. La valeur du champ électrique THz crête peut-être calculée à partir de l'énergie par la relation [123] :

$$E_{crête} = \sqrt{\frac{\eta_0 W_{THz}}{\pi w_h w_v \int g^2(t) dt}} \quad (5-3)$$

où W_{THz} est l'énergie THz, η_0 est l'impédance du vide, w_h et w_v sont la largeur et la hauteur de la tache focale du faisceau THz et $g(t)$ est la forme temporelle du champ électrique (normalisée à 1) obtenue par échantillonnage EO.

En combinant l'équation (5-3) avec l'évaluation de la taille de la surface de la tache focale associée à une énergie THz de 3.6 μ J, nous avons estimé la valeur du champ électrique THz crête à 143 kV/cm. Cette valeur est très largement inférieure à la valeur de 350 kV/cm qui correspond au record de champ électrique THz crête d'une antenne de GaAs [172]. Il est important de noter que cette valeur de 350 kV/cm est très largement surestimée. En effet, pour obtenir cette valeur, ils ont calculé la largeur à mi-hauteur du profil d'intensité de la tache focale du faisceau THz au lieu de prendre la largeur à $1/e^2$. D'autre part, ils ont probablement sous-estimé la durée de leur impulsion THz en évaluant une durée d'impulsion de 500 fs qui fut elle aussi prise à la largeur à mi-hauteur. En partant de ce principe, nous pouvons dire que nous avons obtenu le plus haut champ électrique THz crête généré à partir d'une APCGO.

Cette valeur de 143 kV/cm est supérieure à la valeur de 100 kV/cm qui est considérée comme la limite inférieure pour réaliser des expériences de spectroscopie THz non-linéaire. Cependant, cette valeur reste très inférieure aux valeurs de champ électrique THz qui peuvent être générées par les sources de LiNbO3 et les sources plasma laser à deux couleurs dont les valeurs de champ électrique THz crête peuvent être supérieures à 1 MV/cm. Cependant, notre source est absolument unique puisque c'est le seul type de source THz qui a ses principales composantes fréquentielles qui sont comprises entre 0.05 et 1 THz. Cela permet d'avoir une grande énergie pondéromotrice. Ainsi, les impulsions THz générées par l'APCGO interdigitale de ZnSe peuvent avoir le potentiel

de générer des effets non-linéaires dans des matériaux à l'aide de l'énergie pondéromotrice qu'elles peuvent générer.

5-3-8 : Efficacité THz de l'APCGO interdigitale de ZnSe

Afin de caractériser complètement notre source THz, nous allons déterminer l'efficacité THz. L'efficacité de notre source est le rapport entre l'énergie THz et l'énergie laser à la longueur d'onde de 400 nm. Dans notre cas, nous avons généré une énergie THz maximale de 3.6 μJ lorsque nous avons excité l'antenne avec une fluence de 0.55 mJ/cm^2 correspondant à une énergie totale de 9.1 mJ. Ainsi, l'efficacité THz est de 3.96×10^{-4} . Cette efficacité est supérieure à celle que l'on peut obtenir avec une source de ZnTe dont l'efficacité est limitée à environ 10^{-5} [100, 101]. Cependant, cette efficacité est très inférieure aux efficacités que l'on peut obtenir avec des sources plasmas et des sources de LiNbO_3 [111, 127]. Pour les sources plasmas, il a été démontré que l'énergie THz dépendait quadratiquement de la longueur d'onde de l'impulsion laser. Ainsi, en utilisant une longueur d'onde de 1850 nm, Clerici et al ont obtenu une efficacité THz de 1.57×10^{-3} . Pour la source de LiNbO_3 , Huang et al ont refroidi le cristal à l'aide d'un cryostat et en utilisant une impulsion laser à la longueur d'onde de 1.03 μm , ils ont obtenu une efficacité THz de 3.8×10^{-2} . D'autre part, l'efficacité THz de notre source est aussi très inférieure à l'efficacité maximale des APCGOs de GaAs à structure interdigitale (2.0×10^{-3}) [88].

Si nous comparons la valeur d'efficacité de 3.96×10^{-4} aux valeurs d'efficacité qui ont été calculées dans la section 4-3-2, on s'aperçoit que l'efficacité de notre source est inférieure à celle qui était projetée. Cependant, les conditions expérimentales ne sont pas compatibles avec les paramètres de calculs faits dans la section 4-3-2. Par exemple, la fluence était très supérieure à la fluence de saturation de l'antenne. Ainsi, à partir de la formule (4-4), et en prenant un champ de polarisation de 47 kV/cm , une durée d'impulsion THz de 1.65 ps, une fluence de saturation de 0.22 mJ/cm^2 et une fluence de 0.55 mJ/cm^2 , nous obtenons une efficacité THz de 4.5×10^{-3} . Cette valeur est un ordre de grandeur supérieur à la valeur expérimentale. Cependant, la formule (4-4) n'est valide que dans le cas d'une APCGO et n'est pas valide pour une antenne interdigitale. Si nous

voulons appliquer la formule (4-4) à la structure particulière de notre antenne, il nous faut considérer chaque antenne de la structure interdigitale de façon individuelle. Ainsi, nous pouvons considérer que chaque antenne est excitée par une énergie laser de $73 \mu\text{J}$ (correspondant à une fluence de 0.55 mJ/cm^2) et génère une impulsion THz ayant une durée d'impulsion de 0.85 ps et une énergie de 150 nJ (ce qui correspond à $1/24$ ème de l'énergie THz totale). Ainsi, le rapport entre l'énergie THz et l'énergie laser donne une efficacité THz de 2.1×10^{-3} alors que le calcul fait à partir de l'équation (4-4) donne une valeur d'efficacité THz de 2.3×10^{-3} . Ainsi, en appliquant un raisonnement individuel à chaque antenne de la structure interdigitale, nous obtenons une valeur d'efficacité THz qui est très proche de celle qui est prédite par l'équation (4-4).

Avec ce chapitre, nous avons démontré la possibilité de faire de la mise en forme d'impulsion THz à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe mais également de générer des impulsions THz de hautes intensités. Ainsi, nous avons développé une source unique capable de générer des impulsions THz monocycle ou demi-cycle dont la valeur d'énergie maximale des impulsions est de $3.6 \mu\text{J}$. La méthode de mise en forme d'impulsion THz nous permet de générer n'importe quelle forme d'impulsion THz comprise entre une impulsion monocycle et une impulsion demi-cycle dont le champ électrique THz crête est de 143 kV/cm . D'autre part, cette source génère des basses fréquences THz, ce qui la différencie également des autres sources de radiations THz intenses. Ces basses fréquences donnent aux impulsions THz un grand potentiel pondéromoteur ce qui nous permettra d'utiliser ces impulsions pour réaliser des expériences THz non-linéaires.

Chapitre VI

Conclusion

Mes travaux réalisés lors des six dernières années ont permis de réaliser des avancements importants dans le domaine de la génération d'ondes THz. Les principaux points qui ont été développés touchent à la génération d'ondes THz par les antennes photoconductrices :

1. L'étude complète sur la génération d'ondes THz à partir des APCGOs de ZnSe et la comparaison de leurs performances vis-à-vis des APCGOs de GaAs. Cette étude a notamment permis de démontrer que les APCGOs de ZnSe avaient un plus grand potentiel pour réaliser la génération d'ondes THz intense à partir d'une APCGO.
2. Création d'un masque de phase binaire permettant de réaliser la mise en forme d'impulsions THz à partir des APCGOs à structure interdigitale. Cette technique nous a permis notamment de contrôler la durée de l'impulsion THz mais aussi de réaliser n'importe quelle forme d'impulsion THz comprise entre une impulsion demi-cycle et une impulsion monocycle. D'autre part, il a été démontré que cette technique peut doubler l'efficacité THz des APCGOs à structure interdigitale.
3. Réalisation d'une source de radiation THz intense à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe. La caractérisation totale de la source a été établie (loi d'échelle de l'énergie THz en fonction de la fluence et du champ de polarisation, taille de la tache focale du faisceau THz, évaluation du champ électrique crête THz).

Les travaux effectués sur les antennes à base de GaAs ont également permis de réaliser des expériences de spectroscopie THz linéaire résolue en temps sur des échantillons de VO₂ (dioxyde de vanadium) et de SmNiO₃ (nickelâtes de pérovskite) ainsi que de caractériser un guide d'onde THz fait à partir deux fils métalliques parallèles ayant une distance de 300 µm entre les deux fils [244]. Enfin, j'ai participé au développement et à

la caractérisation de la source de radiations THz basée sur la technique du plasma à deux couleurs [103, 122].

Perspectives et prochaines étapes potentielles

Actuellement, il y a de nombreuses recherches faites à l'INRS-EMT afin de développer deux types de sources de radiation THz de hautes intensités. En effet, nous avons vu au cours de mon manuscrit qu'une source basée sur la technique du plasma à deux couleurs mais dont la longueur d'onde de la 1^{ère} harmonique est 1850 nm a été développée [127]. Cette source a par exemple été utilisée pour démontrer que le mélange à quatre ondes possède l'accord de phase dans le diamant quand la configuration géométrique de propagation entre l'impulsion THz et l'impulsion laser sont en contre sens [245]. L'autre source de radiation THz qui est développée actuellement à l'INRS est une source de LiNbO₃. Un cryostat a été conçu spécialement pour permettre la génération d'ondes THz à partir d'un cristal de LiNbO₃. Le cryostat permettra donc de refroidir le cristal à 100° K. D'autre part, un filtre passe bande de 3 nm de largeur est utilisé pour étirer la durée de l'impulsion laser tout en conservant ses propriétés d'impulsion laser limitée par transformée de Fourier. Une énergie d'impulsion THz de 100 μJ est espérée. Une telle source de radiation THz intense pourrait éventuellement avoir des applications sur l'accélération de particules et la technique d'imagerie THz à impulsion unique.

De mon côté, j'ai développé une source de radiation THz intense à partir d'une APCGO interdigitale de ZnSe. Il faudrait que l'INRS-EMT continue de développer cette source pour être le premier centre de recherche possédant trois sources de radiation THz intense couvrant trois bandes de fréquences THz très distinctes et générant des impulsions THz de hautes intensités dont les profils temporels sont très différents. D'autre part, je rappelle que l'APCGO interdigitale de ZnSe est la seule source capable de générer n'importe quelle forme temporelle d'impulsion THz comprise entre une impulsion demi-cycle et une impulsion monocycle. Cela pourra permettre d'approfondir nos connaissances sur l'interaction entre les impulsions THz intenses et la matière puisque nous espérons apercevoir une dynamique des électrons différente au sein de

semi-conducteurs dopés lorsqu'ils sont excités par une impulsion asymétrique et une impulsion symétrique. Il est à noter que lors de ma dernière campagne d'expériences, j'ai observé une perturbation du détecteur pyroélectrique Gentec uniquement quand il détectait une impulsion THz demi-cycle asymétrique. Cette perturbation avait un comportement non linéaire vis-à-vis de l'énergie THz détecté. Des futures expériences sont planifiées pour comprendre quelle peut être l'action d'une impulsion THz demi-cycle asymétrique sur le détecteur pyroélectrique pour créer cette perturbation.

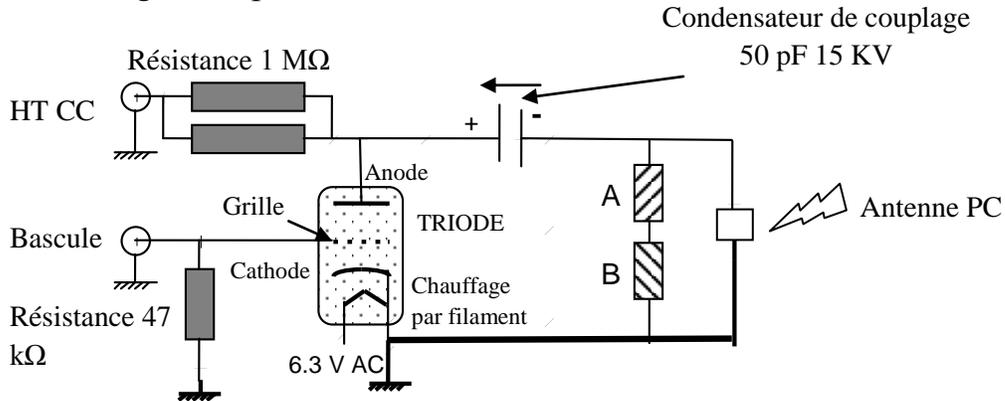
Si nous voulons utiliser les APCGOs interdigitales de ZnSe pour réaliser différents types d'expériences, il faudra absolument augmenter la durée de vie de l'antenne. Il est absolument inacceptable de devoir changer la source THz toutes les semaines du fait de la chute de ses performances dans le temps. Pour éviter cela, il faudra déposer une couche diélectrique d'une épaisseur d'un micromètre sur la surface de l'antenne. Cette couche pourrait être du SiO₂ ou du Si₃N₄ mais devrait être idéalement du AlN (nitrure d'aluminium). Ce matériau a d'excellentes propriétés diélectriques mais surtout de très bonnes propriétés thermiques [246]. Cette couche diélectrique permettra à l'antenne de résister à tout type d'attaque chimique que peut provoquer l'air ambiant. D'autre part, afin de ne plus avoir le champ de polarisation limité par la rigidité diélectrique de l'air, il faudra placer l'antenne dans un cryostat. Je rappelle que si l'APCGO interdigitale de ZnSe avait été polarisée par un champ de 80 kV/cm, nous aurions été capables générer des impulsions THz ayant une énergie de 14 μ J. Enfin, toujours dans l'optique d'augmenter l'énergie des impulsions THz rayonnées par cette source, il faudrait pouvoir développer une recette pour fabriquer des contacts ohmiques. J'avais fait des antennes ZnSe avec des électrodes en Cr/Pt qui ont subi différents recuits thermiques. J'ai observé d'importantes différences entre les courbes I-V. Cependant, à cause d'un manque de temps, je n'ai pas pu tester les performances de génération d'ondes THz par ces différentes antennes.

Pour finir, il faudrait réaliser un montage expérimental capable de réaliser des expériences de spectroscopie THz non-linéaire résolue dans le temps utilisant la technique POST. J'espère que ces orientations éventuelles auront un suivi et des résultats

qui permettront à l'INRS-EMT de continuer à être un laboratoire à la pointe du développement des sources de radiation THz.

Appendice 1:

Circuit à appliquer pour une impulsion haute tension de 20 ns au travers d'une charge de 8 pF :



A  4 Bobines saturables en séries (aimants en ferrite)

B  4 résistances (2 en parallèles avec deux autres en series)

Figure 1 : Schéma de principe de la source de haute tension pulsée qui a été utilisée comme tension de polarisation de l'antenne de ZnSe de grande ouverture

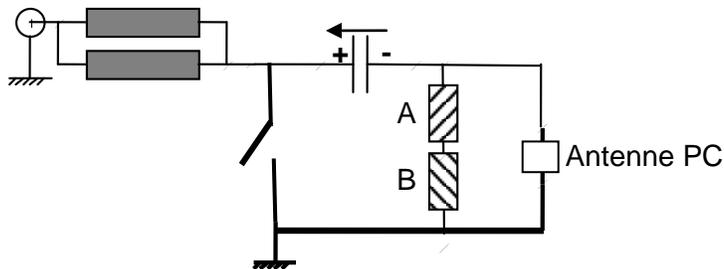


Figure 2: Schéma de principe de la source de tension pulsée : La triode n'est pas conductrice et le condensateur se charge

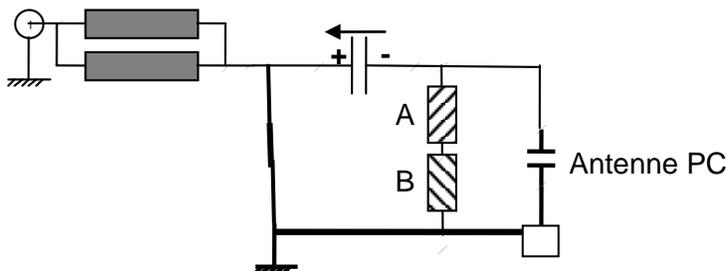


Figure 3: Schéma de principe de la source de tension pulsée : La triode est conductrice et le condensateur se décharge créant ainsi le pulse de haute tension

Appendice 2:

Photos montrant les dommages causés par l'échauffement des électrodes de l'APCGO interdigitale de ZnSe illuminée à un taux de répétition de 2.5 kHz

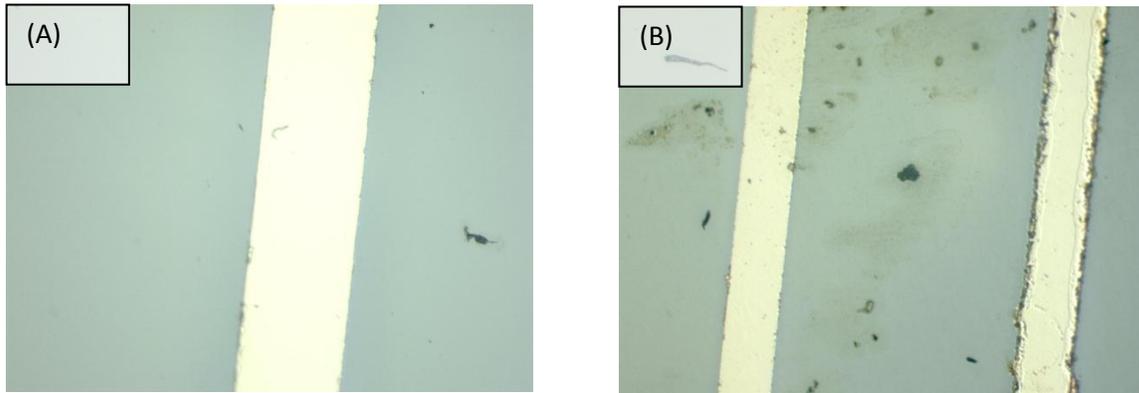


Figure 1 : Photos des électrodes de l'APCGO interdigitale de ZnSe : (A) Photo prise avec un grossissement $\times 10$ montrant une électrode saine. (B) Photo prise avec un grossissement $\times 5$ montrant une électrode quasi saine et une électrode partiellement endommagée (à droite).

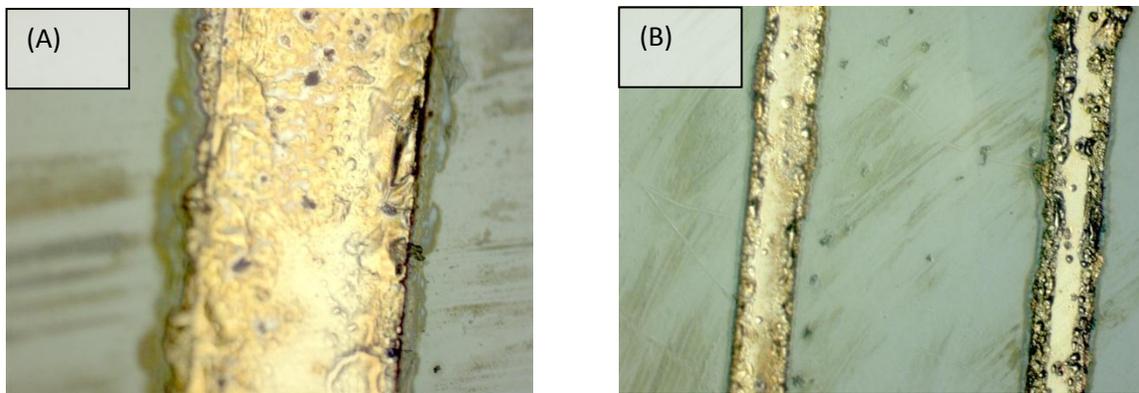


Figure 2 : Photos des électrodes de l'APCGO interdigitale de ZnSe : (A) Photo prise avec un grossissement $\times 20$ montrant une électrode endommagée. (B) Photo prise avec un grossissement $\times 5$ montrant deux électrodes endommagées.

Bibliographie

- [1] G. P. Williams “High-power terahertz synchrotron sources” *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **362**, 403 (2004)
- [2] P. D. Coleman “Reminiscences on selected millennium highlights in the quest for tunable terahertz-submillimeter wave oscillators” *IEEE Journal of selected topics in quantum electronic*, **6**, 1000 (2000)
- [3] D. Oustinov “Étude de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel” Thèse de doctorat-Paris VI, 8 (2011)
- [4] E. Berry, G. C. Walker, A. J. Fitzgerald, N. N. Zinov, M. Chamberlain, S. W. Smye, R. E. Miles, M. A. Smith “Do in vivo terahertz imaging systems comply with safety guidelines” *J. of Las. Appl.* **15**, 192 (2003)
- [5] N. Laman, S. Harsha, D. Grischkowsky “Narrow-line Waveguide terahertz time domain spectroscopy of aspirin and aspirin precursor” *Appl. Spect.* **62**, 319 [2008]
- [6] A. G. Davies, A. D. Burnett, W. H. Fan, E. H. Linfield, J. E. Cunningham “Terahertz spectroscopy of explosive and drugs” *Mat. Tod.* **11**, 2008
- [7] M. R. Leahy Hoppa, M. J. Fitch, Z. Zheng, L. M. Hayden, R. Osiander “Wideband terahertz spectroscopy of explosives” *Chem. Phys. Lett.* **434**, 227 (2007)
- [8] G. J. Stacey “THz low resolution spectroscopy for astronomy” *IEEE Trans. On THZ Sci. and Techn.* **1**, 241 (2011)
- [9] W. L. Chan, J. Deibel, D. Mittleman “Imaging with terahertz radiation” *Rep. Prog. Phys.* **70**, 1325 (2007)
- [10] Z. D. Taylor, R. S. Singh, D. B. Bennett, P. Tewari, C. P. Kealey, N. Bajwa, M. O. Culjat, A. Stojadinovic, J. P. Hubschman, E. R. Brown, W. S. Grundfest “THz medical imaging: in vivo Hydration sensing” *IEEE Trans. On THZ Sci. and Techn.* **1**, 0033 (2011)
- [11] P. U. Jepsen, D. G. Cooke, M. Koch “Terahertz spectroscopy and imaging—modern techniques and applications” *Laser Photon. Rev.* **5**, 124 (2011)

- [12] Z. Wu, A. S. Fisher, J. Goodfellow, M. Fuchs, D. Daranciang, M. Hogan, H. Loos, A. Lindenberg “Intense terahertz pulses from SLAC electron beams using coherent transition radiation” *Rev. Scient. Instr.* **84**, 02270 (2013)
- [13] G. P. Willimas “Filling the THz gap – High power sources and applications” *Rep. Prog. Phys.* **69**, 301 (2006)
- [14] M. C. Hofman, J. A. Fülöp “Intense ultrashort terahertz pulses: Generation and applications” *Jour. Phys. D*, **44**, 8 (2011)
- [15] D. You, R. R Jones, P. H. Bucksbaum “Generation of high power sub-cycle 500-fs electromagnetic pulses” *Opt. Lett.* **18**, 290 (1993)
- [16] R. R. Jones, D. You, P. H. Bucksbaum “Ionization of Rydberg atoms by subpicosecond half-cycle electromagnetic pulses” *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1236 (1993)
- [17] R. R. Jones “Creating and probing electronic wave packets using half cycle pulses” *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3927 (1996)
- [18] T. J. Binsky, G. Haefliger, R. R. Jones “Ionization of Na Rydberg atoms by subpicosecond quarter-cycle circularly polarized” *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2018 (1997)
- [19] A. Matos-Abiague, J. Berakdar “Controlling the orientation of polar molecules by half-cycle pulses” *Chem. Phys. Lett.* **382**, 475 (2003)
- [20] A. Matos-Abiague, J. Berakdar “Photo-induced charge currents in mesoscopic rings” *Phys. Rev. Lett.* **29**, 94 (2005)
- [21] A. Matos-Abiague, J. Berakdar “Ultrafast control of electron motion in quantum well structures” *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2346 (2004)
- [22] F. Blanchard, L. Razzari, H. C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, F. A. Hegman “Generation of 1.5 μ J single cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal” *Opt. Express.* **15**, 13212 (2007)
- [23] K. L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, K. A. Nelson “Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification” *Appl. Phys. Lett.* **90**, 171121 (2007)

- [24] G. Stepanov, L. Bonacina, S. V. Chekalin, J. P. Wolf “Generation of 30 μ J single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification” *Opt. Lett.* **33**, 2497 (2008)
- [25] A. G. Stepanov, S. Henin, Y. Petit, L. Bonacina, J. Kasparian, J. P. Wolf “Mobile source of high energy single cycle terahertz pulses”
- [26] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almasi, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling “Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification” *Opt. Lett.* **15**, 37 (2012)
- [27] J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, J. Kuhl “Velocity matching by pulse front tilt technique for large area THz pulse generation” *Opt. Express* **10**, 1161 (2002)
- [28] F. Su, F. Blanchard, G. Sharma, L. Razzari, A. Ayeshim, T. L. Cocker, L. V. Titova, T. Ozaki, J. C. Kieffer, R. Morandotti, M. Reid, F. Hegman “Terahertz pulse induced intervalley scattering in photo-excited GaAs” *Opt. Expr.* **17**, 9620 (2009)
- [29] L. Razzari, F. Su, G. Sharma, F. Blanchard, A. Ayeshim, H. C. Bandulet, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, F. Hegman “Nonlinear ultrafast modulation of the optical absorption of intense few cycle terahertz pulses in n-doped semiconductors” *Phys. Rev. B*, **79**, 4 (2009)
- [30] G. Sharma, L. Razzari, F. Shu, F. Blanchard, A. Ayeshim, T. L. Cocker, L. V. Titova, H. C. Bandulet, T. Ozaki, J. C. Kieffer, R. Morandotti, M. Reid, F. Hegman “Time-resolved terahertz spectroscopy of free carrier nonlinear dynamics in semiconductor” *IEEE photonics Journal*, **2**, 578 (2010)
- [31] J. Hebling, M. C. Hoffmann, H. Y. Hwang, K. L. Yeh, K. A. Nelson “Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si, and GaAs by terahertz pump-terahertz probe measurements” *Phys. Rev. B*, **81**, 035201 (2010)
- [32] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K. L. Yeh, K. A. Nelson “Impact ionization in InSb probed by THz pump THz probe spectroscopy” *Phys. Rev. B*, **79**, 161201 (2009)
- [33] G. Sharma, I. Al-Naib, H. Hafez, R. Morandotti, D. G. Cooke, T. Ozaki “Carrier density dependence of the nonlinear absorption of intense THz radiation in GaAs” *Opt. Expr.* **20**, 18016 (2012)

- [34] M. C. Hoffmann, D. Turchinovich “Semiconductor saturable absorbers for ultrafast terahertz signals” *Appl. Phys. Lett.* **96**, 151110 (2010)
- [35] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, K. Tanaka “Extraordinary carrier multiplication gated by picosecond electric field pulse” *Nature Communication* **2**, 594 (2011)
- [36] F. Blanchard, D. Golde, F. H. Su, L. Razzari, G. Sharma, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, M. Kira, S. W. Koch, F. Hegman “Effective mass anisotropy of hot electrons in non-parabolic conduction bands of n-doped InGaAs films using ultrafast terahertz pump-probe techniques” *Phys. Rev. Lett.* **107**, 107401 (2011)
- [37] K. Tanaka “Nonlinear terahertz spectroscopy in solids with single cycle terahertz pulses” *EPJ web of conferences* **41**, 09015 (2013)
- [38] P. Avouris “Graphene : Electronic and photonic properties and devices” *Nano Lett.* **10**, 4285 (2010)
- [39] C. Schmidt, B. Mayer, F. Junginger, M. Rebholz, A. Grupp, D. Brida, R. Huber, A. Leitenstorfer, A. Pashkin “Ultrafast low-energy dynamics of graphite studied by nonlinear multi-THz spectroscopy” *EPJ web of conference*, **41**, 04023 (2013)
- [40] M. C. Hoffmann, N. C. Brandt, H. Y. Hwang, K. L. Yeh, K. A. Nelson “Terahertz kerr effect” *Appl. Phys. Lett.* **95**, 231105 (2009)
- [41] E. Freysz, J. Degert “Nonlinear optics: Terahertz Kerr effect” *Nature photonics*, **4**, 131 (2010)
- [42] C. Feuillet-Palma, Y. Todorov, A. Vasanelo, C. Sirtori “Strong near field enhancement in THz nano-antenna arrays” *Scientific Reports*, **3**, 1361 (2012)
- [43] K. Iwaszczuk, A. Andryieuski, A. Lavrinenko, X. C. Zhang, P. U. Jepsen “Terahertz field enhancement to the MV/cm regime in a tapered parallel plate waveguide” *Opt. Expr.* **20**, 8344 (2012)
- [44] M. Liu, H. Y. Hwang, H. Tao, A. C. Strikwerda, K. Fan, G. R. Keiser, A. J. Sternbach, K. G. West, S. Kittiwatanakul, J. Lu, S. A. Wolf, F. G. Omenetto, X. Zhang, K. A. Nelson, R. Averitt “Terahertz field induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial” *Nature*, **000**, 1 (2012)
- [45] A. M. Weiner “Ultrafast pulse shaping : A tutorial review” *Optics Communications*, **284**, 3669 (2011)

- [46] J. Ahn, A. V. Efimov, R. D. Averitt, A. J. Taylor “Terahertz waveform synthesis via optical rectification of shaped ultrafast laser pulses” *Opt. Express* **11**, 2486 (2003)
- [47] D. S. Citrin “Picosecond dynamics of terahertz-sideband generation in far-infrared illuminated quantum wells” *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3176 (2000)
- [48] J. L. Johnson, T. D. Dorney, D. M. Mittleman ”Enhanced depth resolution in terahertz imaging using phase-shift interferometry” *Appl. Phys. Lett.* **78**, 835 (2001)
- [49] T. Qi, Y. H. Shin, K. L. Yeh, K. A. Nelson, A. Rappe “Collective coherent control : Synchronization of polarization in ferroelectric PbTiO₃ by shaped THz pulses” *Phys. Rev. Lett.* **102**, 247603 (2009)
- [50] J. Ahn, D. N. Hutchinson, C. Rangan, P. H. Buschsbaum ”Quantum phase retrieval of a Rydberg wave packet using a half-cycle pulse” *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1179 (2001)
- [51] Y. Nakaruma, Y. A. Pashkin, J. S. Tsai ” Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper pair box” *Nature*, **398**, 786 (1999)
- [52] S. Vidal, J. Degert, J. Oberlé, E. Freysz “Femtosecond optical shaping for tunable terahertz pulse generation” *Journ. Soc. Am. B*, **27**, 1044 (2010)
- [53] Y. S. Lee, N. Amer, W. C. Hurbut “Terahertz pulse shaping via optical rectification in poled lithium niobate” *App. Phys. Lett.* **82**, 170 (2003)
- [54] J. Krause, M. Wagner, S. Winnerl, M. Helm, D. Stehr “Tunable narrowband THZ pulse generation in scalable large area photoconductive antenna” *Opt. Express* **19**, 191114 (2011)
- [55] J. Bromage, S. Radic, P. Agrawal, C. R. Stroud Jr “Spatiotemporal shaping of half-cycle terahertz pulses by diffraction through conductive apertures of finite thickness” *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 1399 (1997)
- [56] R. Yano, H. Gotoh, Y. Hirayama, T. Hattori, S. Miyashita “Synthesis of terahertz electromagnetic wave pulses using amplitude and phase masks” *Chem. Phys. Lett.* **326**, 577 (2006)
- [57] A. K. Agrawal, H. Cao, A. Nahata “Terahertz pulse shaping using structured Metal films” CLEO conference, CM13 (2006)

- [58] J. M. Manceau, A. Averchi, F. Bonaretti, D. Faccio, P. D. Trapani, A. Couairon, S. Tzortzakis “Terahertz pulse emission optimization from tailored femtosecond laser pulse filamentation in air” *Opt. Lett.* **34**, 2165 (2009)
- [59] Y. Bai, L. Song, R. Xu, C. Li, P. Liu, Z. Zeng, Z. Zhang, H. Lu, R. li, Z. Xu “Waveform controlled terahertz radiation from the air filament produced by few cycle laser pulses“ *Phys. Rev. Lett.* **108**, 255004 (2012)
- [60] K. Kawase, J. I. Shikata, K. Imai, H. Ito, “Transform-limited, narrow-linewidth, terahertz-wave generator”, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2819 (2001)
- [61] T. Kleine-Ostmann, P. Knoboch, M. Koch, S. Hoffmann, M. Breede, M. Hofmann, G. Hein, K. Pierz, M. Sperling, K. Donhuijsen “Continuous THz imaging” *Electron. Lett.* **37**, 1461 (2001)
- [62] C. Sirtori, S. Dhillon, C. Faugeras, A. Vasanelli, X. Marcadet “Quantum cascade lasers: the semiconductor solution for lasers in the mid- and far-infrared spectral regions” *Phys. Status Solidi A*, **203**, 3533 (2006)
- [63] T. Dekorsy, V. A. Yakolev, W. Seidel, M. Helm, F. Keilmann “Infrared-phonon-polariton resonance of the nonlinear susceptibility in GaAs” *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 055508 (2003)
- [64] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, S. R. Keiding “Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas” *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 2424, (1996)
- [65] D. H. Auston, K. P. Cheung, P. R. Smith “Picosecond photoconducting hertzian dipole” *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284 (1984).
- [66] P. R. Smit, D. H. Auston, M. C. Nuss “Subpicosecond photoconducting dipole antennas” *J. Quantum Electron.* **24**, 255 (1988).
- [67] X. C. Zhang, X. F. Ma, Y. Jin, T. M. Lu ”Terahertz optical rectification from a nonlinear organic crystal” *Apl. Phys. Lett.* **26**, 3080 (1992)
- [68] Y. H. Jin, X. C. Zhang “Terahertz optical rectification” *J. Nonlinear Opt.*, **4**, 459 (1995)
- [69] A. Nahata, A. S. Weling, T. F. Heinz “A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling” *App. Phys. Lett.*, **69**, 2321 (1996)

- [70] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, H. Roskos “Large area electro-optic ZnTe terahertz emitters” *Opt. Exp.* **13**, 5353 (2005)
- [71] C. Fattinger, D. Grischkowsky “Terahertz beams” *Appl. Phys. Lett.* **54**, 490 (1989)
- [72] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, R. W. Falcone “Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma source interaction” *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2725 (1993)
- [73] D. H. Auston, P. R. Smith “Generation and detection of millimeter waves by picosecond photoconductivity” *Appl. Phys. Lett.* **43**, 631 (1983)
- [74] L. Duvillaret, F. Garet, J. F. Roux, J. L. Coutaz, “Analytical Modeling and optimisation of terahertz time-domain spectroscopy experiments using photoswitches as antennas” *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, **7**, 1077 (2001)
- [75] S. Winnerl “Scalable microstructured photoconductive THz emitters” *J. Infrared Mili. Terahz. Waves*, **33**, 431 (2012)
- [76] T. Hattori, K. Egawa, S. I. Ookuma, T. Itatani “Terahertz pulses from Large-aperture antenna with interdigitated electrodes” *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 422 (2006)
- [77] J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and J. D. Morse, "Saturation Properties of Large Aperture Photoconducting Antennas," *IEEE J. Quantum Electronics* **28**, 1607 (1992).
- [78] P. K. Benicewicz, J. P. Roberts, and A. J. Taylor, "Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased photoconductors," *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2533 (1994).
- [79] E. Burdiato, J. Margolies, S. Jeong, J. Son, J. Bokor, “High intensity terahertz pulse at 1kHz repetition rate” *IEEE Journal of quantum electronics*, **32**, 1839 (1996)
- [80] G. C. Loata, M. D. Thomson, T. Löffler, H. G. Roskos “Radiation field screening in photoconductive antennae studied via pulsed terahertz emission spectroscopy”
- [81] M. R. Stone, M. Naftaly, R. E. Miles, J. R. Fletcher, and D. P. Steenson, "Electrical and Radiation Characteristics of Semilarge Photoconductive Terahertz Emitters," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* **52**, 2420 (2004).

- [82] S. G. Park, A. M. Weiner, M. R. Melloch, C. W. Siders, J. L. W. Siders, A. J. Taylor, "High power narrow band Terahertz generation using large aperture photoconductors" *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **35**, 1257 (1999)
- [83] C. B. Collins, F. Davanloo "Lifetime and longevity of an intense, photoconductively-switched stacked blumlein modulator for ultra wideband HPM applications" Research for U.S Air force Office of scientific Research, Final Technical report (2003)
- [84] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy, M. Helm "High-intensity terahertz radiation from a microstructured large area photoconductor" *App. Phys. Lett.* **86**, 121114 (2005)
- [85] M. Awad, M. Nagel, H. Kurz "Characterization of low temperature GaAs antenna array terahertz emitters" *App. Phys. Lett.* **91**, 181124 (2007)
- [86] G. Matthäus, S. Nolte, R. Hohmuth, M. Voitsch, W. Richter, B. Pradarutti, S. Riehm, G. Notni, A. Tünnermann "Microlens coupled interdigital photoconductive switch" *App. Phys. Lett.* **93**, 091110 (2008)
- [87] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, M. Helm "Optimum excitation conditions for the generation of high electric field terahertz radiation from an oscillator driven photoconductive device". *Opt. Lett.* **31**, 1546 (2006).
- [88] M. Beck, H. Schäfer, G. Klatt, J. Demsar, S. Winnerl, M. Helm, T. Dekorsy "Impulsive terahertz radiation with high electric fields from an amplifier-driven large area photoconductive antenna" *Opt. Exp.* **18**, 9251 (2010)
- [89] E. Castro-Camus, J. Lloyd-Hughes, M. B. Johnston "Three dimensional carrier dynamics simulation of terahertz emission from photoconductive switch" *Phys. Rev. B* **71**, 195301 (2005)
- [90] J. H. Kim, A. Polley, S. E. Ralph "Efficient photoconductive terahertz source using line excitation" *Opt. Lett.* **30**, 2490 (2005)
- [91] S. E. Ralph, D. Grischkowsky "Trap enhanced electric fields in semi-insulator: the role of electrical and optical of carriers injection" *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1972 (1991)
- [92] D. S. Kim, D. S. Citrin "Coulomb and radiation screening in photoconductive terahertz sources" *Appl. Phys. Lett.* **88**, 161117 (2006)

- [93] K. H. Yang, P. Richards, Y. R. Shen “Generation of far infrared radiation picosecond light pulses in LiNbO₃” Appl. Phys. Lett. **19**, 320 (1971)
- [94] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X. C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, M. Alexander ”Terahertz, optical rectification from (110) zincblende crystals” Appl. Phys. Lett. **64**, 1324 (1994)
- [95] P. Gu, M. Tani, “Terahertz Radiation from Semiconductor Surfaces” dans Terahertz Optoelectronics, K. Sakai, (Ed.), Topics in Applied Physics **97**, 63, Springer-Verlag, (2005).
- [96] S. M. Harrel, R. L. Milot, J. M. Schleicher, C. A. Schmuttenmaer “ Influence of free-carrier absorption on terahertz generation from ZnTe (110)” J. Appl. Phys. **107**, 033525 (2010)
- [97] Z. Y. Zhao, S. Hameau, J. Tignon “Terahertz generation by optical rectification and competition with other non linear processes” Chin. Phys. Lett **25**, 1868 (2008)
- [98] J. Hebling, K. L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, K. A. Nelson “Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulses-front excitation and their application possibilities” J. Opt. Am. B, 25, B6 (2008)
- [99] F. G. Sun, X. C. Zhang “Two-photon absorption induced saturation of THz radiation in ZnTe” in Conference on Laser and Electro-Optics, OSA Technical digest, 479 (2000)
- [100] T. Löffner, M. Kress, M. Thomson, T. Hahn, N. Hasegawa, H. G. Roskos “Comparative performance of terahertz emitters in amplifier-laser-based systems” Semicond. Sci. Technol. **20**, S134 (2005)
- [101] F. Blanchard, L. Razzari, H. C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, F. A. Hegman “Generation of 1.5 μJ single cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal” Opt. Express. **15**, 13212 (2007)
- [102] J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, J. Kuhl “Velocity matching by pulse front tilting for large area THz pulse generation” Opt. Expr **21**, 1161 (2002)
- [103] F. Blanchard, G. Sharma, L. Razzari, X. Ropagnol, H. C. Bandulet, F. Vidal, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, H. Tiedje, H. Haugen, M. Reid, F. Hegman

- “Generation of intense Terahertz radiation via optical methods” IEEE Jour. Of Selected topics in Quantum Elect. (Invited Paper) **17**, 1077 (2011)
- [104] G. Stepanov, J. Hebling, J. Kuhl “Efficient generation of subpicosecond terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts” Appl. Phys B **83**, 3000 (2003)
- [105] B. Bartal, I. Z. Kozma, A. G. Stepanov, G. Almasi, J. Kuhl, E. Riedle, J. Hebling “Toward generation of μJ range sub-ps THz pulses by optical rectification” Appl. Phys. B **86**, 419 (2007)
- [106] K. L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann, K. A. Nelson “Generation of 10 μJ ultrashort terahertz pulses by optical rectification” Appl. Phys. Lett **90**, 171121 (2007).
- [107] J. A. Fülöp, L. Palfalvi, M. C. Hoffmann, J. Hebling “Design of high energy terahertz sources based on optical rectification” Opt. Express **18**, 12311 (2010)
- [108] M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, E. A. Mashkovitch “Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals” J. Opt. Soc. Am. B, **28**, 1724 (2011)
- [109] J. A. Fülöp, L. Palfalvi, S. Klingebiel, G. Almasi, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling “Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification” Opt. Lett. **37**, 557 (2012)
- [110] J. A. Fülöp, L. Palfalvi, M. C. Hoffmann, J. Hebling “Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification” Opt. Express, **19**, 15090 (2011)
- [111] S. W. Huang, E. Granados, W. R. Huang, L. E. Zapata, F. X. Kärtner “High conversion efficiency, high energy terahertz pulses by optical rectification in cryogenic cooled lithium niobate” Opt. Lett. **5**, 796 (2013)
- [112] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, K. Tanaka “Single cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃” Appl. Phys. Lett. **96**, 091106 (2011)
- [113] K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowacki, G. Rodriguez “Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions” Nature Photonics **2**, 605 (2008)”

- [114] V. B. Krapchev “Kinetic of the ponderomotive effects in a plasma” *Phys. Rev. Lett.* **42**, 497 (1979)
- [115] T. Löffler, F. Jacob, H. G. Roskos ”Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air” *Appl. Phys. Lett.* **77**, 453 (2000)
- [116] T. Löffler, M. Kress, H. G. Roskos “Efficient terahertz pulse generation in laser induced Gas plasma” *Acta Physica Polonica A*, **107**, 99 (2005)
- [117] D. J. Cook, R. M. Hochstrasser “Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air” *Opt. Lett.* **25**, 1210 (2000)
- [118] X. Xie, J. Dai, X. C. Zhang “Coherent control of THz Wave generation in ambient air” *Phys. Rev. Lett.* **96**, 075005 (2006)
- [119] T. Bartel, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser “Generation of single cycle THz transients with high electric field amplitudes” *Opt. Lett.* **30**, 2805 (2005)
- [120] K. Y. Kim, J. H. Glowina , A. J. Taylor, G. Rodriguez “Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry broken laser fields” *Opt. Express* **15**, 4577 (2007)
- [121] K. Y. Kim, J. H. Glowina , A. J. Taylor, G. Rodriguez “High power broadband terahertz generation via two-color photoionization in gases” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **48**, 797 (2012)
- [122] F. Blanchard, G. Sharma, X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki “Improved terahertz two-color plasma sources pumped by high intensity laser beam” *Opt. Express* **17**, 6044 (2009)
- [123] M. D. Thomson, M. Kress, T. Löffler, H. G. Roskos “Broadband THz emission from gas plasma induced by femtosecond optical pulses: From fundamentals to applications” *Laser Photon Rev.* **1**, 349 (2007)
- [124] H. Zhong, N. Karpowicz, X. C. Zhang “Terahertz emission profile from laser-induced air plasma” *Appl. Phys. Lett.* **88**, 261103 (2006)
- [125] T. I. Oh, Y. S. You, K. Y. Kim “Two-dimensional plasma current and optimized terahertz generation in two-color photoionization” *Opt. Express*, **20**, 19778 (2012)
- [126] D. Dietze, K. Unterrainer, J. Darmo “Terahertz emission from a two-color plasma filament in a slot waveguide” *App. Phys. Lett.* **100**, 091113 (2012)

- [127] M. Clerici, M. Pecianti, B. E. Schmidt, L. Caspani, M. Shalaby, M. Giguère, A. Lotti, A. Couairon, F. Legaré, T. Ozaki, D. Faccio, R. Morandotti “Scaling mechanism for efficient wavelength conversion in laser plasma” arXiv:1207.4754v1 (2012).
- [128] B. S. Alexandrov, O. K. Rasmussen, A. R. Bishop, A. USheva, L. B. Alexandrov, S. Chong, Y. Dagon, L. G. Boosheri, C. H. Mielke, M. L. Philips, J. S. Martinez, H. T. Chen, G. Rodriguez “Non thermal effects of terahertz radiation on gene expression in mouse stem cells” *Biomed. Opt. Exp.* **2**, 2679 (2011)
- [129] K. Tanaka “Nonlinear Terahertz spectroscopy in solids with single cycle THz pulses” *EPJ Web of Conferences* **41**, 09015 (2013)
- [130] H. Hirori, K. Tanaka “Nonlinear optical phenomena induced with intense single cycle terahertz pulses” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Elect.* **19**, 1077 (2012)
- [131] D. J. Cook, J. X. Chen, E. A. Morlino R. M. Hochstrasser “Terahertz field induced second harmonic generation measurements of liquids dynamics” *Chem. Phys. Lett.* **309**, 221 (1999)
- [132] A. Mysrowicz, D. Hulin. A. Antonetti, A. Migus, W. T. Masselink, H. Morkoç “Dressed exciton in a multiple quantum-well structure : Evidence for an optical Stark effect with femtosecond response time” *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2748 (1986)
- [133] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite “Free-free transitions following six photon ionisation of xenon atoms” *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979)
- [134] P. B. Corkum, N. H. Burnett, F. Brunel “Above-threshold ionisation in the long-wavelength limit” *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1259 (1989)
- [135] S. Ghimire, A. D. Dichiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. Dimauro, D. A. Reis “Observation of high order harmonic generation in a bulk crystal” *Nat. Phys.* **7**, 138 (2011)
- [136] T. Brabec, F. Krausz “Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics” *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000)
- [137] Q. Wu, Z. C. Zhang “Ultrafast electro-optic field sensors” *Appl. Phys. Lett.* **68**, 1604 (1996)

- [138] G. Gallot, D. Grischkowsky "Electro-optic detection of terahertz-wave" J. Opt. Soc. Am. B, **16**, 1204 (1999)
- [139] C. Winnewisser, P. U. Jepsen, M. Schall, V. Schyja H. Helm "Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃, LiNbO₃ and ZnTe," Appl. Phys. Lett. **71**, 3069 (1997)
- [140] Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, X. C. Zhang "Electro-optic transveivers for terahertz-wave" J. Opt. Soc. Am. B **18**, 823 (2001)
- [141] L. Duvillaret, S. Rialland, J. L. Coutaz "Electro-optics sensor for electric field measurement-part II: Choice of the crystals and complete optimization of their orientation" J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2704 (2002)
- [142] P. C. Planken, H. K. Nienhuys, H. J. Bakkar, T. Wenckebach "Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe" J. Opt. Soc. B **18**, 313 (2001)
- [143] A. Schenider, M. Stillhart, P. Günter "High efficiency generation detection of terahertz pulses using laser pulses at telecommunication wavelengths" Opt. Expr. **14**, 5376 (2006)
- [144] S. L. Dexheimer "Terahertz spectroscopy: Principles and applications" C.R.C. Press, p. 53-54 (2008)
- [145] Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, X. C Zhang "Electro-optic transeivers for terahertz wave" J. Opt. Soc. Am. B, **18**, 823 (1999)
- [146] D. H. Auston, A. M. Johnson, P. R. Smith, J. C. Bean "Picosecond optoeletronic detection, sampling, and correlation measurements in amorphous semiconductors" App. Phys. Lett. **37**, 371 (1980)
- [147] S. Kono, M. Tani, K. Sakai "Ultrabroadband photoconductive detection: comparison with free-space electro-optic sampling" Appl. Phys. Lett. **79**, 898 (2001)
- [148] J. Zhang, Y. Hong, S. L. Braunstein, K. A. Shore "Terahertz pulse generation and detection with LT-GaAs photoconductive antenna" IEEE Proc. Optoelectron. **151**, 98 (2004)

- [149] T. A. Liu, M. Tani, M. Nakajima, M. Hangyo, C. L. Pan "Ultrabroadband terahertz field detection by photoconductive antennas on multi-energy arsenic ion implanted GaAs and semi-insulating GaAs" *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1322 (2003)
- [150] H. Shimosato, M. Ashida, T. Itoh, S. Saito, K. Sakai "Ultrabroadband detection of terahertz radiation from 0.1 to 100 THz with photoconductive antenna" *Ultrafast Optics V*, Springer series in optical sciences, **132**, 317 (2007)
- [151] G. Hyseni, N. Caka, K. Hyseni "Detectors parameters : Semiconductor bolometers versus Pyroelectrics" *WSEAS transaction Circuits and Systems*, ISSN: 1109-2734, **9**, 238 (2010)
- [152] A. Rogalsky, F. Sizov "Terahertz detectors and focal plane arrays" *Opto-Elect. Rev.* **19**, 346 (2011)
- [153] Y. Ta "Action of radiations on pyroelectric crystals" *C. R. Acad. Sci.* **207**, 1215 (1938)
- [154] G. Zhao, R. N. Schouten, N. van der Valk, W. T. Wenckebach, and P. C. M. Planken, "Design and performance of a THz emission and detection setup based on semi-insulating GaAs emitter," *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 1715 (2002).
- [155] D. J. Griffiths, "Introduction to electrodynamics," 2nd Edition (Prentice-Hall of India Private Ltd., New Delhi, India) p. 284, (1994)
- [156] D. J. Griffiths, "Introduction to electrodynamics," 2nd Edition (Prentice-Hall of India Private Ltd., New Delhi, India) p. 35, (1994)
- [157] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics," 2nd Edition, (New York : Wiley, USA), p. 190, (1975)
- [158] B. B. Hu, J. T. Darrow, X. C. Zhang, D. H. Auston, P. R. Smith, "Optically steerable photoconducting antennas", *App. Phys. Lett.* **56**, 886 (1990)
- [159] J. D. Kraus, "Antennas," 2nd Edition, (New York : McGraw-Hill), p. 207, (1988).
- [160] J.T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, "Power Scaling of Large Aperture Photoconducting Antennas," *Appl. Phys. Lett.* **58**, 25 (1991).
- [161] J. T. Darrow, B. B. Hu, X. -C. Zhang, D. H. Auston, "Subpicosecond electromagnetic pulses from large-aperture photoconducting antennas," *Opt. Lett.* **15**, 323, (1990).

- [162] M. Reid, R. Fedosejevs, "Quantitative comparison of terahertz emission (100) InAs surfaces and a GaAs large aperture photoconductive switch at high fluencies" *App. Opt.*, **44**, 149 (2005)
- [163] T. Hattori, K. Tukamoto, H. Naktsuka, "Time resolved study of intense terahertz pulse generated by a large photoconductive antenna" *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, 4907, (2001)
- [164] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics 2nd Edition*, (New York : Wiley, USA), Chapter 6, (1975).
- [165] D. J. Griffiths, "Introduction to Electrodynamics," 2nd Edition (Prentice-Hall of India Private Ltd., New Delhi, India) p. 358, (1994)
- [166] K. J. Siebert, A. Lisauskas, T. Loffler, H. G. Roskos, "Field screening in low-temperature-grown GaAs photoconductive antenna" *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, 1038 (2004)
- [167] J. Shan, T. F. Heinz "Terahertz radiation from semiconductors" *Ultrafast Dynamical Processes in semiconductors* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 37 (2004)
- [168] G. Rodriguez, A. J. Taylor, "Screening of the bias field in terahertz generation from photoconductors" *Opt. Lett.*, **21**, 1046 (1996)
- [169] A. J. Taylor, P. K. Benicewicz, S. M. Young, "Modeling of femtosecond electromagnetic pulses from large-aperture photoconductors" *Opt. Lett.*, **18**, 1340 (1993)
- [170] D. H. Auston, "Electro-optic generation and detection of femtosecond electromagnetic pulse" Final report submitted to H. Schlossberg Air Force Institute of scientific research Bolling Air Force base.
- [171] P. K. Benicewicz, A. J. Taylor, "Scaling of Terahertz radiation from large-aperture biased InP photoconductors" *Opt. Lett.* , **18**, 1332 (1993).
- [172] E. Burdiato, J. Margolies, S. Jeong, J. Son, J. Bokor, "High intensity terahertz pulse at 1kHz repetition rate" *IEEE Journal of quantum electronics*, **32**, 1839 (1996)
- [173] <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaAs/electric.html>

- [174] L. Tian, W. Shi, Q. Feng, “Breakover mechanism of GaAs photoconductive switch triggering spark for high power applications” *J. Appl. Phys.*, **110**, 094507 (2011)
- [175] K. Sakai “Terahertz optoelectronics” 1st ed. Springer (2005)
- [176] O. Imafuji, B. P. Singh, Y. Hirose, Y. Fukushima, S. Takigawa “High power subterahertz electromagnetic wave radiation from GaN photoconductive switch” *Appl. Phys. Lett.* **91**, 071112 (2007)
- [177] S. Ono, H. Murakami, A. Quema, G. Diwa “Generation of terahertz radiation using zinc oxide as photoconductive material excited by ultraviolet pulses” *Appl. Phys. Lett.* **87**, 261112 (2005)
- [178] A. Y. Elezzabi, H. Houtman, J. Meyer “Time resolved impact ionization in ZnSe high-voltage switches” *IEEE Transaction on Plasma Science*, **22**, 1043 (1994)
- [179] H. Yoneda, K. Tokuama, K. I. Ueda, H. Yamamoto, K. Baba “High-power terahertz radiation emitter with a diamond photoconductive switch array” *Appl. Opt.* **36**, 6733 (2001)
- [180] L. Hou, W. Shei, S. Chen “Noise Analysis and optimization of terahertz photoconductive emitters” *IEEE Journal of selected Topics in Quantum Electronics*, **19**, 8401305 (2013)
- [181] S. winner, F. Peter, S. Nitsche, A. Dreyhaupt, B. Zimmermann, M. Wagner, H. Schneider, M. Helm, K. Köhler “Generation and detection of THz radiation with scalable antennas based on GaAs substrates with different carrier lifetimes” *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics*, **14**, 449 (2008)
- [182] J. Lloyd-Hughes, E. Castro-Camus, M. B. Johnston “Simulation and optimization of terahertz emission from InGaAs and InP photoconductive swithes” *Solid State Communications*, **136**, 1 (2005)
- [183] J. Lloyd-Hughes, E. Castro-Camus, M. D. Fraser, C. Jagadish, M. B. Johnston “Carrier dynamics in ion-implanted GaAs studied by simulation and observation of terahertz emission” *Phys. Rev. B*, **70**, 235330 (2004)
- [184] B. Salem, D. Morris, V. Aimez, J. Beerens, J. Beauvais, D. Houde “Pulsed photoconductive antenna terahertz sources made on ion-implanted GaAs substrate” *J. Phys. Condens. Natter*, **17** 7327 (2005)

- [185] B. Salem, D. Morris, V. Aimez, J. Beerens, J. Beauvais, D. Houde “Improved characteristic of terahertz set-up built with an emitter and a detector made on proton-bombarded GaAs photoconductive materials” *Semicond. Sci. Technol.* **21**, 283, (2006)
- [186] J. Mangeney “Thz photoconductive antennas made from ion-bombarded semiconductors” *J. Infrared Milli. Terahz Waves*, **33**, 455 (2012)
- [187] D. Harrison, R. A. Abram, S. Brand “Impact ionization rate calculations in wide band gap semiconductors” *Jour. Appl. Phys.* **85**, 8178 (2012)
- [188] R. Umezawa, R. Nagasak, M. Cadatal, S. Ono, N. Sarukura, Y. Ichikawa “Terahertz radiation photoconductive antenna in sputtered zinc oxide thin film” *Jpn. J. Appl. Phys.* **48**, 030209 (2009)
- [189] M. C. Beard, G. M. Turner, C. Schmuttenmaer “Subpicosecond carrier dynamics in low-temperature grown GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy” *Jour. Of Appl. Phys.* **90**, 5915 (2001)
- [190] J. N. Heyman, D. Bell, T. Khumalo “Terahertz photo-hall measurements of carrier mobility in GaAs and InP” *Appl. Phys. Lett.* **88**, 162104 (2006)
- [191] <http://lmn.emt.inrs.ca/FR/ALLS.htm>
- [192] J. F. Holzman, A. Y. Elezzabi “Two-photon photoconductive terahertz generation in ZnSe” *Appl. Phys. Lett.* **83**, 2967 (2003)
- [193] D. Strickland, G. Mourou “Compression of amplified chirped optical pulses” *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985)
- [194] C. Ma, Daniel Moore, Y. Ding, J. Li, Z. L. Wang “Nanobelt and nanosaw structures of II-VI semiconductors” *Int. J. Nanotechnology*, **1**, 431 (2004)
- [195] <http://www.znse.org/>
- [196] G. Grebet, G. Roussos, H.-J. Schulz “Cr²⁺ excitation levels in ZnSe and ZnS” *J. Phys. C: Solid State Phys.* **9**, 4511 (1976)
- [197] J. S. Wang, W. J. Chen, C. S. Yang, Y. H. Tsai, H. H. Wang, R. H. Chen, J. L. Shen, C. D. Tsai “Improving stability of photoluminescence of ZnSe thin films grown by molecular beam epitaxy by incorporating Cl dopant” *App. Phys. Lett.* **98**, 021908 (2011)

- [198] Y. H. Wu, K. Arai, T. Yao “Temperature dependence of the photoluminescence of ZnSe/ZnS quantum dot structures” *Jour. Phys. Rev. B*, **53**, R10485 (1996)
- [199] <http://www.janostech.com/knowledge-center/optical-materials-guide/zinc-selenide-znse.html>
- [200] P. T. Ho, F. Peng, J. Goldhar “Photoconductive switching using Polycrystalline ZnSe” *IEEE Transactions on Electron Devices*, **37**, 2517 (1990)
- [201] P. S. Cho, P. T. Ho, J. Goldhar, C. H. Lee “Photoconductivity in ZnSe under high electric fields” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **30**, 1489 (1994)
- [202] A. K. G. Tapia, N. Yamamoto, C. Ponseca Jr, K. Tominaga “Charge carrier dynamics of ZnSe by optical pump-terahertz probe spectroscopy” *Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, International conference* (2011)
- [203] M. A. J. Klik, T. Gregorkiewicz “Terahertz modulation of the blue photoluminescence in ZnSe” *Phys. Rev. B*, **72**, 125205 (2005)
- [204] H. Hirori, M. Nagai, K. Tanaka “Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/MgSSe multiple quantum wells” *Phys. Rev. B*, **81**, 081305 (2010)
- [205] J. F. Holzman, F. E. Vermeulen, S. E. Irvine, A. Y. Elezzabi “Free space detection of terahertz radiation using monocrystalline and polycrystalline ZnSe electro-optic sensors” *App. Phys. Lett.* **81**, 2294 (2002)
- [206] X. Wu, X. Chen, F. Zhao, T. Jia, G. Wang “Terahertz radiation mechanisms in ZnSe at femtosecond laser pulse excitation” *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 1497 (2007)
- [207] X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid “Toward high power terahertz emitters using large aperture ZnSe antennas” *Phot. Jour.* **3**, 174 (2011)
- [208] <http://www.thzdb.org/>
- [209] Y. Yang, A. Shutler, D. Grischkowsky “Measurement of the transmission of the atmosphere from 0.2 to 2 THz” *Opt. Expr.* **19**, 8830 (2011)
- [210] R. A. Cheville, D. A. Grischkowsky “Far infrared foreign and self-broadened rotational linewidths of high temperature water vapor” *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 317 (1999)
- [211] W. Shi, L. Hou, Z. Liu, T. Tongue “Terahertz generation from SI-GaAs stripline antenna with different structural parameters” *J. Opt. Soc. Am. B*, **26**, 107 (2009)

- [212] P. Kuzel, M. A. Khazan, J. Kroupa “Spatiotemporal transformation of ultra short pulse” J. Opt. Soc. Am. B, **16**, 1795 (1999)
- [213] R. H. Chou, T. A. Kiu, C. L. Pan “Analysis of terahertz pulses from large-aperture biased semi-insulating and arsenic-ion implanted GaAs antennas” J. Appl. Phys. **104**, 053121 (2008)
- [214] N. Sankar, K. Ramachandran, C. Sanjeeviraja “Growth and characterization of ZnSe and phosphorus-doped ZnSe single crystals” J. of Crystal Growth, **235**, 195 (2002)
- [215] L. J. Brillson, Y. Lu “ZnO Schottky barriers and ohmic contacts” Jour. Of App. Phys. **109**, 121301 (2011)
- [216] Y. Sayad “Détermination de la longueur de diffusion des porteurs de charges minoritaires dans le silicium cristallin par interaction lumière matière” Thèse de doctorat, pp 17 (2009)
- [217] M. Joffre “Optique non-linéaire en régimes continu et femtosecondes” Concepts fondamentaux de la physique, pp 64 (2012)
- [218] G. S. He, L. S. Tan, Q. Zheng, P. N. Prasad “Multiphoton absorption materials: Molecular designs, characterizations and applications “Chem. Rev. **108**, 1245 (2008)
- [219] P. G. Slade, E. D. Taylor “Electrical breakdown in atmospheric air between closely spaced (0.2 μ m-40 μ m) electrical contacts” Electrical Contacts, Proceedings of the Forty-Seventh IEEE Holm Conference, 245 (2001)
- [220] J. Y. Zhang, J. Y. Huang, H. Wang, K. S. Wong, G. K. Wong “Second-harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals” J. Opt. Soc. Am. B, **15**, 200 (1998)
- [221] X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid “THz pulse shaping and improved optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask” Opt. Lett. **36**, 2662 (2011)
- [222] G. Klatt, D. Surrer, D. Stephan, O. Schubert, M. Fischer, J. Faist, A. Leitenstorfer, R. Huber, T. Dekorsky “Photo-dember terahertz emitter excited with an Er:fiber laser” Appl. Phys. Lett. **98**, 021114 (2011)
- [223] http://showcase.netins.net/web/wallio/ARHAB_Highvoltage.html

- [224] D. B. Go, D. Pohlman “A mathematical model of the modified Paschen’s curve for breakdown in microscale gaps” *J. Appl. Phys.* 107, 103303 (2010)
- [225] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, C. Fattinger “Far infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors” *Jour. Of Soc. Am. B*, **7**, 2006 (1990)
- [226] M. Rezaee, R. Abadi “Numerical calculation of the electron mobility in ZnS and ZnSe semiconductors using the iterative methods” *Int. Journ. Of the Phys. Sciences*, **5**, 1752 (2010)
- [227] A. N. Avdonin, D. D. Nedeoglo, N. D. Nedeoglo, V. P. Sirkeli “Electron mobility in ZnSe single crystals” *Phys. Stat. Sol. B*, 238, 45 (2003).
- [228] A. Tanaka, T. Asano, S. Oizumi, K. Niwa, T. Nishioka “Flow analysis of semiconductor encapsulating material” *Electronic components and technology conference*, 44th, 134 (1994)
- [229] W. Shi, J. Xu, X. C. Zhang “Terahertz generation from Si₃N₄ covered photoconductive dipole antenna” *Chin. Opt. Lett.* 1, 308 (2003)
- [230] C. Headley, P. Parkinson, X. Xu, J. Lloyd-Hughes, Chennupati Jagadish, M. B. Johnston “Performance of GaAs-Based terahertz emitters via surface passivation and silicon nitride encapsulation” *IEEE Jour. Of Selected topics in quantum electronics*, **17**, 1077 (2011)
- [231] H. Bartsch, D. Gloß, P. Frach, M. Gittner, E. Schultheiß, W. Brode, J. Hartnung “Electrical insulation properties of sputter-deposited SiO₂, Si₃N₄ and Al₂O₃ films at room temperature and 400°C” *Phys. Status Solidi A*, **206**, 514 (2009)
- [232] S. B. Qadri, D. H. Wu, B. D. Graber, N. A. Mahadik, A. Garzarella “Failure mechanism of THz GaAs photoconductive antenna” *Appl. Phys. Lett.* **101**, 011910 (2012)
- [233] A. K. G. Tapia, N. Yamamoto, C. Ponseca Jr, K. Tominaga “Charge carrier dynamics of ZnSe by optical pump-terahertz probe spectroscopy” *Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, International conference* (2011)
- [234] A. Deneuve, D. Tanner, P. H. Holloway “Optical constant of ZnSe in the far infrared” *Phys. Rev. B*, **43**, 6544 (1991)

- [235] H. J. Levinson “Principles of lithography” SPIE-The international Society for Optical Engineering (2005).
- [236] J. O. Ndap, K. Chattopadhyay, O. O. Adetunji, D. E. Zelmin, A. Burger “Thermal diffusion of Cr²⁺ in bulk ZnSe” Journ. Of Crystal Growth, **240**, 176 (2002)
- [237] W. Shi, L. Hou, X. Wang. “High effective terahertz radiation from semi-insulating GaAs photoconductive antennas with ohmic contact electrodes” Jour. Of Appl. Phys. **110**, 023111 (2011)
- [238] N. Vieweg, M. Mikulics, M. Scheller, K. Ezdi, R. Wilk, H. W. Hübers, M. Koch “Impact of the contact metallization on the performance of the photoconductive THz antenna” Opt. Exp. **16**, 19696 (2008)
- [239] W. L. Gagnon “The near and long term pulse power requirement for laser driven inertial confinement fusion” 2nd IEEE International Pulsed Power Conference (1979)
- [240] M. M. Howland, S. J. Davis, W. L. Gagnon “Very fast power planar triode amplifiers for driving optical gates” 2nd IEEE International Pulsed Power Conference, 246 (1979)
- [241] D. M. Carder “Driving pockels cells in multi-Arm lasers” 13th Pulse power modulator Symposium (1978)
- [242] H. Yoneda, K. I. Ueda, Y. Aikawa, K. Baba, N. Shohata “The grain size dependence of the mobility and lifetime in chemical vapor deposited diamond photoconductive switches” J. Appl. Phys. **83**, 1730 (1998)
- [243] H. E. Ruda ”A theoretical analysis of electron transport in ZnSe” J. Appl. Phys. **59**, 1220 (1986)
- [244] M. D. Thomson, M. Kreß, T. Löffler, H. G. Roskos “Broadband THz emission from gaz plasmas induced by femtosecond optical pulses : From fundamentals to applications” Laser Photon. Rev. **1**, 349 (2007)
- [245] M. Mridha, A. Mazhorova, M. Daneau, M. Clerici, M. Pecianti, P. L. Lavertu, X. Ropagnol, F. Vidal, R. Morandotti “Low dispersion propagation of braodband THz pulses in a two wire Waveguide“ Conference proceeding CLEO 2013, San José, Californie (2013)

[246] M. Clerici, L. Caspani, E. Rubini, M. Pecianti, M. Cassataro, A. BUacca, T. Ozaki, D. Faccio, R. Morandotti “Counterpropaging frequency mixing with terahertz waves in diamond” Opt. Lett. **38**, 178 (2013)

[247] <http://accuratus.com/alumni.html>