

Institut national de la recherche scientifique (INRS)  
Centre Énergie Matériaux et Télécommunications (EMT)

## **Single-shot Ultrafast Two-dimensional Terahertz Imaging**

by  
Pei You

A thesis submitted to the Department of Energy, Materials and Communications in conformity  
with the requirements for the degree of Master of Science.

### **Jury Members**

President of the jury and  
internal examiner

Vidal, François  
Institut national de la recherche scientifique

External Examiner

Major Arkady  
Professor, Department of Electrical and  
Computer Engineering  
University of Manitoba

Research Director

Roberto Morandotti  
Institut national de la recherche scientifique

## ACKNOWLEDGEMENT

---

First of all, I would like to acknowledge and give my greatest thanks to my supervisor Prof. Roberto Morandotti for providing me an opportunity to join our research group as a Master's student at INRS. With his enlightening guidance and profound knowledge, I have obtained a better understanding of Terahertz science and imaging technology, which intrigue me and help me develop various skills in laboratory instruments and coding. Although working on a busy schedule, he still gave my thesis a very careful review and helps me through the whole process of graduation.

I would also like to give my sincere appreciation to Dr. Junliang Dong and Dr. Alessandro Tomasino for their encouragement, patience, and companionship in teaching me practical experimental operations and theoretical knowledge. It has been a challenging but extremely meaningful experience to learn the THz-TDS system, and I could not conquer all the problems I met without their continued support and advice. In particular, I must express my special thanks to Dr. Junliang Dong. We have been working together since my last undergrad year, and I greatly benefit from his personality and diligence, which I will treasure throughout my life and career in the future.

In addition, my acknowledgment goes to Robin Helsten for his technical support. He helps to maintain our femtosecond laser and make the whole system operate as stably as possible. Moreover, I want to thank Giacomo Balistreri for the insightful discussions we had in optical alignment and signal processing with him.

Finally, I wish to send my warm gratitude to my parents, Xiaoying Xu and Yanming You. Without their emotional support and financial sponsorship my whole path would have been nearly impossible. They inspire me and give me strong motivation to persevere through this difficult time of the pandemic while studying abroad alone. Once again, I express my deepest thanks to all those who have helped me here during my three year-long studies, which turned out to be one of the most precious periods in my life.



## ABSTRACT

---

Terahertz (THz) radiation is the set of electromagnetic waves whose spectrum locates between microwaves and infra-red (IR). With the development of fundamental physics in semiconductors and new electronic devices, the study of THz radiation and its applications has become an attractive research topic. Imaging is one of the most promising technologies among the applications of THz radiation, especially in the biological and medical research areas, since THz radiation can penetrate various optically-opaque materials with no health risk for the imaged object.

Here we proposed and realized a single-shot ultrafast two-dimensional THz imaging system. Based on spatial-frequency multiplexing (SFM) and time-division multiplexing (TDM) techniques, this imaging system is capable of capturing multiple frames of an ultrafast event with a sub-picosecond temporal resolution. Our ultrafast imaging system operates in the THz frequency range, which opens up new avenues for research in advanced materials that are opaque to the conventional visible/IR regimes. In the future, both the number of frames and the spatial-resolution of our imaging system could be improved by employing additional beam-splitters and applying the near-field imaging technique, respectively.

**Keywords:** Terahertz Radiation, Terahertz Time-Domain Spectroscopy, Electro-optic Sampling, Real-time Imaging, Single-shot Imaging, Ultrafast Imaging, Spatial-frequency Multiplexing



## RÉSUMÉ

---

Le rayonnement térahertz (THz) est une onde électromagnétique dont le spectre se situe entre les micro-ondes et les infrarouges (IR). Avec le développement de la physique fondamentale des semi-conducteurs et de nouveaux dispositifs électroniques, l'étude du rayonnement THz et de ses applications est devenue un sujet de recherche attractif. L'imagerie est l'une des technologies les plus prometteuses dans les applications du rayonnement THz, en particulier dans les domaines de la recherche biologique et médicale, car le rayonnement THz peut pénétrer divers matériaux optiquement opaques tout en ne présentant aucun risque pour la santé de l'objet imagé.

Nous proposons ici un système d'imagerie THz bidimensionnelle ultrarapide à mesure unique. Basé sur les techniques de multiplexage spatiofréquence (SFM) et temporel (TDM), ce système d'imagerie est capable de capturer plusieurs images de l'événement ultrarapide avec une résolution temporelle inférieure à la picoseconde. Notre système d'imagerie ultrarapide fonctionne dans la gamme de fréquences THz ce qui permet l'étude de matériaux à la fine pointe de la technologie qui sont opaques aux rayonnements dans les régimes visibles/IR conventionnels. À l'avenir, le nombre d'images et la résolution spatiale de notre système d'imagerie pourraient être améliorés en augmentant le nombre de diviseurs de faisceau et en appliquant la technique d'imagerie en champ proche, respectivement.

**Mots-clés:** Rayonnement térahertz, spectroscopie térahertz dans le domaine temporel, échantillonnage électro-optique, imagerie en temps réel, imagerie à un coup, imagerie ultrarapide, multiplexage spatiofréquence



# TABLE OF CONTENTS

---

<b>ACKNOWLEDGEMENT .....</b>	<b>iii</b>
<b>ABSTRACT .....</b>	<b>v</b>
<b>RÉSUMÉ.....</b>	<b>vii</b>
<b>TABLE OF CONTENTS.....</b>	<b>ix</b>
<b>LIST OF FIGURES.....</b>	<b>xi</b>
<b>LIST OF TABLES .....</b>	<b>xv</b>
<b>LIST OF EQUATIONS .....</b>	<b>xvii</b>
<b>LIST OF ABBREVIATIONS.....</b>	<b>xix</b>
<b>1 INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
<b>1.1 Introduction of Terahertz radiation.....</b>	<b>1</b>
<b>1.2 Terahertz generation technique.....</b>	<b>2</b>
1.2.1 Photoconductive antenna emitter.....	2
1.2.2 Optical rectification.....	3
<b>1.3 Terahertz detection technique .....</b>	<b>7</b>
1.3.1 Photoconductive antenna detector.....	8
1.3.2 Electro-optic sampling.....	8
<b>2 Terahertz imaging technology.....</b>	<b>11</b>
<b>2.1 Terahertz time-domain spectroscopy.....</b>	<b>11</b>
<b>2.2 Terahertz imaging modalities.....</b>	<b>12</b>
<b>3 Principle of the Single-shot Ultrafast Two-dimension Terahertz Imaging.....</b>	<b>17</b>
<b>3.1 Introduction of ultrafast imaging technology .....</b>	<b>17</b>
<b>3.2 Single-shot ultrafast 2D Terahertz imaging system .....</b>	<b>18</b>
<b>3.3 Modeling of the imaging system.....</b>	<b>21</b>
3.3.1 Imaging model.....	21
3.3.2 Image post-processing.....	23
<b>3.4 Experimental setup.....</b>	<b>24</b>



<b>4</b>	<b>Application of the Imaging System .....</b>	<b>27</b>
4.1	Imaging of a Terahertz pulse passing through the Teflon material.....	27
4.2	Imaging of photocarrier diffusion in semiconductors.....	30
<b>5</b>	<b>CONCLUSION.....</b>	<b>35</b>
<b>6</b>	<b>BIBLIOGRAPHY .....</b>	<b>37</b>
	<b>SOMMAIRE RÉCAPITULATIF .....</b>	<b>42</b>
1.	Introduction au rayonnement térahertz .....	42
2.	Technologie d'imagerie térahertz.....	49
3.	Système d'imagerie térahertz bidimensionnelle ultrarapide à un seul coup ..	53
4.	Application du système d'imagerie.....	59

# LIST OF FIGURES

---

FIGURE 1.1 THE LOCATION OF THE TERAHERTZ (THz) BAND IN THE ELECTROMAGNETIC SPECTRUM, WHICH LIES BETWEEN THE OPTICAL AND ELECTRONIC FREQUENCIES CALLED THE “THz GAP” .....	1
FIGURE 1.2 TYPICAL STRUCTURE OF A CONVENTIONAL PHOTOCONDUCTIVE (PCA) EMITTER. ....	3
FIGURE 1.3 SCHEMATIC OF THE THz PULSE GENERATION BY OPTICAL RECTIFICATION (OR) IN A NONLINEAR CRYSTAL. ....	4
FIGURE 1.4 SCHEMATIC OF THE THz PULSE GENERATION SETUP BY USING THE PULSE-FRONT-TILTING TECHNIQUE. A FEMTOSECOND LASER IS USED AS THE PUMP SOURCE. $\theta_i$ AND $\theta_d$ ARE THE INCIDENCE AND DIFFRACTION ANGLES OF THE GRATING. A 4f-IMAGING SYSTEM CONSISTING OF TWO CYLINDRICAL LENSES COMPRESSES THE PULSE AND ROTATES THE PULSE-FRONT, SUCH THAT A TILTED PULSE-FRONT WITH AN ANGLE OF $\Gamma$ IS FORMED. THE CUTTING ANGLE OF THE LiNbO <sub>3</sub> CRYSTAL IS IDENTICAL TO $\Gamma$ FOR A NORMAL INCIDENCE. THE THz PULSE IS GENERATED AND EMITTED PERPENDICULARLY TO THE PULSE-FRONT OF THE OPTICAL PUMP PULSE.....	6
FIGURE 1.5 A SCHEMATIC VIEW OF THE EO SAMPLING TECHNIQUE IN THE ZnTe CRYSTAL. POLARIZATION CHANGES WITH OR WITHOUT THE THz FIELD ARE ILLUSTRATED. ....	8
FIGURE 2.1 SCHEMATIC VIEW OF A TYPICAL THz-TDS SYSTEM FOR THE GENERATION AND DETECTION OF THz PULSES. ....	11
FIGURE 2.2 TYPICAL SETUP OF A RASTER-SCAN THz IMAGING SYSTEM USING A 2D TRANSLATION STAGE.....	12
FIGURE 2.3 TYPICAL SETUP OF A THz IMAGING SYSTEM BASED ON COMPRESSIVE SENSING TECHNOLOGY.....	13
FIGURE 2.4 A SCHEMATIC VIEW OF THE REAL-TIME THz IMAGING SYSTEM. ....	14
FIGURE 3.1 A CONCEPTUAL DIAGRAM OF SPATIAL-FREQUENCY MULTIPLEXING TECHNIQUE. (A) AN OBJECT (A FLOWER AS THE EXAMPLE) IS ILLUMINATED BY A UNIFORM PLANE WAVE. THE RESULTING FOURIER SPECTRUM ONLY CONTAINS LOW SPATIAL-FREQUENCY COMPONENTS DEFINED BY $k_{max} < k_0$ . (B) THE OBJECT IS ILLUMINATED BY A SINUSOIDAL-INTENSITY MODULATION PATTERN. A PAIR OF ‘SIDE BANDS’ ARE CREATED IN THE FOURIER SPACE AND SYMMETRICALLY LOCATED AT THE POSITIONS OF $\pm k$ . (C)-(D) BY INTRODUCING MODULATING PATTERNS WITH DIFFERENT ORIENTATIONS, MULTIPLE SIDE BANDS ARE CREATED IN DIFFERENT REGIONS IN THE FOURIER DOMAIN. ....	18
FIGURE 3.2 A CONCEPTUAL DIAGRAM OF THE TIME-DIVISION MULTIPLEXING TECHNIQUE. THE PROBE BEAM IS SPLIT INTO MULTIPLE SUB-PULSES AND EACH PULSE IS INTRODUCED WITH A DIFFERENT TIME DELAY (AND A SPATIAL-FREQUENCY MODULATION). THE PROBE BEAM IS EVENTUALLY MULTIPLEXED IN THE TIME SCALE, AND THE INTERFERENCE BETWEEN SUB-PULSES IS AVOIDED DUE TO THE TEMPORAL ISOLATION.....	20
FIGURE 3.3 A SCHEMATIC DIAGRAM OF THE IMAGE POST-PROCESSING PROCEDURE. (A)-(B) THE MULTIPLEXED RAW IMAGE CAPTURED BY THE CCD CAMERA AND ITS FOURIER SPECTRUM. (C) A 2D BAND-FILTER WITH A DIAMETER OF	

W IS APPLIED TO SELECT A SIDEBAND. (D)-(E) THE SINGLE SIDEBAND IS ISOLATED AND SHIFTED BACK TO THE CENTRAL REGION OF THE FOURIER DOMAIN BY MULTIPLYING WITH THE BAND-PASS FILTER. (F) RECOVERED IMAGE BY PERFORMING THE INVERSE FOURIER TRANSFORM OF THE SPECTRUM IN (E), AND ALL OF THE FOUR FRAMES RECOVERED BY THE SAME PROCEDURE. .... 23

FIGURE 3.4 THE EXPERIMENT SETUP OF THE PROPOSED SINGLE-SHOT ULTRAFAST 2D THZ IMAGING SYSTEM. DETAILED DESCRIPTION OF THE SETUP IS INTRODUCED IN THE MAIN TEXT. BS1-BS8, BEAM-SPLITTERS; CL1-CL2, CYLINDRICAL LENSES; L1-L4, OPTICAL LENSES; M1-M8, MIRROR; OD1-OD5, OPTICAL DELAY LINES; PM1-PM3, OFF-AXIS PARABOLIC MIRRORS; R1-R4, RONCHI GRATINGS; TPX1-TPX3, THZ LENSES; HWP, HALF-WAVE PLATE; P, POLARIZER; PD, BALANCED PHOTODIODE; QWP, QUARTER-WAVE PLATE. .... 26

FIGURE 4.1 EXPERIMENTAL SETUP FOR THE ULTRAFAST IMAGING OF A BIPOLAR THZ PULSE PROPAGATING THROUGH A TEFLON SHEET SAMPLE. A BIPOLAR THZ PULSE IS COLLIMATED BEFORE PASSING THROUGH THE SAMPLE OBJECT. THE TEFLON SHEET HAS A THICKNESS OF 0.8 MM AND THE PINHOLE HAS A DIAMETER OF 2 MM. .... 27

FIGURE 4.2 THZ TEMPORAL WAVEFORMS WITH OR WITHOUT SAMPLE (REFERENCE) ACQUIRED BY EO SAMPLING TECHNIQUE. THE ARRIVAL TIMES OF THE FOUR FRAMES (SUB-PULSES) ARE MARKED ON THE 'SAMPLE' WAVEFORM. THE ARRIVAL TIME OF THE FIRST FRAME IS 4.60 PS, AND THE FRAME INTERVALS ARE EQUALLY SET AS 0.6 PS. .... 28

FIGURE 4.3 EXPERIMENTAL RESULTS AND IMAGE POST-PROCESSING OF THE ULTRAFAST SCENE. (A)-(B) RAW MULTIPLEXED IMAGE CAPTURED BY THE CCD CAMERA. AND ITS FOURIER TRANSFORM. (D) A SET OF 4 ULTRAFAST FRAMES RECOVERED FROM THE MULTIPLEXED IMAGE IN (A). (C) ULTRAFAST FRAMES RECOVERED FROM THE PROBE BEAM THAT ARRIVED 50 FS EARLIER THAN THE CASE IN (D). (E) ULTRAFAST FRAMES RECOVERED FROM THE PROBE BEAM THAT ARRIVED 50 FS LATER THAN THE CASE IN (D). .... 29

FIGURE 4.4 CHARACTERIZATION OF THE SPATIAL RESOLUTION OF THE RECOVERED ULTRAFAST FRAMES. (A) THE FOURTH FRAME OF FIG 4.3D (6.40PS) IS ANALYZED AS AN EXAMPLE. (B) THE AVERAGED 1D THZ ELECTRIC FIELDS DISTRIBUTED ACROSS THE LINES IN DIFFERENT DIRECTIONS HIGHLIGHTED IN (A). THE SPATIAL RESOLUTION IS CHARACTERIZED BY MEASURING THE WIDTH OF EDGE-RESPONSE, WHICH IS THE DISTANCE BETWEEN 10% AND 90% OF THE MAXIMUM VALUE. THE ESTIMATED RESOLUTION IS ~600UM, CORRESPONDING TO THE FREQUENCY OF 0.5 THZ. (C) THE SPECTRUM OF THZ PULSE GENERATED BY LINBO3. .... 30

FIGURE 4.5 EXPERIMENTAL SETUP FOR THE ULTRAFAST IMAGING OF THE PHOTO-EXCITED CARRIER GENERATION IN THE SILICON WAFER. MULTI-CYCLE THZ PULSE IS OBTAINED BY ATTACHING A THIN SILICON WAFER (35 UM) ONTO THE METAL MIRROR. THE EXCITATION PULSE IS A FEMTOSECOND LASER PULSE SPLIT FROM THE MAIN PULSE WITH AN OPTICAL POWER OF 50MW. THE INCIDENT ANGLE OF THE EXCITATION PULSE IS 30°. .... 31

FIGURE 4.6 TEMPORAL WAVEFORMS OF THE PHOTO-EXCITED CARRIER DYNAMICS AND MULTI-CYCLE THZ PULSE. (A) TEMPORAL WAVEFORM OF THE PHOTO-EXCITED CARRIER GENERATION (B) TEMPORAL WAVEFORM OF THE MULTI-CYCLE THZ PULSE. THE TIME POSITIONS OF THE FOUR SUB-PULSES ARE MARKED IN THE WAVEFORM, ALIGNED WITH FOUR PEAKS OF THE THZ PULSE. THE FRAME INTERVALS ARE 0.75 PS, 0.75 PS AND 1.35 PS RESPECTIVELY. .... 32

FIGURE 4.7 EXPERIMENTAL RESULTS AND IMAGE POST-PROCESSING OF THE PHOTO-EXCITED CARRIER GENERATION (A) RAW MULTIPLEXED IMAGE CAPTURED BY THE CCD CAMERA. (B) THE FOURIER TRANSFORM OF THE MULTIPLEXED IMAGE IN (A). (D) FOUR ULTRAFAST FRAMES RECOVERED FROM THE MULTIPLEXED IMAGE IN (A), CORRESPONDING TO THE 2D IMAGES AT 1.25 PS, 2.00 PS, 2.75 PS AND 4.10PS IN THE PHOTO-EXCITED CARRIER DYNAMICS. (C) FRAMES RECOVERED WHEN THE EXCITATION PULSE ARRIVES 1.20 PS LATER THAN THE CASE IN (D). (C) FRAMES RECOVERED WHEN THE EXCITATION PULSE ARRIVES 1.20 PS EARLIER THAN THE CASE IN (D). ..... 33



## LIST OF TABLES

---

TABLE 1.1 SECOND-ORDER SUSCEPTIBILITY OF NONLINEAR CRYSTAL FOR THZ GENERATION [30-32] .....	5
---	---



## LIST OF EQUATIONS

---

$$\vec{P}(t) = \vec{P}_0(t) + \varepsilon_0(\chi^{(1)}\vec{E}(t) + \chi^{(2)}\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \chi^{(3)}\vec{E}(t)\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \dots) \quad (6.1)$$

$$\nabla^2 \vec{E}_{THz}(z, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_{THz}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\chi^{(2)}}{c^2} \frac{\partial^2 |\vec{E}_o(z, t)|^2}{\partial t^2} \quad (1.2)$$

$$\cos \gamma = \frac{v_{g,pump}}{v_{p,THz}} \quad (1.3)$$

$$\Delta\varphi = (n_y - n_x) \frac{\omega L}{c} = \frac{\omega L n_o^3 r_{41}}{c} E_{THz} \quad (1.5)$$

$$I_x = \frac{I_0}{2} (1 - \sin\Delta\varphi) \quad (1.6)$$

$$I_y = \frac{I_0}{2} (1 + \sin\Delta\varphi) \quad (1.7)$$

$$I_S = I_y - I_x \approx I_0 \Delta\varphi = \frac{\omega L n_o^3 r_{41}}{c} I_0 E_{THz} \propto E_{THz} \quad (1.8)$$

$$I_S(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega_o L n_o^3(\omega_o) r_{41}}{c} I_o(\mathbf{r}, t) E_{THz}(\mathbf{r}, t) \quad (3.1)$$



$$I_M(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=1}^4 I_n(\mathbf{r}, t) R_n(\mathbf{r}) \quad (3.2)$$

$$I_n(\mathbf{r}, t) = I_o(\mathbf{r}, t - \Delta t_n) \quad (3.3)$$

$$R_n(\mathbf{r}) = R_n(\mathbf{r} + \mathbf{T}) = \begin{cases} 1 & 0 \leq |\mathbf{r}| \leq T/4 \\ 0 & T/4 \leq |\mathbf{r}| \leq T/2 \end{cases} \quad (3.4)$$

$$\mathbf{T} = (T \cos \theta_n, T \sin \theta_n) \quad (3.5)$$

$$\tilde{I}_S(\mathbf{k}) = \tilde{I}_S(k_1, k_2) = \sum_{n=1}^4 (\tilde{S}_n \otimes \tilde{R}_n) = \sum_{n=1}^4 \left( \sum_{k'_1=-\infty}^{+\infty} \sum_{k'_2=-\infty}^{+\infty} \tilde{S}_n(k'_1, k'_2) \tilde{R}_n(k_1 - k'_1, k_2 - k'_2) \right) \quad (3.6)$$

$$\tilde{S}_n = \frac{\omega_o L n_0^3(\omega_o) r_{41}}{c} \mathcal{F}[I_o(\mathbf{r}, t - \Delta t_n) E_{THz}(\mathbf{r}, t - \Delta t_n)] \quad (3.7)$$

$$\tilde{R}_n = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \frac{2}{m} \sin(m\pi/2) \delta(\mathbf{k} - m\mathbf{k}_{0, \theta_n}) \quad (3.8)$$

## LIST OF ABBREVIATIONS

---

BS	beam splitter
CL	cylindrical lens
CCD	coupled-charge device
DOF	depth-of-field
EO	electro-optics sampling
FOV	field-of-view
fs	femtosecond
fps	frames per-second
HWP	half waveplate
IR	Infra-red
NA	numerical aperture
NDE	non-destructive evaluation
L	Lens
M	mirror
OD	optical delay line
OR	optical rectification
P	polarizer
PCA	photo-conductive antenna
PM	off-axis parabolic mirror
QWP	quarter waveplate
R	Ronchi grating
SFM	spatial-frequency multiplexing
SHG	second harmonic generation
SLM	spatial light modulator

SNR	signal-to-noise ratio
2D	two-dimensional
TDM	time-division multiplexing
THz	Terahertz
ZnTe	Zinc Telluride

# 1 INTRODUCTION

## 1.1 Introduction to Terahertz radiation

Terahertz (THz) radiation is the portion of electromagnetic radiation whose spectrum ranges from  $0.1 \times 10^{12}$  to  $10 \times 10^{12}$  Hz, corresponding to 3000  $\mu\text{m}$  down to 30  $\mu\text{m}$  in terms of wavelength (Fig. 1.1). THz radiation is commonly diffused in the natural environment and our living places, yet it still remains the most unexplored band due to the technological difficulties in finding materials and methods to realize high-power THz generation and high-efficiency detection [1]. For a long time, the term “THz Gap” has been used to refer to the significant lack of applications in this frequency range compared with the microwaves and infra-red (IR) light. However, the “THz gap” has been shrinking in the last several decades due to the development of new ultrafast optics and semiconductor devices [2-4], thus enabling a potential increase in terms of practical applications in this frequency regime.

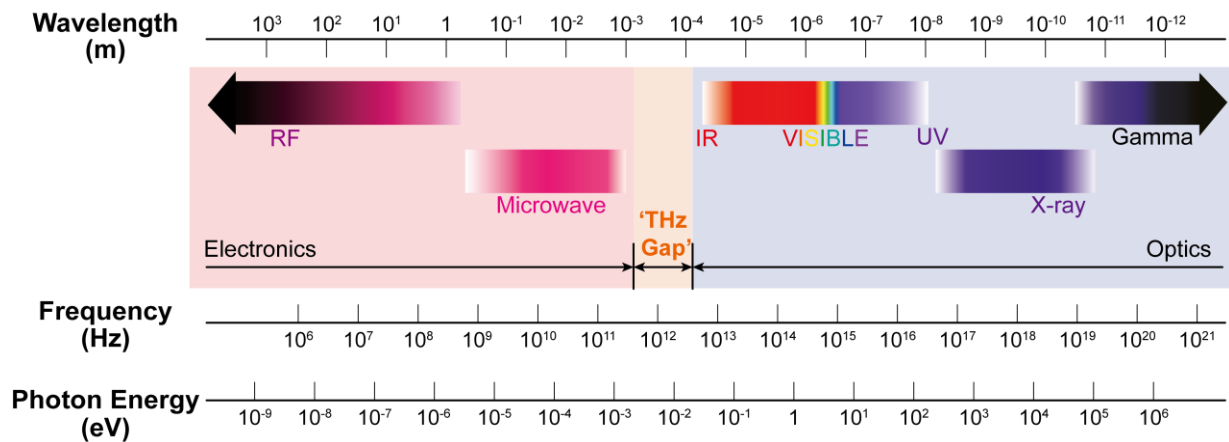


Figure 1.1 The location of the Terahertz (THz) band in the electromagnetic spectrum, which lies between the optical and electronic frequencies called the “THz gap”.

As an emerging technology, THz radiation has many exciting characteristics. The first one is the ‘see-through’ ability. THz radiation has good penetrability on a variety of optically-opaque materials such as plastic, paper, cardboard, and ceramics [5]. THz radiation features a very low absorption coefficient in these materials, specifically, it is usually smaller than  $0.5 \text{ cm}^{-1}$  in plastics and  $1 \text{ cm}^{-1}$  at 1 THz in semiconductors. This property allows for inspecting of enclosed samples and revealing their internal structures under cover. For example, THz radiation has been applied in the Non-Destructive-Evaluation (NDE) of sealed packages [6], electronic circuits [7], multi-layered coatings [8], as well as ancient oil paintings [9].

The second property is the ‘fingerprint’ characteristic. Many spectral-resonances, such as rotational and vibrational modes of molecules [10] and intra-band transitions in semiconductors [11-12], are distributed across the THz region. These features are indicated by the absorption lines in the THz spectrum, thus the amplitude and spectral location of the absorption peaks can be used to identify a given substance. Both the physical structure and chemical composition of the object can be characterized via THz spectroscopy.

Moreover, THz radiation is highly absorbed by water molecules and can be used as a sensitive indicator for determining water content in various materials [13-14]. In particular, THz radiation plays an important role in the applications for biological and medical analysis, such as microfluidic chip biosensors and biomedicine sensing [15-16]. THz radiation also provides a good contrast in the visualization of hydration levels in plants [17], or enables a precise evaluation of skin burn damage [18] or tumor cell morphology [19].

Finally, THz radiation is ‘safe’ for human beings. The photon energy of THz radiation is very low ( $0.4 \text{ meV} \sim 41 \text{ meV}$ ), which is lower than certain types of chemical bonds, such as in organic and biological molecules. Therefore, it will not cause an ionizing reaction and does not represent an health hazard for living tissues or human bodies (i.e. in contrast to X-rays) [20-21]. Consequently, many studies related to THz biomedical applications have been conducted, such as *in vivo* imaging of the human cornea [22] and skin tissue time-domain spectroscopy [23-24].

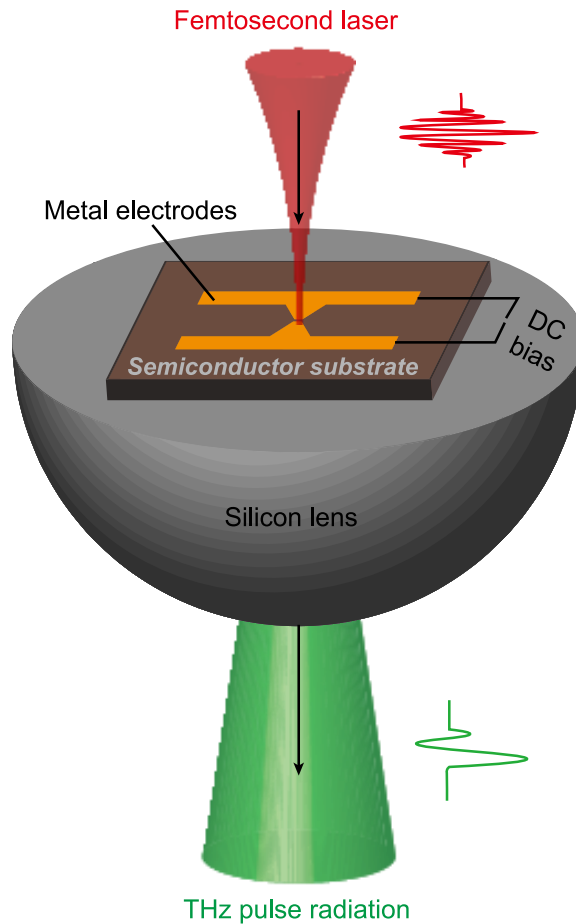
## **1.2 Terahertz generation techniques**

With the rapid development of advanced technologies in physics and electronic devices, several different types of THz generation techniques have been exploited [25]. In general, the methods for generating broadband THz pulses can be classified into two categories based on the respective mechanisms: THz generation by accelerated electrons in semiconductors, and frequency conversion in nonlinear crystals.

### **1.2.1 Photoconductive antenna emitter**

The most commonly method used to generate THz pulses from the accelerated electrons is by employing a biased photoconductive antenna (PCA) [26-27]. As depicted in Fig. 1.2, the typical structure of a PCA consists of metal electrodes deposited on a semiconductor substrate, such as GaAs. When illuminated by a femtosecond laser beam in the gap between two electrodes, photocarriers are generated via photon excitation, which can be accelerated by an applied DC-biased voltage. The accelerated electrons induce a time-varying photocurrent and radiate

electromagnetic waves accordingly. A broadband THz pulse is then generated, stemming from the time-varying waveform of the incident femtosecond laser pulse. A hemispherical lens made of high-resistivity silicon can be attached on the backside of the substrate in order to collect and collimate the highly-divergent THz radiation.



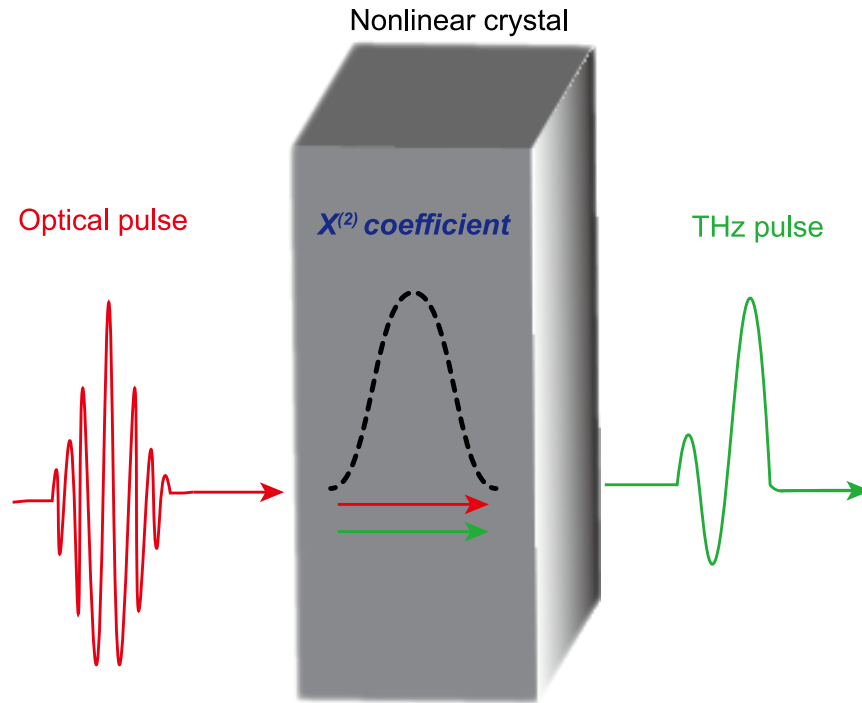
**Figure 1.2** Typical structure of a conventional photoconductive (PCA) emitter.

The output power of the generated THz radiation in PCA emitters depends on the optical pump power and the biased voltage [28]. Usually, a PCA emitter works in a regime of low pump power ( $\sim 1$  mW) and limited bias voltage ( $\sim 30$  V) due to the substrate breakdown in the substrate at higher voltages. In general, the maximum output power of the PCA emitter is only a few  $\mu$ W.

### 1.2.2 Optical rectification

Optical rectification (OR) is another approach for generating broadband THz pulses based on nonlinear frequency conversion [1]. Compared with conventional PCA emitters, OR has the ability

of generating much stronger THz pulses (scaling up to sub-mW [29]). A schematic diagram of the OR process is shown in Fig. 1.3. In the nonlinear crystal, an incident optical pulse undergoes nonlinear frequency down-conversion and transforms into THz radiation. The pulse shape of the emitted THz radiation resembles the envelope of the incident femtosecond laser pulse.



**Figure 1.3 Schematics of the THz pulse generation by optical rectification (OR) in a nonlinear crystal.**

On a theoretical point of view, OR is a second-order nonlinear optical effect that occurs in a non-centrosymmetric crystal, when the applied electric field of the incident optical beam is considerably strong and leads to electron displacements from equilibrium positions [30]. In the conventional linear regime, electron movements can be quantitatively described by the harmonic oscillator model: the electronic polarization  $\vec{P}$  is proportional to the amplitude of the externally applied field. However, a linear model fails when the applied field is sufficiently high. In the nonlinear regime, the general equation describing the induced nonlinear polarization is shown below:

$$\vec{P}(t) = \vec{P}_0(t) + \epsilon_0(\chi^{(1)}\vec{E}(t) + \chi^{(2)}\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \chi^{(3)}\vec{E}(t)\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \dots) \quad (1.1)$$

Here, the nonlinear electronic polarization  $\vec{P}(t)$  is described by the sum of the Taylor expansion series in terms of the applied electric field  $\vec{E}(t)$  at the time  $t$ .  $\epsilon_0$  denotes the absolute dielectric permittivity in vacuum.  $\chi^{(n)}$  is the  $n^{\text{th}}$  order susceptibility tensor of the nonlinear medium represented by a  $(n+1)^{\text{th}}$  - rank tensor. Note that the second-order susceptibility  $\chi^{(2)}$  corresponds to the process of second harmonic generation (SHG) in OR. Assuming that the second-order nonlinear polarization term  $\vec{P}^{(2)}(t) = \chi^{(2)}\vec{E}(t)\vec{E}(t)$  is the major source of nonlinearity, and the applied electric field is a linearly polarized plane wave propagating along the z-axis, the coupled nonlinear wave equation of the generated THz pulse can be described by [31]:

$$\nabla^2 \vec{E}_{\text{THz}}(z, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_{\text{THz}}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\chi^{(2)}}{c^2} \frac{\partial^2 |\vec{E}_o(z, t)|^2}{\partial t^2} \quad (1.2)$$

where  $\vec{E}_{\text{THz}}(z, t)$  and  $\vec{P}^{(2)}(z, t)$  denote the electric field and the nonlinear polarization of the THz pulse after propagating a distance of  $z$  in the crystal (with time-independent susceptibility) at the time  $t$ .  $\vec{E}_o(z, t)$  represents the electric field of the applied optical pulse.

As described in Eq. (1.2), an ideal case for efficient THz generation is when the THz pulse propagates at the same velocity as the optical pulse, i.e.,  $v_{p,\text{THz}} = v_{g,o}$ , so-called the phase-matching condition. The phase-matching condition is rigorously satisfied when the phase velocity of the THz pulse matches with the group velocity of the optical pulse. In this case, the THz pulse can be gradually ‘amplified’ along the  $z$  direction while propagating inside the nonlinear crystal. Moreover, the  $\chi^{(2)}$  coefficient of the nonlinear crystal is also important, as it directly influences the amplitude of the generated THz pulses.

**Table 1.1 Second-order susceptibility of nonlinear crystal for THz generation [32-34]**

Crystal	$\chi^{(2)}$ coefficients (pm/V)	Refractive index (@ 800 nm)	THz refractive index
<i>ZnTe</i>	$r_{41} = 4.04$	2.85	3.17
<i>GaSe</i>	1.7	2.85	3.72
<i>LiTiO<sub>3</sub></i>	$r_{33} = r_{33} = 30.5$	$n_o = 2.18, n_e = 2.18$	$n_o = 6.5, n_e = 6.4$
<i>LiNbO<sub>3</sub></i>	$r_{33} = 30.9, r_{52} = 32.6$	$n_o = 2.29, n_e = 2.18$	$n_o = 6.8, n_e = 4.98$

Table 2.1 shows the key parameters of several important nonlinear crystals that are commonly used in THz generation by OR. As listed in the table, Zinc Telluride (ZnTe), which is the most widely-used crystal, has only one independent susceptibility tensor element ( $r_{63} = r_{52} = r_{41} = 4.04$  pm/V (@ 800nm). Note that the nonlinear coefficient of the ZnTe crystal is relatively low



compared with other crystals; a high-power THz source can be instead realized by employing a Lithium Niobate ( $\text{LiNbO}_3$ ) crystal with a considerably higher nonlinear susceptibility coefficient ( $r_{33} = 30.9 \text{ pm/V @ 800nm}$ ). However, due to the large refractive index difference in the  $\text{LiNbO}_3$  crystal ( $n_{\text{THz}}$  and  $n_{\text{pump}}$ ), the collinear propagation configuration, when the pump pulse is normally incident and parallel with the radiated THz pulse, is no longer applicable for  $\text{LiNbO}_3$  in order to meet the phase-matching condition.

As discussed before, the optimal condition for the highest pump-to-THz frequency conversion efficiency in  $\text{LiNbO}_3$  can be described by  $v_{p,\text{THz}} = v_{g,\text{pump}}$ . Given that the refractive indices in a stoichiometric  $\text{LiNbO}_3$  is  $n_{g,\text{pump}} = 2.3$  and  $n_{p,\text{THz}} = 5.2$ , the optimal phase-matching angle is calculated as  $\gamma = 63^\circ$ , based on the equation:

$$\cos \gamma = \frac{v_{g,\text{pump}}}{v_{p,\text{THz}}} \quad (1.3)$$

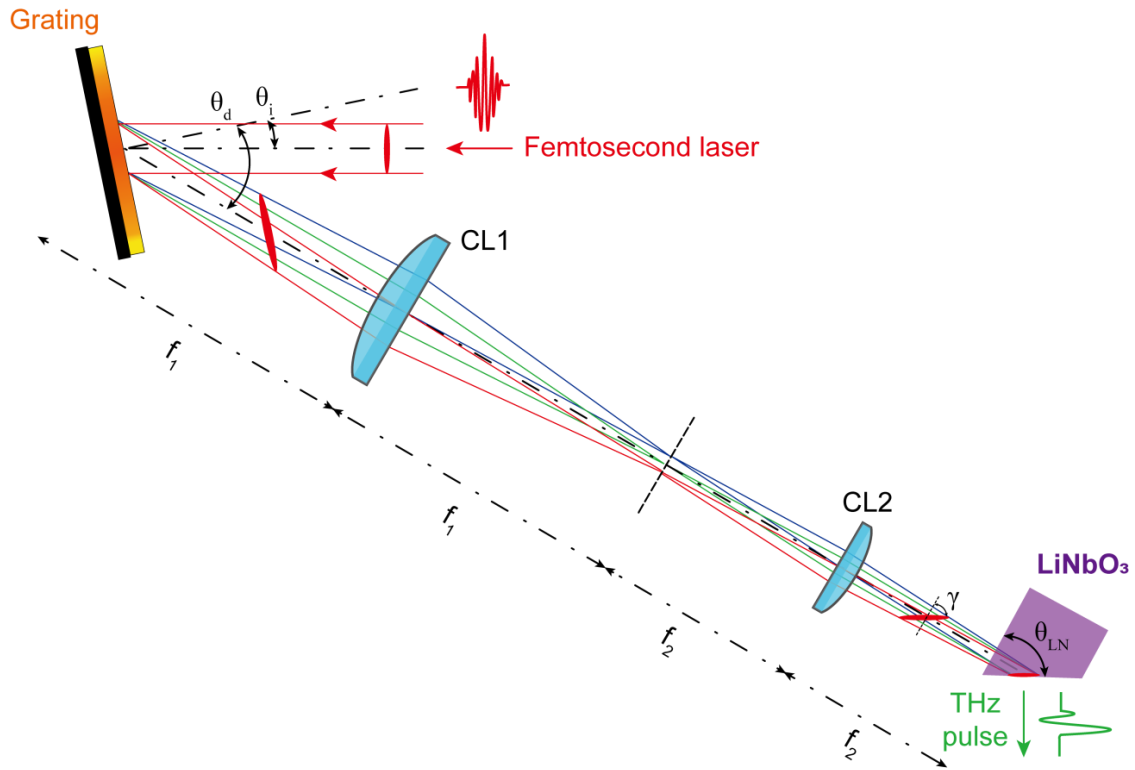


Figure 1.4 Schematics of a THz pulse generation setup based on the pulse-front-tilting technique. A femtosecond laser is used as the pump source.  $\theta_i$  and  $\theta_d$  are the incidence and diffraction angles of the grating. A 4f-imaging system consisting of two cylindrical lenses compresses the pulse and rotates the pulse-front, such that a tilted pulse-front with an angle of  $\gamma$  is formed. The cutting angle of the  $\text{LiNbO}_3$  crystal is identical to  $\gamma$  for a normal incidence. The THz pulse is generated and emitted perpendicularly to the pulse-front of the optical pump pulse.

The first scheme of pulse-front-tilting technique in LiNbO<sub>3</sub> for THz generation under the phase-matching condition was proposed by Hebling *et al.* [34-35]. Based on their work, it has been demonstrated that the output THz pulse energy can reach values up to 100μJ by using a Yb:YAG femtosecond laser with 785 fs pulse duration and 10 Hz repetition rate. Due to their low repetition rates and high pump pulse energies, femtosecond lasers have been widely used in generating strong THz pulses [36-37].

The schematic setup for THz pulse generation via the pulse-front-tilting technique is illustrated in Fig 1.4. The optical pump source is a femtosecond laser. A half-wave plate (HWP) is used to rotate the polarization of the pump beam as the incident beam. At first, the pulse-front is set perpendicular to the propagation direction as a normal -propagating beam. By employing a grating with an incident angle of  $\theta_i$  and a diffraction angle of  $\theta_d$ , the pulse-front of the reflected pump beam is consequently tilted. The pulse-front of the pump beam then enter a 4f-imaging system consisting of two cylindrical lenses CL1 and CL2, where is compressed, flipped horizontally (perpendicular to the page), and focused inside the LiNbO<sub>3</sub> near the exit interface plane. Thus, a pulse-front tilting angle of  $\gamma$  is eventually achieved, where the angle  $\gamma$  can be calculated as below [38]:

$$\tan \gamma = \frac{m\lambda_0 p}{n_{g,pump} \beta \cos \theta_d} \quad (1.4)$$

Here  $\lambda_0$  and  $n_{g,pump}$  are the central wavelength and group refractive index of the pump beam in the LiNbO<sub>3</sub> crystal.  $m$ ,  $p$  and  $\theta_d$  are the diffraction order, groove density and diffraction angle of the grating.  $\beta$  is the demagnification factor of the 4f-system imaging system. It is worth noticing that the LiNbO<sub>3</sub> crystal used here is fabricated at a cutting angle  $\theta_{LN}$  to provide a normal incidence angle for the pump beam, specifically  $\theta_{LN} = \gamma$ , so as the THz pulse will be generated and emitted from the crystal perpendicular to the exit plane.

### 1.3 Terahertz detection techniques

THz detection configurations are generally classified as either coherent or incoherent. Incoherent THz detectors are thermal sensors that measure the heat accumulation of the incident THz radiation, and typically suffer from a slow response speed [39]. Coherent THz detectors have structures similar to the THz sources that we have previously introduced, where the underlying mechanisms are closely related to the corresponding generation techniques. Consistently, PCAs and nonlinear crystals are also commonly used as coherent THz detectors.

### 1.3.1 Photoconductive antenna detector

The fundamental mechanism of THz pulse detection in PCAs resemble that of THz radiation generation in the same devices. When a bias DC voltage is not present, the optical probe pulse excites the photocarriers in the gap, and the induced current is driven by the electric field of the incident THz pulse. The photocurrent is proportional to the amplitude of the THz pulse, where the waveform of the THz electric field is acquired by measuring the time-varying profile of the photocurrent. Such profile is reconstructed via changing the relative time delay between the THz and optical probe pulses [40].

### 1.3.2 Electro-optic sampling

Free-space electro-optic (EO) sampling can be used alternatively to the PCA-based detection technique and is capable of measuring both the amplitude and phase information of THz pulses, featuring a high degree of precision in the time domain [41-42]. Based on a similar nonlinear optical process, free-space EO sampling utilizes the Pockels effect, which is closely related to OR at the basis of THz generation in nonlinear crystals.

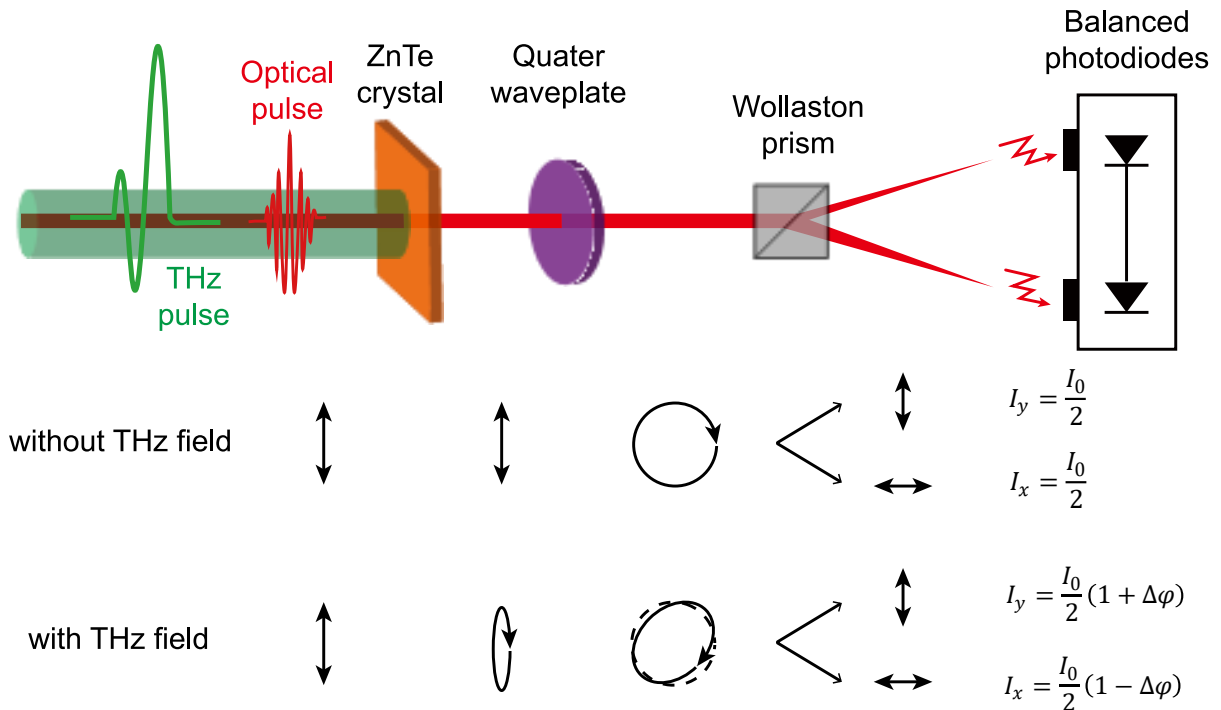


Figure 1.5 A schematic view of the EO sampling technique in the ZnTe crystal. Polarization changes with or without the presence of a THz field are illustrated.

Fig. 1.5 describes the operational principle at the basis of the free-space EO sampling technique. When a THz pulse and an optical pulse co-propagate in a nonlinear crystal, the electric field of the THz pulse induces birefringence inside the crystal, which will accordingly rotate the polarization of the optical pulse. In particular, a circularly polarized state is transformed into an elliptically polarized one. The elliptical polarization is again transformed into a ‘quasi-circular’ shape through the polarization rotation imparted by a quarter waveplate, and subsequently split by a Wollaston prism into the two orthogonal polarization components. Finally, a balanced photodiode measures the intensity difference between such components, which is proportional to the electric field strength of the THz pulse.

In a lossless medium like a nonlinear crystal, the susceptibility coefficients of the Pockels effects are the same as for OR. The differential retardation in a <110> cut ZnTe crystal (the most frequently used crystal in EO sampling), induced by the Pockels effect, is given as [44]:

$$\Delta\varphi = (n_y - n_x) \frac{\omega L}{c} = \frac{\omega L n_o^3 r_{41}}{c} E_{THz} \quad (1.5)$$

where  $\omega$  and  $n_o$  are the frequency and refractive index of the optical probe beam, respectively.  $n_y$  and  $n_x$  are the refractive indices in  $x$  and  $y$  directions (perpendicular to the propagation direction  $z$ ).  $L$  is the thickness of the crystal (i.e., also the propagation distance),  $r_{41}$  is the nonlinear susceptibility coefficient of ZnTe crystal and  $c$  is the speed of light. Given that  $I_0$  is the total intensity of the probe beam, the intensities of the two orthogonally polarized beams separated by the Wollaston prism are:

$$I_x = \frac{I_0}{2} (1 - \sin\Delta\varphi) \quad (1.6)$$

$$I_y = \frac{I_0}{2} (1 + \sin\Delta\varphi) \quad (1.7)$$

Since the differential phase retardation is sufficiently small in most cases ( $\Delta\varphi \ll 1$ ), an approximation of  $\sin\Delta\varphi \approx \Delta\varphi$  can be applied to simplify the representations of the polarization intensities. Therefore, the intensity difference of the signal measured by the photodetector, which is linearly proportional to the amplitude of the THz pulse, can be effectively expressed as:

$$I_S = I_y - I_x \approx I_0 \Delta\varphi = \frac{\omega L n_o^3 r_{41}}{c} I_0 E_{THz} \propto E_{THz} \quad (1.8)$$

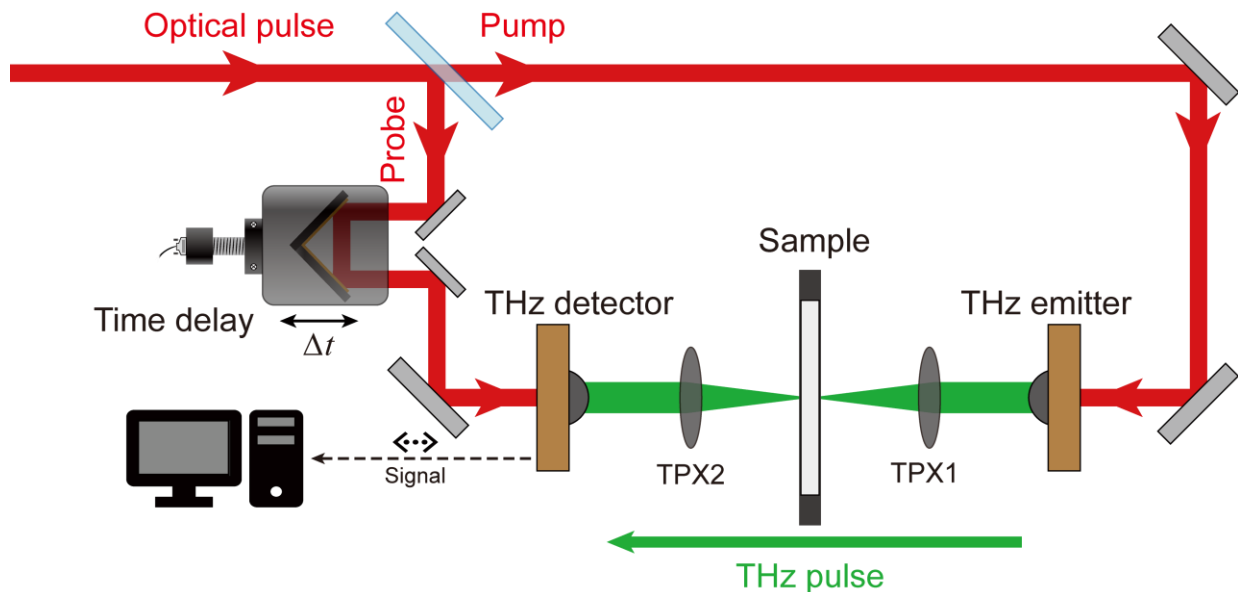
In Chapter 1, we gave a brief introduction to the basic concepts, characteristics and application scenarios pertinent to THz radiation. The mechanisms underlying different THz generation and detection techniques are discussed and quantitatively analyzed. Among various types of THz technologies, THz imaging is currently attracting the most attention in the research community, due to its increasingly advanced abilities and promising applications. A detailed introduction to different THz imaging modalities is presented in the next chapter.

## 2 Terahertz imaging technology

Over the past several decades, THz radiation has become an advanced and powerful tool in many application scenarios, especially in the area of imaging. First, THz radiation has good penetration ability in dielectric and organic materials, while at the same time posing no destruction or health risk on the object. Moreover, though microwaves can also penetrate numerous materials, they suffer from low spatial resolution due to the longer wavelengths (compared to the THz ones). THz imaging technology is one of the latest achievements in the hot research field of imaging technology, and many concepts are still immature or have limited applications in practical industrial areas. Nonetheless, an increasing number of novel THz imaging modalities have been exploited in the past two decades, which has greatly promoted the development of THz imaging technology.

### 2.1 Terahertz time-domain spectroscopy

THz time-domain spectroscopy (THz-TDS) is one of the most powerful techniques for material characterization and process control in the THz regime [43]. It is a basic experimental scheme for THz generation and detection in a pump-probe configuration. The conceptual illustration of a typical THz-TDS system is shown in Fig. 2.1.

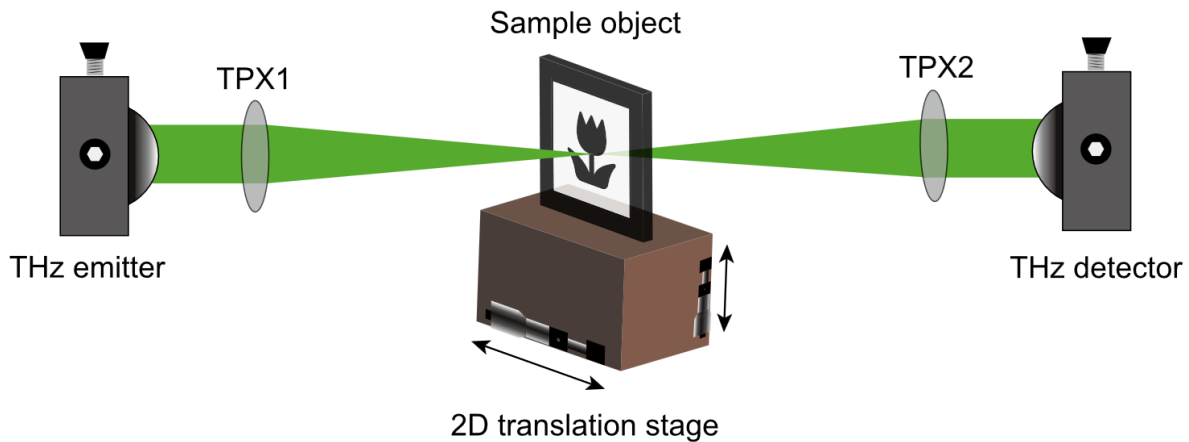


**Figure 2.1** Schematic view of a typical THz-TDS system for the generation and detection of THz pulses.

In general, a pulsed optical pulse is split into two paths: pump path and probe path for realizing both THz generation and coherent detection, respectively. In the pump path, an optical pulse

reaches the THz emitter and a THz pulse is consequently produced. The generated THz pulse is focused onto the sample by a TPX lens (special lens working in the THz frequency spectrum), and then collected by a THz detector. In the path of the probe pulse, a motorized translation stage controls the optical length in order to provide a relative time delay between the two paths. By changing the relative time delay between the pump and probe pulses, the temporal waveform of the THz pulse can be acquired via this scanning process. Based on the amplitude and phase information acquired, the absorption and dispersion properties of the sample material can be measured and analyzed.

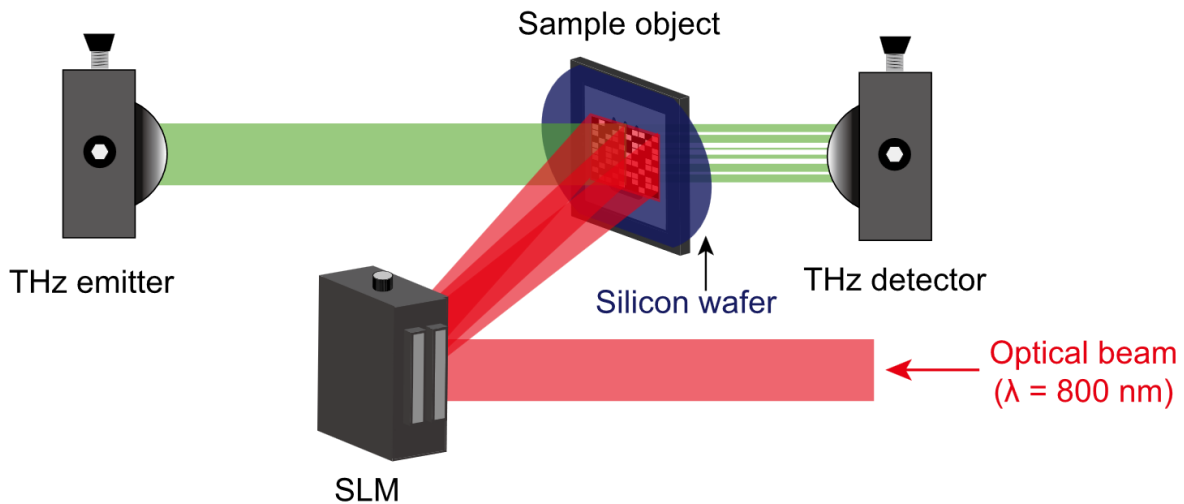
## 2.2 Terahertz imaging modalities



**Figure 2.2 Typical setup of a raster-scan THz imaging system using a 2D translation stage.**

Based on the THz-TDS system, many configurations and technologies have been developed to implement THz imaging in the past two decades. Raster-scan imaging is the most conventional method to realize THz imaging. In the beginning, a single-pixel detector (such as PCA) was the only option for the implementation of THz detection [44-45]. A typical configuration for this system is shown in Fig. 2.2: The generated THz beam is focused on a sample by a TPX lens, and the transmitted signal is acquired by a THz detector. It is obvious that only one point of the sample object is sensed by the THz beam and only one pixel can be imaged at once. Therefore, by fixing the sample on a motorized 2D translation stage, which is controlled by a computer software, the sample can be moved in two directions and scanned, sequentially, pixel by pixel. In this case, the imaging of the sample object can be realized after a thorough scanning process for all the pixels on the sample. Obviously, the extremely slow speed is the major drawback for the raster-scan

imaging technique. The typical acquiring time for this system is above several hours and this makes it only applicable in the imaging of static objects.



**Figure 2.3 Typical setup of a THz imaging system based on compressive sensing technology (SLM = Spatial Light Modulator).**

In order to improve the imaging speed, compressive sensing can be applied to the THz imaging system [46-47]. Compressive sensing is a signal processing technique used in optics to acquire image signals at a rate below the Nyquist rate, which improves imaging speed significantly. First of all, the image pixels are sampled by a sequence of sparse matrixes, being called 'the nonadaptive linear projection', to compress and preserve the information of the image [48]. Then the raw image can be quickly reconstructed from the projections by using an itinerary optimization algorithm [49]. Compressive sensing is capable of improving the imaging speed into the real-time regime. Specifically, real-time imaging consists in acquiring the image of an object at the exact time of its occurrence and evolution. A typical method of applying compressive sensing in the THz imaging system is by using a spatial-light-modulator (SLM) [50]. As shown in Fig 2.3, a collimated THz beam is generated to illuminate the entire sample. The SLM can generate 1-0 (light-dark) patterns on its display window, and when the laser beam is incident on it, the SLM reflects the beam and projects an optical binary spatial-mask sequence on the sample plane. Note that the sample is attached on top of a silicon wafer, where the optical beam is casted and the THz beam is modulated by the excited photocarriers. After the sample, the time-dependent intensity sequence of the THz beam is recorded by the THz detector, and the full image can be reconstructed by post-processing algorithms. In compressive sensing, the imaging speed is improved since the slow-paced translation stage is no longer necessary. However, it is still limited



by the switching rate of the SLM's pixels and algorithm processing time. In recent work [50], a THz compressive sensing imaging system with 6 frames-per-second (fps) acquisition speed has been realized based on a single-pixel PCA detector.

Another possible method to realize real-time 2D THz imaging is by using a camera to capture a dynamic scene in real-time. However, no commercial THz camera with sufficient high resolution and efficiency is currently available for real-time imaging in the THz domain. One accessible solution is to perform frequency up-conversion for the THz beam into the optical beam based on the mechanism of EO sampling [52-54]. Therefore, a commercial charge-coupled device (CCD) camera can be simply employed to realize 2D real-time imaging in the THz domain. A scheme of a real-time 2D THz imaging system is depicted in Fig 2.4. Along the THz beam path, a THz image of the sample is sent by a pair of TPX lenses onto a ZnTe crystal. Along the optical beam, on the other hand, a pulsed femtosecond laser is employed to generate the optical probe beam. In the meantime, the polarization state of the probe beam is modulated by the THz beam while passing through the crystal, and the spatial information of the THz beam is then mapped into the probe beam. Eventually, the image of the modulated probe beam is captured by a CCD camera and the THz image is retrieved instantaneously. Note that in this case, the imaging speed is limited by the camera itself according to its shutter switching rate and sensor size. For example, the typical frame rate for a commercial CCD camera can reach ~ 60 fps (frame per-second) at 1 ms exposure time.

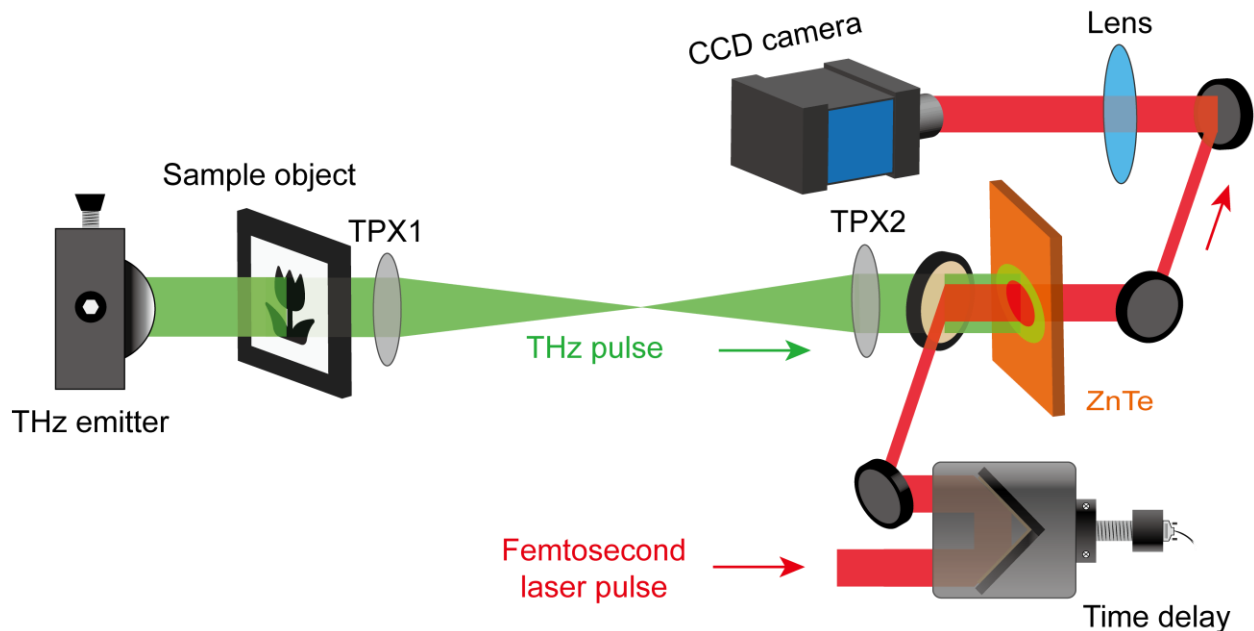


Figure 2.4 Schematic view of a real-time THz imaging system.

In this chapter, we discussed different THz imaging modalities, ranging from conventional single-pixel raster-scan imaging to novel real-time 2D THz imaging. The imaging speed is one of the predominant factors in demonstrating the capability and reliability of imaging systems in practical application scenarios. The current imaging speed of a real-time 2D THz imaging system is mainly limited to  $\sim 60$  fps for commercial CCD cameras. Starting from this configuration, an ultrafast imaging technique is introduced in the next chapter to further improve the imaging speed. In turn, it is possible to dig into the ultrafast regime, reaching sub-nanosecond ( $< 10^{-9}$  s) or even sub-picosecond ( $< 10^{-12}$  s) time scales.



## 3 Principle of the Single-shot Ultrafast Two-dimensional Terahertz Imaging

---

### 3.1 Ultrafast imaging technology: an introduction

With the growing demand to investigate dynamic events in ultrashort timescales such as sub-nanosecond [55], researchers have developed versatile techniques and algorithms to overcome the mechanical limitation of standard cameras (frame rate) and further improve the imaging speed [56-60]. Novel advanced ultrafast imaging technologies open up the possibility of understanding basic mechanisms in fundamental science and practical industrial applications that were technically unreachable before.

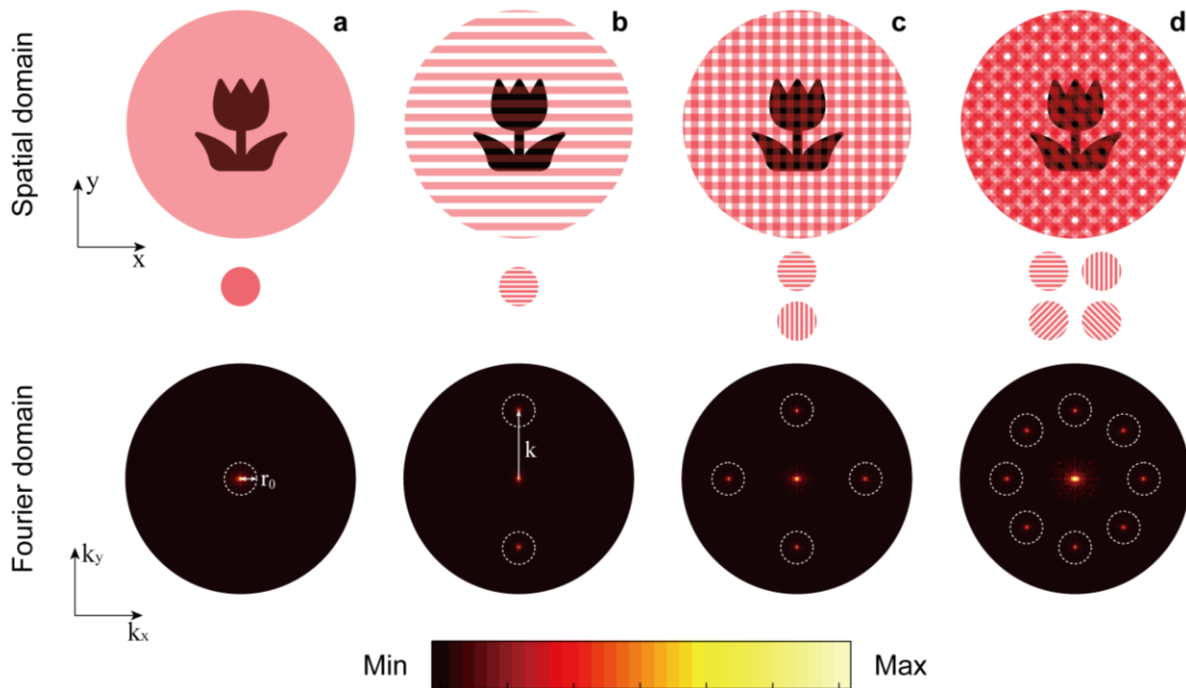
In general, there are two stages in the development of ultrafast imaging technology. Conventionally, a pump-probe configuration provides a simple solution to record an ultrafast dynamic scene via repeated measurements. However, this technique cannot be used to record non-repeatable or difficult-to-reproduce transient events, such as rogue waves [61-62], explosions [63], plasmonic dynamics [64], irreversible chemical reactions [65], and neuronal action in the biomedical area [66]. Accordingly, single-shot ultrafast imaging has been developed as an effective strategy in circumstances of recording non-reproducible events. This technique supports the acquisition of multiple images in a single exposure cycle and increases the equivalent frame rate, which is eventually beyond the maximum switching rate of the camera shutter. In the past decades, researchers have investigated a variety of detection methods to achieve single-shot ultrafast imaging, based on space-division [67], wavelength multiplexing [68], spatial frequency multiplexing [69], etc.

However, single-shot ultrafast imaging techniques are only experimentally demonstrated in the conventional optical wavelength window, where application scenarios are heavily restricted within optically-transparent objects. Due to a small penetration depth and depth of focus (DOF), the observation of many significant ultrafast phenomena, such as carrier dynamics in semiconductors [70-72] and optical switching of anisotropy in a hybrid metamaterial [73], are still inaccessible. Therefore, a single-shot ultrafast imaging system driven by THz radiation is highly desired to remove current barriers and extend the scope of detectable ultrafast phenomena once inaccessible at optical wavelengths. Despite the growing importance, the research on ultrafast imaging in the THz regime still remains at its infancy due to the challenges in developing imaging devices operating at THz frequencies.

Here, we propose a novel, single-shot ultrafast THz imaging system. As mentioned in the previous chapters, pulse-front-tilting and EO sampling techniques are utilized in our system to provide a high efficiency in the generation and detection of THz pulses. In addition, the mechanism of time and spatial-frequency multiplexing is considered as the fundamental principle which enables imaging at ultrafast timescales [74-76]. By using probe beam multiplexing, the EO sampling technique, and judicious computational algorithms, a set of ultrafast frames, corresponding to the images at distinctive time instants, can be acquired and reconstructed with sub-picosecond ( $< 10^{-12}$  s) temporal resolution.

### 3.2 Single-shot ultrafast 2D Terahertz imaging system

The underlying principle of the ultrafast imaging techniques used in our setup is to realize probe beam multiplexing in both the time and spatial-frequency domains. The mechanism of spatial-frequency multiplexing (SFM) of the probe beam is illustrated in Fig. 3.1. While the original beam generated by the femtosecond laser is assumed as a uniform plane wave in the concerned field of view (FOV), the probe beam after the SFM is composed of different modulated components, each of them having a distinct spatial frequency.



**Figure 3.1** A conceptual diagram of the spatial-frequency multiplexing technique. (a) An object (a flower in the example) is illuminated by a uniform plane wave. The resulting Fourier spectrum only contains low spatial-frequency components defined by  $|\vec{k}_{max}| < r_o$ . (b) The object is illuminated by a sinusoidal-intensity modulation pattern. A pair of ‘sidebands’ are created in the Fourier space and symmetrically located at the

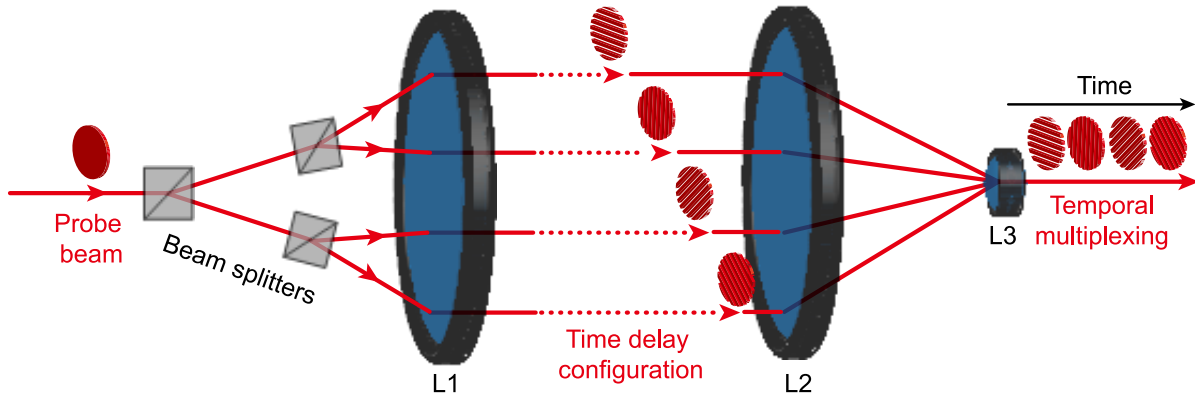
positions  $\pm\vec{k}$ . (c)-(d) By introducing modulating patterns with different orientations, multiple sidebands are created in different regions of the Fourier domain.

Fig. 3.1a shows the acquired image and Fourier spectrum (power spectrum) of an object when illuminated by an unmodulated probe beam (plane wave).  $x$  and  $y$  are coordinates in real space.  $k_x$  and  $k_y$  are coordinates in the Fourier space given by  $k_x = 2\pi/T_x$  and  $k_y = 2\pi/T_y$ , while  $T_x$  and  $T_y$  are the spatial periods in real-space. Normally, the spatial frequency  $k$  in the Fourier space is represented by a 2D vector as  $\vec{k} = (k_x, k_y)$ . The probe beam is approximated as a uniform plane wave in the concerned imaging area with a constant value of electric field intensity. Multiplied by a constant field in real-space, the Fourier spectrum of the acquired image represents the original spectrum of the sample object. As indicated by the white circle in the center of the Fourier space (zero spatial-frequency), the power spectrum of the object is localized within a small circular region of radius  $r_o$ . In this case, the maximum spatial frequency of the sample object is lower than a certain value which can be described as  $|\vec{k}_{max}| < r_o$ . Obviously, if an imaged object contains finer details, the corresponding power spectrum would occupy an area with a larger radius, representing the additional information of the higher order spatial-frequency components.

Considering a simple scenario, where the probe beam is only modulated by a non-zero offset sinusoidal pattern with a spatial frequency  $\vec{k}$ , the power spectrum of the sampled object is shifted to new locations  $\pm\vec{k}$  as two sidebands, see Fig. 3.1b. The length of the spectral displacement in the Fourier space is  $|\vec{k}|$  and the orientation is determined by the vector angle  $\theta = \tan^{-1} \frac{k_y}{k_x}$ . The component in the spectrum center represents the DC power of the sample image. It is worth noticing that modulation patterns of gratings in practical experiments are usually “0 or 1” binary masks with the shape of a periodic rectangular function, and their spectrum is a *sinc* function, according to the Fourier transform theorem [77]. However, due to the band-limitation factors of the imaging system, such as the limited numerical aperture (NA) or large pitch size of the camera sensor, the high-frequency elements of the grating image have been attenuated and only the  $\pm 1$  diffraction order remains, thus leading to the degradation of the periodic rectangular pattern into a sinusoidal pattern after being imaged on the EO crystal and acquired by the camera.

The features of the probe beam under multiple modulations are shown in Fig. 3.1c and d. Each modulation pattern possesses a distinct spatial frequency with different orientations such that the spectrum of the object is shifted into different regions. Taking into account the inter-band crosstalk, the pattern cannot be placed with a random orientation in the real-space, in order to prevent the sidebands from overlapping with each other in the Fourier domain. The minimum allowed distance

for adjacent sidebands is realized when  $|\vec{k}_1 - \vec{k}_2| = 2r_o$  (circle areas of the two sidebands will overlap when the distance is smaller than  $2r_o$ ). In fact, the orientation angles are normally set to be evenly distributed over the space so as to simplify grating installation and characterization (for example, in a system with  $n$  pairs of sidebands, the angle of two adjacent sideband bands is set at  $2\pi/n$ ). Moreover, the spatial frequency of the pattern ought to be twice as the sampled object ( $|\vec{k}| > 2r_o$ ). Otherwise, the occurrence of overlap between sidebands and DC components may lead to data undersampling in the image recovery and thus, deteriorate the reconstruction quality [78].



**Figure 3.2** A conceptual diagram of the time-division multiplexing technique. The probe beam is split into multiple sub-pulses, where each pulse is imparted a different time delay and spatial-frequency modulation. The probe beam is eventually multiplexed in time, where interference between sub-pulses is avoided due to the temporal separation.

Another important concept for probe beam multiplexing is the implementation of time-division multiplexing (TDM). Besides the SFM process, the probe beam is also multiplexed in the time domain in order to acquire images of a dynamic scene at different time instants for ultrashort timescales. As illustrated in Fig. 3.2, while imaging the dynamic scene, the probe pulsed beam is initially split into four sub-pulses. Here, the arrival time of each sub-pulses is controlled by an optical delay line individually, corresponding to a specific time instant. After being collected by the imaging system, the sub-pulses are eventually combined together. Since no overlap exists in both Fourier space and time domain between sub-pulses, each spectrum sideband can be independently extracted and reconstructed as a single frame of the ultrafast scene.

In this TDM configuration, temporal resolution is determined by the interference between sub-pulses. In optics, significant interference emerges when the relative time delay between two pulses is shorter than the pulse durations, which results in two pulses interacting with each other (where consequently, their electric field amplitudes add up). Random noises represented by

additional spatial frequency components will also occur in the Fourier domain, which could severely degrade image quality [77]. Therefore, temporal separation for the sub-pulses is important to suppress interference.

### 3.3 Modeling of the imaging system

#### 3.3.1 Imaging model

In EO sampling detection, the 2D amplitude and phase information of a THz electric field can be measured by using a ZnTe crystal. The polarization state of the probe beam is modulated by the THz-field-induced birefringence, and the information of the polarization change is extracted by a polarizer and recorded by a CCD camera. In general, the expression of the acquired 2D image in the spatial and time domain is given as [44]:

$$I_S(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega_o L n_0^3(\omega_o) r_{41}}{c} I_o(\mathbf{r}, t) E_{THZ}(\mathbf{r}, t) \quad (3.1)$$

where  $\mathbf{r} = (x, y)$  is the vector or the spatial coordinate,  $c$  is the speed of light in vacuum,  $\omega_o$  is the frequency of the probe beam and  $n_0(\omega_o)$  is the refractive index in the ZnTe crystal. As mentioned before,  $L$  and  $r_{41}$  denote the thickness and nonlinear susceptibility coefficient of the ZnTe crystal, respectively.  $I_o(\mathbf{r}, t)$  is given as the intensity field of the probe beam and  $E_{THZ}(\mathbf{r}, t)$  is the 2D electric field of the THz beam at a given time  $t$ . It is obvious that EO sampling detection only takes place when the probe and THz beams simultaneously propagate in the same direction inside the crystal, and the intensity of the achieved signal image  $I_S$  is proportional to the unknown THz electric field.

When the probe beam is multiplexed both in the spatial-frequency and time domains, the intensity field of the multiplexed probe beam  $I_M(\mathbf{r}, t)$  comprised of four sub-pulses can be described by:

$$I_M(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=1}^4 I_n(\mathbf{r}, t) R_n(\mathbf{r}) \quad (3.2)$$

$$I_n(\mathbf{r}, t) = I_o(\mathbf{r}, t - \Delta t_n) \quad (3.3)$$

where  $I_n(\mathbf{r}, t)$  is the intensity field of the sub-pulse in path  $n$  ( $n = 1 \sim 4$ ).  $R_n(\mathbf{r})$  is the groove modulation pattern introduced by the  $n^{\text{th}}$  Ronchi grating. And  $\Delta t_n$  is the relative time delay introduced by the  $n^{\text{th}}$  optical delay line. Since the interference between sub-pulses is negligible



when the relative time delay is longer than pulse duration, the total intensity field of the multiplexed probe  $I_M(\mathbf{r}, t)$  can be expressed as the scalar sum of each sub-path.

Assuming  $\theta_n$  as the rotation of the Ronchi grating in path  $n$ , which is the orientation of the minimum spatial period  $T$ , the grating structure can be modeled as a periodic groove pattern:

$$R_n(\mathbf{r}) = R_n(\mathbf{r} + \mathbf{T}) = \begin{cases} 1 & 0 \leq |\mathbf{r}| \leq T/4 \\ 0 & T/4 \leq |\mathbf{r}| \leq T/2 \end{cases} \quad (3.4)$$

$$\mathbf{T} = (T\cos\theta_n, T\sin\theta_n) \quad (3.5)$$

By substituting Eqs. (3.2)-(3.5) into Eq. (3.1) and performing the Fourier transform, the Fourier spectrum of the multiplexed probe beam encoded with the information of the THz beam  $\tilde{I}_S(\mathbf{k})$  is described as:

$$\tilde{I}_S(\mathbf{k}) = \tilde{I}_S(k_1, k_2) = \sum_{n=1}^4 (\tilde{S}_n \otimes \tilde{R}_n) = \sum_{n=1}^4 \left( \sum_{k'_1=-\infty}^{+\infty} \sum_{k'_2=-\infty}^{+\infty} \tilde{S}_n(k'_1, k'_2) \tilde{R}_n(k_1 - k'_1, k_2 - k'_2) \right) \quad (3.6)$$

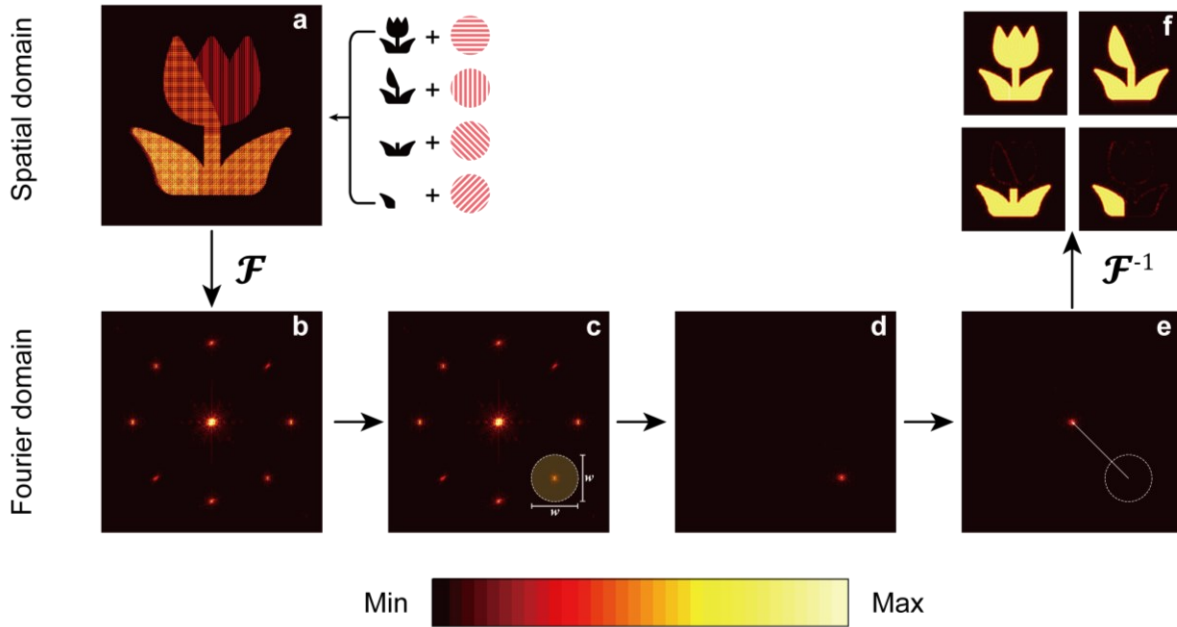
$$\tilde{S}_n = \frac{\omega_o L n_0^3(\omega_o) r_{41}}{c} \mathcal{F}[I_o(\mathbf{r}, t - \Delta t_n) E_{THz}(\mathbf{r}, t - \Delta t_n)] \quad (3.7)$$

$$\tilde{R}_n = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \frac{2}{m} \sin(m\pi/2) \delta(\mathbf{k} - m\mathbf{k}_{0,\theta_n}) \quad (3.8)$$

Here,  $\otimes$  and  $\mathcal{F}$  denote the convolution operation and Fourier transform, respectively.  $\mathbf{k} = (k_1, k_2) = (k\cos\theta, k\sin\theta)$  is the spatial frequency vector in the Fourier domain. In Eqs. (3.6) -(3.8),  $\tilde{S}_n$  represents the spectrum resulting from the EO sampling process and  $\tilde{R}_n$  comes from the Fourier transform of the Ronchi grating patterns.  $\mathbf{k}_{0,\theta_n} = (k_0\cos\theta_n, k_0\sin\theta_n)$  is the fundamental spatial-frequency vector in the path  $n$  and  $k_0 = 2\pi/T$  is the amplitude of the frequency vector. Based on the Fourier transform theorem, the convolution operation with a Dirac delta function in space is equivalent to a spectral shift in the Fourier domain. As shown in Eq. (3.7), the original spectrum  $\tilde{S}_n$ , representing the unmodulated information associated to the EO sampling detection, is shifted to higher-spatial-frequency locations as 'sideband' pairs, with a distinct spectrum location for each path.

### 3.3.2 Image post-processing

The post-processing procedure focuses on extracting the spectral information from each path of the multiplexed probe beam, and then retrieving the 2D images of the THz electric field. Given that only  $\pm 1$  diffraction orders of the Ronchi grating are collected by the imaging system, the Fourier spectrum of the Ronchi grating  $\tilde{R}_n$  can be simplified as  $m = \pm 1$ . Based on a simulation example, Fig. 3.3 shows the procedure of image reconstruction in a step-by-step manner.



**Figure 3.3** A schematic diagram of the image post-processing procedure. (a)-(b) The multiplexed raw image captured by the CCD camera and its Fourier spectrum. (c) A 2D band-filter with a diameter  $w$  is applied to select a sideband. (d)-(e) The single sideband is isolated and shifted back to the central region of the Fourier domain by multiplying with the band-pass filter. (f) Recovered image by performing the inverse Fourier transform of the spectrum in (e), and all of the four frames recovered by the same procedure.

To begin with, a multiplexed raw image is captured by means of single-shot acquisition in the CCD camera, as shown in Fig. 3.3a. By performing the 2D Fourier transform on the raw image, a spectrum with four ‘sidebands pairs’ is formed with each being related to a single path, as displayed in Fig. 3.3b. Since we can conclude from Eq. (3.8) that the two centrosymmetric sidebands with opposite signs carry identical information, one sideband is selected exclusively and filtered out to recover the corresponding ultrafast THz image frame. As indicated in Fig. 3.3c, a 2D band-pass filter with a circular perimeter is applied (multiplied with the original spectrum) to crop the individual sideband. The dimension of the filter is set by the diameter  $w$  so as to avoid the interference and crosstalk from adjacent sidebands while preserving the high-frequency components as much as possible.

As illustrated in Fig. 3.3d-e, the cropped spectrum component is shifted back to the zero-frequency position, representing the demodulation of the probe beam in the spatial-frequency domain. Finally, by performing the inverse Fourier transform, the original information of the THz image encoded into the multiplexed probe beam during EO sampling detection is recovered. As shown by the frame set in Fig. 3.3f, all four frames can be reconstructed in parallel by performing the same operations. Consequently, the dynamic scene of the ultrafast event is eventually revealed.

### 3.4 Experimental setup

Fig. 3.4 displays the schematic setup of the proposed single-shot ultrafast 2D THz imaging system. The latter is powered by an 800-nm Ti:Sapphire femtosecond laser, which produces ultrashort optical pulses with a 2 mJ pulse energy and 150-fs pulse duration operating at 1 kHz repetition rate. The pump and probe beams are generated by splitting the original beam via a non-polarizing beam-splitter with a 90/10 (T/R) ratio. Note that 90% power was assigned to the pump line, so as to maximize the pump power for the generation of THz pulses. As marked in red in Fig. 3.4, THz generation was realized based on the mechanism of OR in a LiNbO<sub>3</sub> crystal. Meanwhile, a pulse-front-tilting scheme was established, with major components including: a reflective grating with the groove density of 1800/cm and an incident angle of 36.3°, a pair of cylindrical lenses with focal lengths of 250mm and 150mm to de-magnify the optical beam horizontal and some dielectric mirrors. The phase-matching condition is achieved at an angle of 63°, i.e. the cutting angle of the LiNbO<sub>3</sub> crystal. The section of the system marked in green in Figure 3.4 relates to the setup incorporating the THz pulses. A set of off-axis parabolic mirrors (PMs) reshape the THz beam into a collimated beam with a diameter of ~2 cm. This allows to cover a larger FOV on the plane of sample for improved imaging. After passing through the sample, the THz beam carrying the 2D spatial information is collected and imaged onto the detection ZnTe crystal by a pair of TPX lenses, both having a focal length of 100mm in the THz frequency range.

The experimental realization of the probe beam multiplexing technique is shown by the blue region marked in Fig. 3.4. The probe beam is incorporated into a beam-splitter configuration to realize multiplexing. First, the main probe beam is split into four paths by a set of beam splitters (BSs) in the form of four sub-pulses. Each sub-path has an identical structure featuring an optical delay line (OD) to adjust its optical path length and control the arrival time (for multiplexing in the time domain). Concerning the modulation in the Fourier domain, a Ronchi grating (R) is used to

imprint the grating pattern into each sub-pulse (for multiplexing in the spatial-frequency domain). The orientations of the four Ronchi gratings, sharing the same groove density of 20 lp/mm (line pairs per millimeter), are set to  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ , and  $135^\circ$ . Specifically, only the  $\pm 1$  diffraction orders of the beam are collected to encode a sinusoidal pattern in the beam, due to the limited aperture of the configuration and imaging system. Guided by the beam splitters, four sub-pulses are eventually redirected into the same path and recombined as one multiplexed probe beam. Optical imaging lenses L1 and L2 (200 mm focal length) are used to relay the images of the grating patterns onto the ZnTe crystal. Note that the distances between the lens L1 and the four Ronchi gratings should remain strictly identical in all four paths for a well-focused imaging quality. The overall optical power of the probe beam is also equally divided into four sub-pulses, since each pulse has experienced the same times of reflections and transmissions (2 and 2) in the beam-splitter configuration.

The image acquisition and signal recording modules are shown by the yellow region in Fig. 3.4. After passing through the imaging lenses, the multiplexed probe beam impinges on the ZnTe crystal and propagates in parallel (co-propagation scheme [79]) with the THz beam that carries the information of the ultrafast scene. The polarization state of the probe beam is modulated by the THz electric field following EO sampling. Depending from the arrival times of the sub-pulses, the spatial information of the THz beam at the corresponding time instants is encoded into sub-pulses. Being captured by a CCD camera in a single-shot manner, the raw image is the superposition of four sub-pulses that have been recorded during a single exposure cycle of the camera. The detection crystal used here is a 1-mm thick  $\langle 110 \rangle$  ZnTe crystal, where the thickness has been chosen to improve the EO sampling intensity. A linear polarizer (P) is placed in front of the camera to sense the polarization change of the probe beam. Note that the orientation of the polarizer is set to slightly over  $90^\circ$  to provide a non-zero intensity background, which enables the sensing of both positive and negative THz electric fields during EO sampling. The camera used in the system is a 14bits CCD camera (*pco.pixelfly.usb*) with a pixel size of 6.45 $\mu$ m and 1392 $\times$ 1040 total pixel number. In the meantime, the temporal waveform of the multiplexed probe beam is recorded in the balanced photodiode (PD), by recording the same pulse split by the BS8.

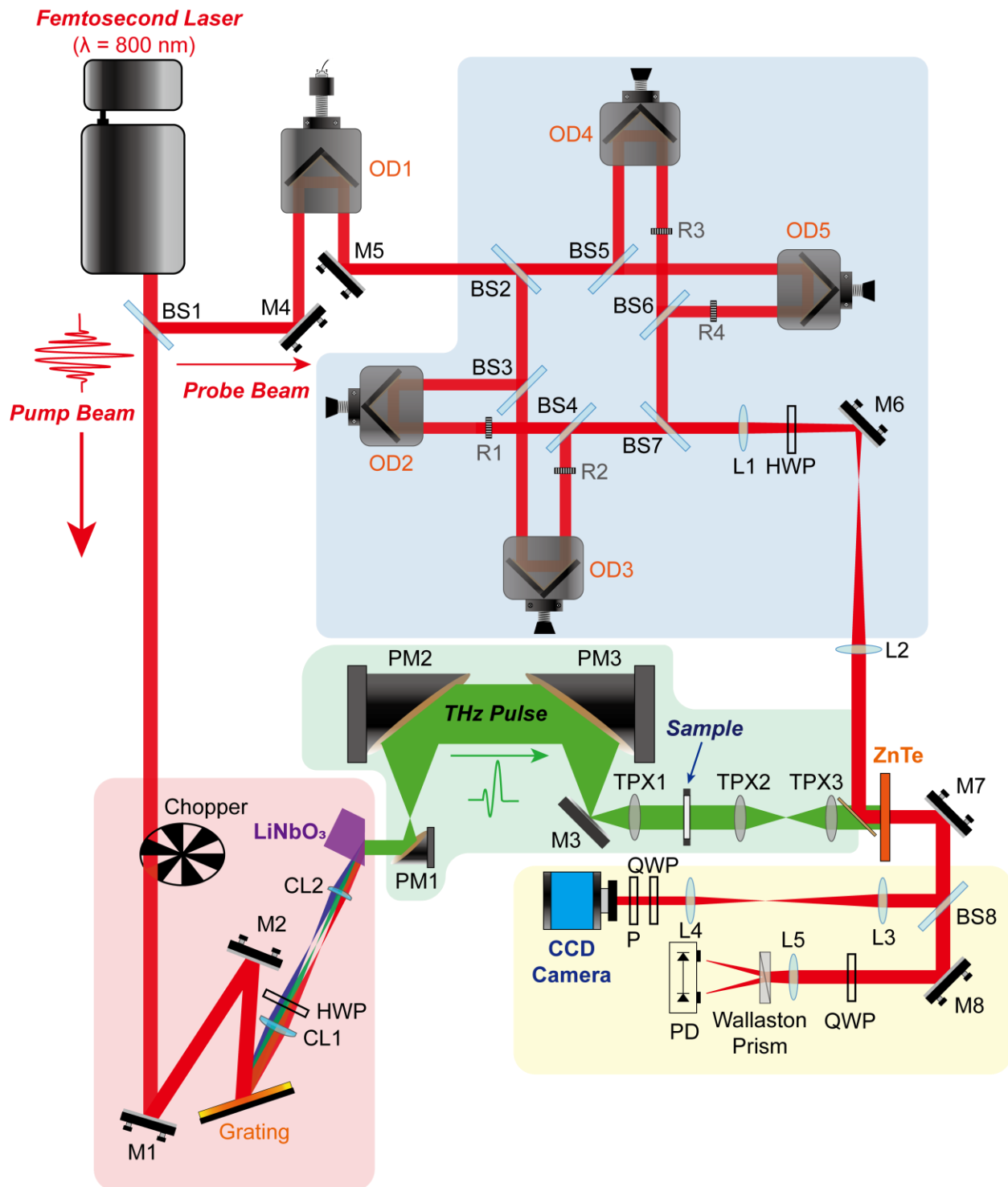
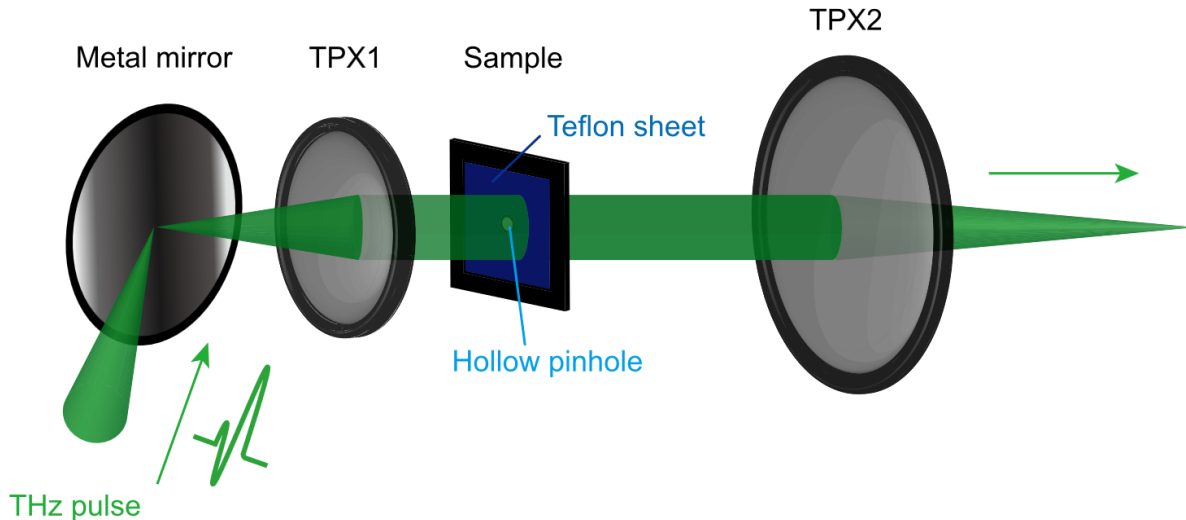


Figure 3.4 The experiment setup of the proposed single-shot ultrafast 2D THz imaging system. The detailed description of the setup is presented in the main text. BS1-BS8, beam-splitters; CL1-CL2, cylindrical lenses; L1-L4, optical lenses; M1-M8, mirror; OD1-OD5, optical delay lines; PM1-PM3, off-axis parabolic mirrors; R1-R4, Ronchi gratings; TPX1-TPX3, THz lenses; HWP, half-wave plate; P, polarizer; PD, balanced photodiode; QWP, quarter-wave plate.

## 4 Application of the Imaging System

### 4.1 Imaging of a Terahertz pulse passing through Teflon

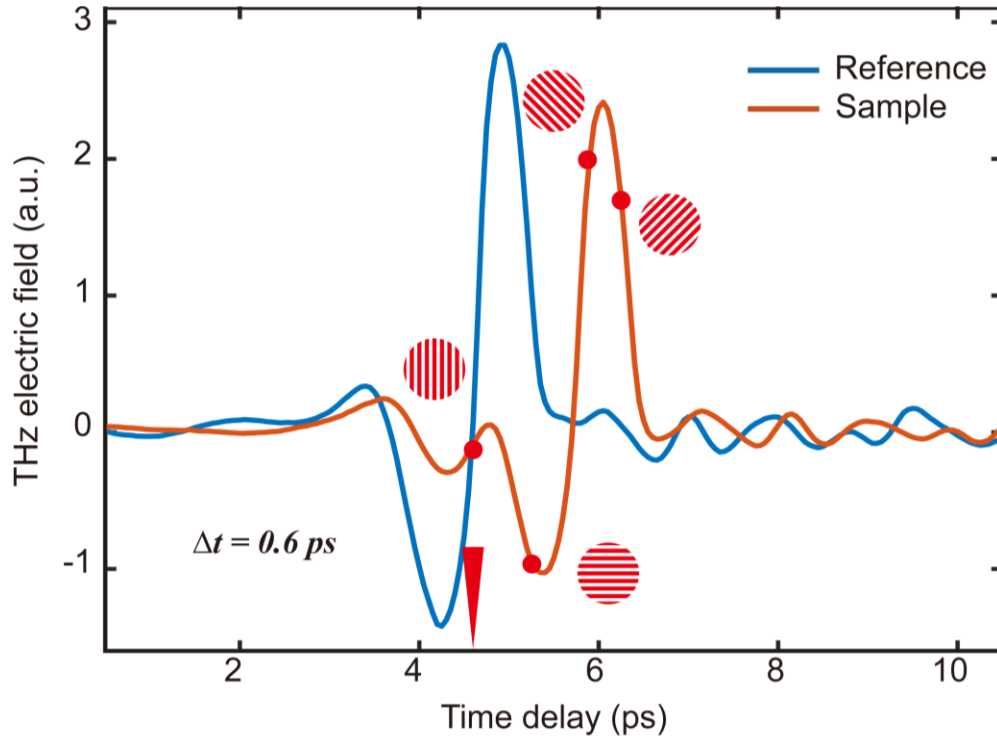
To demonstrate the imaging capability of our system, we imaged the propagation of a bipolar THz pulse in a thin Teflon sheet with a pinhole. A detailed experimental setup of the major components near the sample object is shown in Fig. 4.1. With a bipolar shape of the pulse waveform, the collimated THz beam propagates through the sample object and forms a 2D THz image. The thickness of the Teflon sheet is 0.8mm, and the diameter of the pinhole is designed as 2mm. In the sample, the fraction of the THz pulse passing through the pinhole arrives at the EO crystal faster than the rest area by a few hundred femtoseconds, due to the smaller refractive index in free-space. Thus, the ultrafast event of this sample is produced due to the different propagation velocities of the THz pulses in the Teflon material and pinhole areas, respectively. In particular, this dynamic event is captured by the multiplexed probe beam as four consecutive frames in the EO sampling to reveal the temporal evolution of the THz beam.



**Figure 4.1** Experimental setup for the ultrafast imaging of a bipolar THz pulse propagating through a Teflon sheet sample. A bipolar THz pulse is collimated before passing through the sample object. The Teflon sheet has a thickness of 0.8 mm and the pinhole has a diameter of 2 mm.

For the determination of time delays before carrying out imaging and data-processing, temporal waveforms of the THz electric field amplitude are plotted in Fig. 4.2. The ‘Reference’ waveform is the original THz pulse waveform taken when the Teflon sample is not inserted. As displayed in the figure, the bipolar feature shows that the negative peak (usually referred to as the smaller peak) propagates ahead of the positive peak in a single THz pulse. The ‘Sample’ waveform is acquired by mounting the Teflon sheet sample into the THz path. The waveform covers a larger

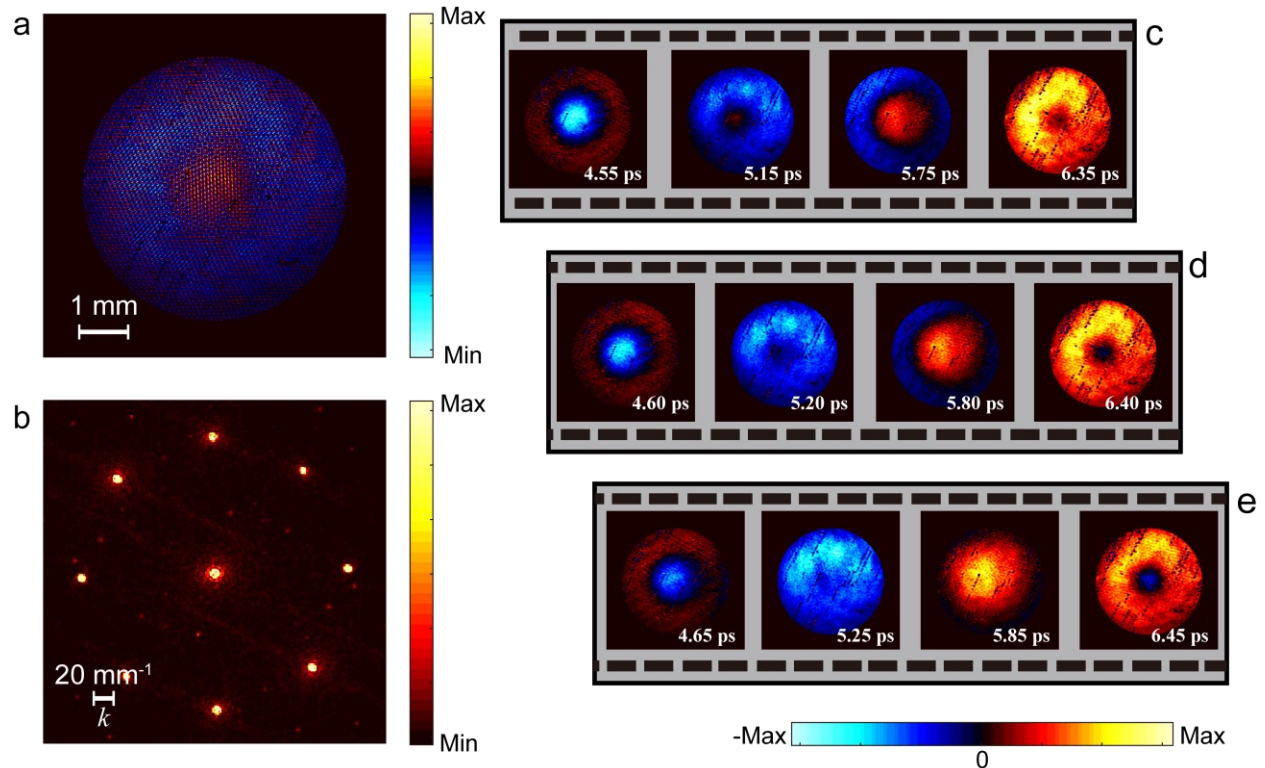
time window which represents the whole process when the THz beam gradually passes through different parts of the sample object. Regarding this elongated ‘Sample’ waveform, the arrival time of the first frame and the frame intervals are set as 4.60 ps and 0.60 ps to record the complete dynamic event at these representative temporal locations. The arrival times for four frames are marked on the sample waveform.



**Figure 4.2** THz temporal waveforms with or without sample (reference) acquired by means of the EO sampling technique. The arrival times of the four frames (sub-pulses) are marked on the ‘sample’ waveform. The arrival time of the first frame is 4.60 ps, and the frame intervals are equally set as 0.6 ps.

Fig. 4.3a and 4.3b show the raw image captured by the camera and the corresponding power spectrum. As discussed before, the multiplexed images for different sub-paths are overlapped in real-space after being acquired by the camera, but their spatial-frequency components are distributed sparsely in the Fourier domain. Besides, no significant interference between frames is observed due to the sufficiently long frame intervals. Therefore, followed by the post-processing algorithms, four frames of the ultrafast event can be well separated and reconstructed successively. Fig. 4.3d shows the recovered 2D images of the THz beam evolution in the four respective temporal locations. In agreement with our expectations, the THz beam propagating through the pinhole area appears first before the Teflon sheet due to the smaller refractive index in air compared with the Teflon material, and the negative polarity of the THz beam also arrives earlier than the THz beam featuring positive polarity. The last two frames display the positive THz

beams that arrive later. Moreover, THz images at different temporal locations of the ultrafast event can be captured by adjusting the main optical delay line (OD1). Fig. 4.3c and e show other two groups of the THz images obtained by introducing an additional  $\pm 50$  fs time delay for the multiplexed probe beam. Note that the dark spots appearing in the recovered images are void defects of the ZnTe crystal originated from an imperfect fabrication process that is random and cannot be avoided.

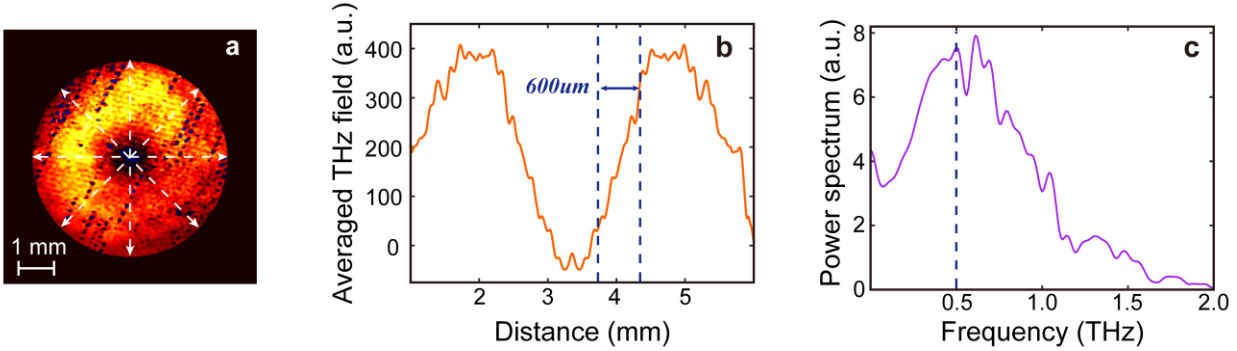


**Figure 4.3** Experimental results and image post-processing of the ultrafast scene. (a)-(b) Raw multiplexed image captured by the CCD camera, and its Fourier transform. (d) A set of 4 ultrafast frames recovered from the multiplexed image in (a). (c) Ultrafast frames recovered from the probe beam that arrived 50 fs earlier than the case in (d). (e) Ultrafast frames recovered from the probe beam that arrived 50 fs later than the case in (d).

In order to characterize the imaging quality of this configuration, the spatial resolution of the recovered frame is digitally evaluated. As shown in Fig. 4.4a, the fourth frame in Fig 4.3d at 6.40 ps is analyzed as an example. Here the spatial resolution is measured by the width of the edge-response in the image, which is defined by the length between 90% and 10% of the maximum value. As marked by the arrow lines in Fig. 4.4a, Fig. 4.4b shows the averaged value of the THz electric field strength across these eight lines to compensate for the nonuniform illumination of the probe beam. The averaged spatial resolution is estimated at about 600  $\mu\text{m}$ , corresponding to the frequency of  $\sim 0.5$  THz. Fig 4.4c shows the Fourier spectrum of a typical THz pulse generated by the LiNbO<sub>3</sub> crystal in our experiment. The calculated spatial resolution in the THz imaging is



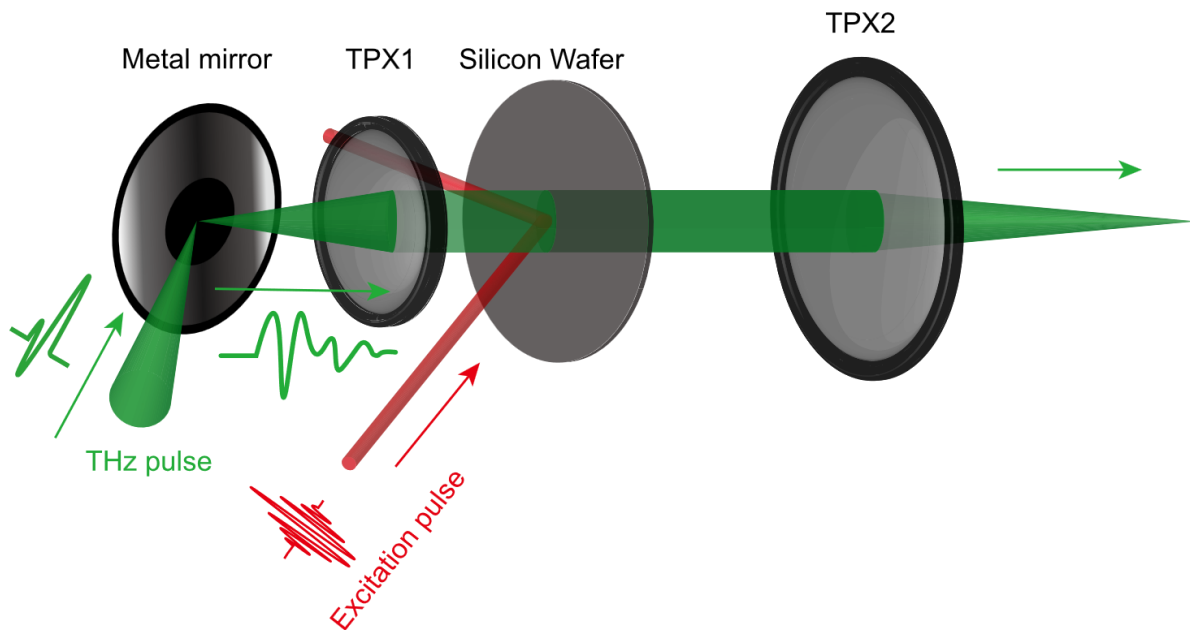
due to the wavelength-limit of the far-field THz imaging system, where the spatial resolution can be further improved by applying, in the future, near-field imaging techniques as a potential solution.



**Figure 4.4** Characterization of the spatial resolution of the recovered ultrafast frames. (a) The fourth frame of Fig 4.3d (6.40ps) is analyzed as an example. (b) The averaged 1D THz electric fields distributed across the lines in different directions highlighted in (a). The spatial resolution is characterized by measuring the width of the edge-response, which is the distance between 10% and 90% of the maximum value. The estimated resolution is  $\sim 600\mu\text{m}$ , corresponding to a frequency of 0.5 THz. (c) The spectrum of THz pulse generated by  $\text{LiNbO}_3$ .

## 4.2 Imaging of photocarrier diffusion in semiconductors

To further exploit the imaging capability of our ultrafast THz imaging system in advanced materials, we characterized the photo-excited carrier generation phenomenon in a silicon wafer. In solid-state physics, semiconductor materials are known exhibit an electronic band structure [80]. For intrinsic semiconductors, the Fermi level locates in the middle of the bandgap, which lies between the valence band and conduction band. Normally, the valence band is nearly completely filled by the electrons, thus the mobilization of electrons is restricted due to the limited vacant electronic states. However, if an external electric field is applied when the photon energy is higher than the band gap, electrons in the valence band could transit into the conduction band and diffuse freely to form the electric current. Thus, the conductivity is temporally increased and the semiconductor behaves as a ‘metallic’ structure [81]. In such case, the THz pulse is reflected and blocked from passing through the silicon wafer, until the optical excitation and subsequent photocarrier relaxation process comes to an end. In our imaging system, measurements in both time and spatial domains are carried out to characterize this ultrafast event.

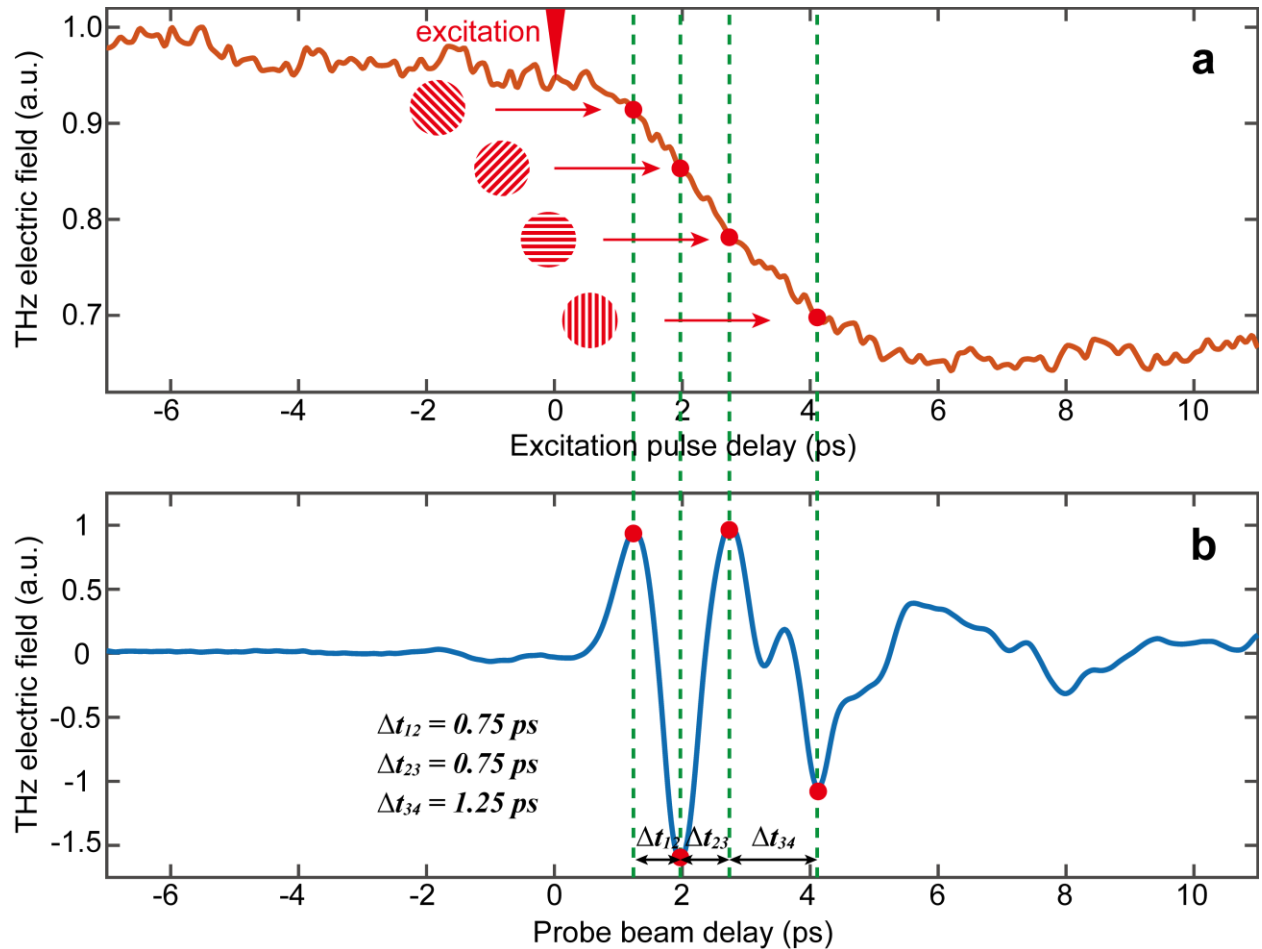


**Figure 4.5 Experimental setup for the ultrafast imaging of the photo-excited carrier generation in the silicon wafer. A multi-cycle THz pulse is obtained by attaching a thin silicon wafer (35  $\mu\text{m}$ ) onto the metal mirror. The excitation pulse is a femtosecond laser pulse split from the main pulse with an optical power of 50mW. The incident angle of the excitation pulse is  $30^\circ$ .**

As illustrated in Fig. 4.5, an obliquely incident optical beam (50mW) illuminates the center of the silicon wafer (500mW) with an incident angle of  $30^\circ$ . The optical beam line of the excitation pulse is obtained by splitting the main pump line, and the arrival time of the excitation pulse is controlled by another time delay device. We first monitor the change of THz transmission on the time axis of the optical excitation pulse to characterize the temporal dynamics of the photocarrier diffusion. More specifically, we fix the arrival times for both the THz pulse and the probe pulse while only changing the optical excitation pulse by moving the time delay device in its path. Thus, the temporal waveform of the carrier dynamics is acquired by recording the change of THz electric field amplitude as plotted in Fig. 4.6a. When the excitation pulse arrives at the surface of the silicon wafer (i.e., excitation-THz-pulse delay equals zero), the THz transmission begins to decrease due to the rise in material conductivity. As a consequence of the oblique incidence, photocarriers are gradually excited from one side in the illuminated area due to the tilted wavefront of the excitation pulse. In our experiments, the trend in signal declining lasted for nearly 5ps until reaching the stable state when the photocarriers are excited in the full area.

It is obvious that conventional THz probing with a single cycle pulse is unable to support the observation of dynamic events featuring such a 5ps-long trend. Therefore, an elongated THz pulse with a larger time window is necessary. In contrast with typical pulse chirping technique in

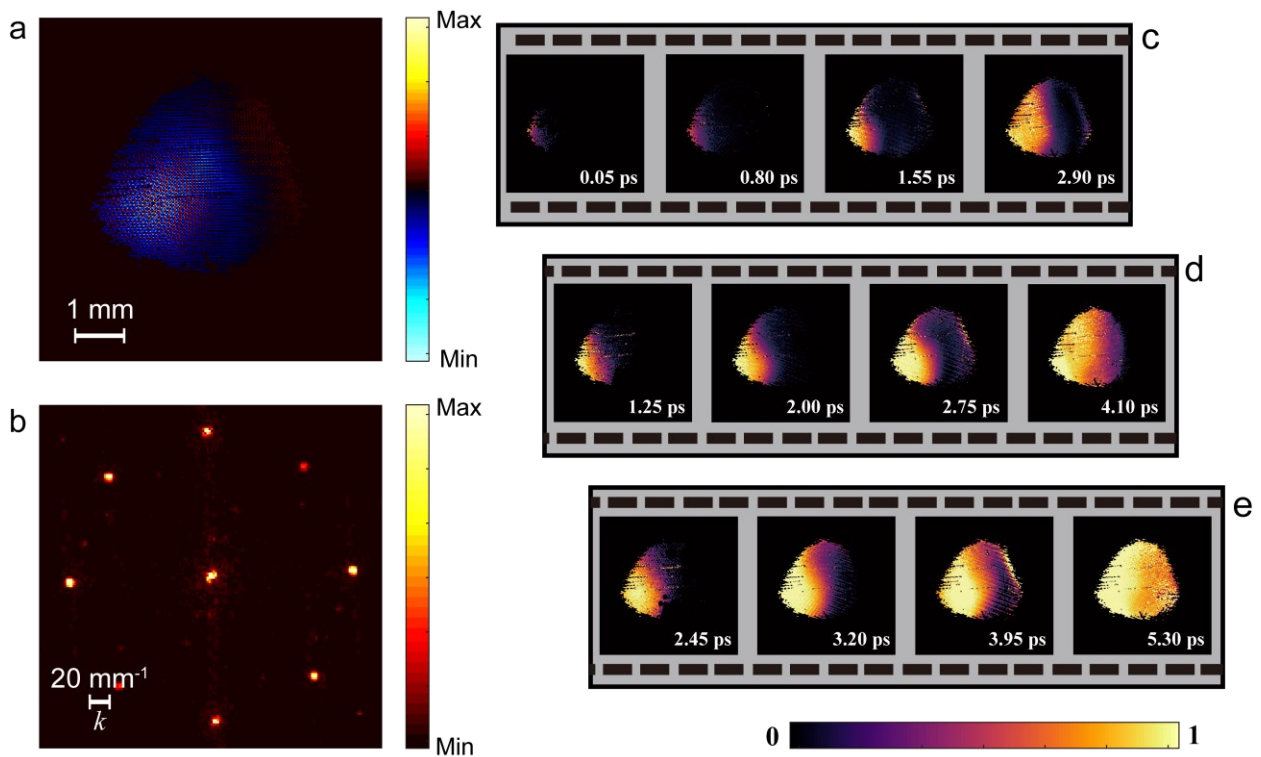
THz generation [82-83], we utilize a more convenient method to prolong the THz pulse duration by attaching a 35- $\mu\text{m}$ -thick thin silicon film onto the mirror (M3) as shown in Fig. 4.5. Due to multiple reflections of the THz pulse within such a thin silicon layer, a THz pulse with a multi-cycle shape can be achieved in a relatively simple manner. The temporal waveform of the elongated THz pulse is plotted in Fig. 4.6b, which demonstrates the imaging capability with a time window of several picoseconds. The arrival times of the four sub-pulses are judiciously arranged at the four peaks of the elongated THz pulse to ensure high efficiency in EO sampling detection. Therefore, the frame intervals are fixed 0ps, 0.75ps, 0.75ps and 1.35ps respectively.



**Figure 4.6** Temporal waveforms of the photo-excited carrier dynamics and multi-cycle THz pulse. (a) Temporal waveform of the photo-excited carrier generation (b) Temporal waveform of the multi-cycle THz pulse. The time positions of the four sub-pulses are marked in the waveform, aligned with four peaks of the THz pulse. The frame intervals are 0 ps, 0.75 ps, 0.75 ps and 1.35 ps respectively.

We have captured and reconstructed multiple sets of images in three representative time slots starting from 0.05ps, 1.25ps and 2.45ps after the first arrival of the excitation pulse, as displayed in Fig. 4.7c-e respectively. The recovered frame set in Fig. 4.7c correspond to the 2D images at 0.05 ps, 0.80 ps, 1.55 ps and 2.90 ps; the recovered frame set in Fig. 4.7d correspond to the 2D

images at 1.25 ps, 2.00 ps, 2.75 ps and 4.10ps; the recovered frame set in Fig. 4.7e correspond to the 2D images at 4.65 ps, 5.25 ps, 5.85 ps and 6.45 ps. The multiplexed image acquired by the camera and its Fourier spectrum of the second 'frame set' are shown in Fig. 4.7a-b, as an example. In the post-processing process, the intensity field plotted here is the 2D image of the modulation ratio, calculated by the division of the specific recovered frame and the reference frame. The reference frame is taken at  $\sim 6$ ps after photocarrier excitation when the stable state is reached. As illustrated by the reconstructed frame sets, the photocarriers are gradually excited from the left to the right side in the illuminated area, and the whole trend of the dynamic scene lasts about 5.30 ps.



**Figure 4.7** Experimental results and image post-processing of the photo-excited carrier generation (a) Raw multiplexed image captured by the CCD camera. (b) The Fourier transform of the multiplexed image in (a). (d) Four ultrafast frames recovered from the multiplexed image in (a), corresponding to the 2D images at 1.25 ps, 2.00 ps, 2.75 ps and 4.10ps in the photo-excited carrier dynamics. (c) Frames recovered when the excitation pulse arrives 1.20 ps later than the case in (d). (e) Frames recovered when the excitation pulse arrives 1.20 ps earlier than the case in (d).

In conclusion, the proposed single-shot ultrafast THz imaging system provides a comprehensive understanding of the disciplines in photocarrier excitation phenomenon by signal analysis in the time domain and ultrafast imaging in 2D space. Meanwhile, semiconductor materials like silicon are non-transparent to the wavelength shorter than 1.1  $\mu\text{m}$  (corresponding to the 1.12eV energy

bandgap for silicon), thus the visualization of such effects is unachievable in the optical wavelengths can only be performed in THz imaging modalities.

## 5 CONCLUSIONS

---

In the framework of this thesis, we proposed a novel single-shot ultrafast two-dimensional THz imaging system to capture the ultrafast dynamic scenes of transient events in advanced materials, which is unachievable by conventional optical imaging modalities. Our THz imaging system exhibits superior performances in both temporal and spatial measurements of 2D sample objects with a sub-picosecond time resolution assisted by the single-shot imaging technique, thus circumvents the need for using a high-speed THz camera.

We introduced the basic conception of THz radiation and the development history of THz imaging technology. Based on its unique advantages, such as penetration ability, biological harmlessness and water content sensitiveness, the application prospects of THz frequency are promising in many research fields, however, they still remain unexploited due to the technological difficulties in THz generation and detection.

Hence, we discussed different THz generation and detection techniques in standard THz-TDS systems, for the implementation of ultrafast imaging based on ultra-short laser pulses. The pulse-front-tilting technique with a  $\text{LiNbO}_3$  is employed to generate an extremely strong THz pulse in our system, which guarantees a high quality of the 2D imaging in the EO sampling THz detection.

Our single-shot ultrafast two-dimensional THz imaging system is established based on the procedures of probe beam multiplexing and image reconstruction algorithms, enabling the ultrafast acquisition of multiple frames simultaneously in a single-shot manner. A four-frame ultrafast-image set with the frame interval of 0.6 ps was acquired in imaging the THz beam evolution in a Teflon sheet sample. Photocarrier excitation and diffusion in a silicon wafer was also measured and observed in the sub-picosecond regime, which opens up the view of the semiconductor material analysis by employing the ultrafast THz imaging configurations.

However, the temporal resolution of our imaging system is essentially limited by the laser pulse duration. When the frame interval is smaller than the pulse duration, significant interference patterns will be constructed as a redundant modulation on the image. Such spectrum contaminations introduce additional noise in the Fourier domain, which may deteriorate image reconstruction. Moreover, the total number of frames is restricted to simplicity, but could be readily increased by establishing additional sub-paths in the beam-splitter configuration.

As a concluding remark, the spatial resolution of our imaging system can be further improved by transiting into a near-field microscopic detection configuration. The current far-field THz imaging

system could potentially be modified into a THz microscope by placing the sample object directly onto the surface of the detection crystal [84-85], thus capturing the THz images at the subwavelength scale. We conceive that our system will provide innovative approaches for a variety of research concerning ultrafast phenomena, while the system itself could still be upgraded constantly in the future for a broader scope of application scenarios [86-88].

## 6 BIBLIOGRAPHY

---

- [1] Lee, Y. S. (2009). Principles of terahertz science and technology (Vol. 170). Springer Science & Business Media.
- [2] Davies, A. G., Linfield, E. H., & Johnston, M. B. (2002). The development of terahertz sources and their applications. *Physics in Medicine & Biology*, 47(21), 3679.
- [3] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling. *Applied Physics Letters*, 69(16):2321–2323, October 1996.
- [4] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi. Terahertz semiconductor-heterostructure laser. *Nature*, 417(6885):156–159, May 2002.
- [5] Dong, J., Kim, B., Locquet, A., McKeon, P., Declercq, N., & Citrin, D. S. (2015). Nondestructive evaluation of forced delamination in glass fiber-reinforced composites by terahertz and ultrasonic waves. *Composites Part B: Engineering*, 79, 667-675.
- [6] Zhong, S. (2019). Progress in terahertz nondestructive testing: A review. *Frontiers of Mechanical Engineering*, 14(3), 273-281.
- [7] Kawase, K. (2004). Terahertz imaging for drug detection and large-scale integrated circuit inspection. *Optics and photonics news*, 15(10), 34-39.
- [8] Dong, J., Locquet, A., & Citrin, D. S. (2016). Terahertz quantitative nondestructive evaluation of failure modes in polymer-coated steel. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 23(4), 1-7.
- [9] Dong, J., Locquet, A., Melis, M., & Citrin, D. S. (2017). Global mapping of stratigraphy of an old-master painting using sparsity-based terahertz reflectometry. *Scientific reports*, 7(1), 1-12.
- [10] El Haddad, J., Bousquet, B., Canioni, L., & Mounaix, P. (2013). Review in terahertz spectral analysis. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 44, 98-105.
- [11] Jornet, J. M., & Akyildiz, I. F. (2013). Graphene-based plasmonic nano-antenna for terahertz band communication in nanonetworks. *IEEE Journal on selected areas in communications*, 31(12), 685-694.
- [12] Ivanov, I., Bonn, M., Mics, Z., & Turchinovich, D. (2015). Perspective on terahertz spectroscopy of graphene. *EPL (Europhysics Letters)*, 111(6), 67001.
- [13] Van Exter, M., Fattinger, C., & Grischkowsky, D. (1989). Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor. *Optics letters*, 14(20), 1128-1130.
- [14] Thrane, L., Jacobsen, R. H., Jepsen, P. U., & Keiding, S. R. (1995). THz reflection spectroscopy of liquid water. *Chemical Physics Letters*, 240(4), 330-333.
- [15] Pickwell, E., & Wallace, V. P. (2006). Biomedical applications of terahertz technology. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(17), R301.
- [16] A. J. Baragwanath, G. P. Swift, D. Dai, A. J. Gallant, and J. M. Chamberlain, "Silicon based microfluidic cell for terahertz frequencies," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 1, p. 013102, 2010.
- [17] S. Hadjiloucas, L. S. Karatzas and J. W. Bowen, "Measurements of leaf water content using terahertz radiation," in *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 47, no. 2, pp. 142-149, Feb. 1999, doi: 10.1109/22.744288.



- [18] Dutta, M., Bhalla, A. S., & Guo, R. (2016). THz imaging of skin burn: seeing the unseen—an overview. *Advances in wound care*, 5(8), 338-348.
- [19] Woodward, R. M., Wallace, V. P., Arnone, D. D., Linfield, E. H., & Pepper, M. (2003). Terahertz pulsed imaging of skin cancer in the time and frequency domain. *Journal of Biological Physics*, 29(2), 257-259.
- [20] Breitenborn, H., Dong, J., Piccoli, R., Bruhacs, A., Besteiro, L. V., Skripka, A., ... & Morandotti, R. (2019). Quantifying the photothermal conversion efficiency of plasmonic nanoparticles by means of terahertz radiation. *Apl Photonics*, 4(12), 126106.
- [21] Dong, J., Breitenborn, H., Piccoli, R., Besteiro, L. V., You, P., Caraffini, D., ... & Morandotti, R. (2020). Terahertz three-dimensional monitoring of nanoparticle-assisted laser tissue soldering. *Biomedical Optics Express*, 11(4), 2254-2267.
- [22] Ozheredov, I., Prokopchuk, M., Mischenko, M., Safonova, T., Solyankin, P., Larichev, A., ... & Shkurinov, A. (2018). In vivo THz sensing of the cornea of the eye. *Laser Physics Letters*, 15(5), 055601.
- Blanchard, F., Doi, A., Tanaka, T., & Tanaka, K. (2013). Real-time, subwavelength terahertz imaging. *Annual Review of Materials Research*, 43, 237-259.
- [23] Woodward, R. M., Wallace, V. P., Arnone, D. D., Linfield, E. H., & Pepper, M. (2003). Terahertz pulsed imaging of skin cancer in the time and frequency domain. *Journal of Biological Physics*, 29(2), 257-259.
- [24] Chopra, N., Yang, K., Abbasi, Q. H., Qaraqe, K. A., Philpott, M., & Alomainy, A. (2016). THz time-domain spectroscopy of human skin tissue for in-body nanonetworks. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 6(6), 803-809.
- [25] Hangyo, M., Tani, M., & Nagashima, T. (2005). Terahertz time-domain spectroscopy of solids: a review. *International journal of infrared and millimeter waves*, 26(12), 1661-1690.
- [26] Piao, Z., Tani, M., & Sakai, K. (2000). Carrier dynamics and terahertz radiation in photoconductive antennas. *Japanese Journal of Applied Physics*, 39(1R), 96.
- [27] Wu, Q., & Zhang, X. C. (1995). Free-space electro-optic sampling of terahertz beams. *Applied Physics Letters*, 67(24), 3523-3525.
- [28] Tani, M., Matsuura, S., Sakai, K., & Nakashima, S. I. (1997). Emission characteristics of photoconductive antennas based on low-temperature-grown GaAs and semi-insulating GaAs. *Applied optics*, 36(30), 7853-7859.
- [29] Stepanov, A. G., Kuhl, J., Kozma, I. Z., Riedle, E., Almási, G., & Hebling, J. (2005). Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification. *Optics Express*, 13(15), 5762-5768.
- [30] Günter, P. (Ed.). (2012). *Nonlinear optical effects and materials* (Vol. 72). Springer.
- [31] Strauss, W. A. (1990). *Nonlinear wave equations* (No. 73). American Mathematical Soc..
- [32] Bass, M., Franken, P. A., Ward, J. F., & Weinreich, G. (1962). Optical rectification. *Physical Review Letters*, 9(11), 446.
- [33] Q. Wu and X. C. Zhang, "Free-space electro-optic sampling of terahertz beams," *Appl. Phys. Lett.* 67, 3523 (1995).
- [34] Hebling, J., Yeh, K. L., Hoffmann, M. C., Bartal, B., & Nelson, K. A. (2008). Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities. *JOSA B*, 25(7), B6-B19.

- [35] Hebling, J., Almasi, G., Kozma, I. Z., & Kuhl, J. (2002). Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation. *Optics Express*, 10(21), 1161-1166.
- [36] K.-L.Yeh, M.C.Hoffmann, J.Hebling, and K.A.Nelson, *Appl.Phys. Lett.*90,1711212007.
- [37] A. G. Stepanov, L.Bonacina, S.V.Chekalin,andJ.-P.Wolf,*Opt.Lett.*33, 24972008.
- [38] Hirori, H., Doi, A., Blanchard, F., & Tanaka, K. (2011). Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO<sub>3</sub>. *Applied Physics Letters*, 98(9), 091106.
- [39] Sizov, F., & Rogalski, A. (2010). THz detectors. *Progress in quantum electronics*, 34(5), 278-347.
- [40] Dong, J., Tomasino, A., Balistreri, G., You, P., Vorobiov, A., Charette, É., ... & Morandotti, R. (2022). Versatile metal-wire waveguides for broadband terahertz signal processing and multiplexing. *Nature communications*, 13(1), 741.
- [41] Wu, Q., & Zhang, X. C. (1997). Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses. *Applied physics letters*, 71(10), 1285-1286.
- [42] Han, P. Y., & Zhang, X. C. (2001). Free-space coherent broadband terahertz time-domain spectroscopy. *Measurement Science and Technology*, 12(11), 1747.
- [43] Neu, J., & Schmuttenmaer, C. A. (2018). Tutorial: An introduction to terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS). *Journal of Applied Physics*, 124(23), 231101.
- [44] Winnewisser, C., Jepsen, P. U., Schall, M., Schyja, V., & Helm, H. (1997). Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub> and ZnTe. *Applied Physics Letters*, 70(23), 3069-3071.
- [45] Chan, W. L., Moravec, M. L., Baraniuk, R. G., & Mittleman, D. M. (2008). Terahertz imaging with compressed sensing and phase retrieval. *Optics letters*, 33(9), 974-976.
- [46] Mittleman, D. M. (2018). Twenty years of terahertz imaging. *Optics express*, 26(8), 9417-9431.
- [47] Chan, W. L., Charan, K., Takhar, D., Kelly, K. F., Baraniuk, R. G., & Mittleman, D. M. (2008). A single-pixel terahertz imaging system based on compressed sensing. *Applied Physics Letters*, 93(12), 121105.
- [48] Wakin, M. B., Laska, J. N., Duarte, M. F., Baron, D., Sarvotham, S., Takhar, D., ... & Baraniuk, R. G. (2006, October). An architecture for compressive imaging. In *2006 international conference on image processing* (pp. 1273-1276). IEEE.
- [49] R. G. Baraniuk, "Compressive Sensing [Lecture Notes]," in *IEEE Signal Processing Magazine*, vol. 24, no. 4, pp. 118-121, July 2007, doi: 10.1109/MSP.2007.4286571.
- [50] Stantchev, R. I., Yu, X., Blu, T., & Pickwell-MacPherson, E. (2020). Real-time terahertz imaging with a single-pixel detector. *Nature communications*, 11(1), 1-8.
- [51] Zhao, J., Williams, K., Zhang, X. C., & Boyd, R. W. (2019). Spatial sampling of terahertz fields with sub-wavelength accuracy via probe-beam encoding. *Light: Science & Applications*, 8(1), 1-8.
- [52] Shan, J., Weling, A. S., Knoesel, E., Bartels, L., Bonn, M., Nahata, A., ... & Heinz, T. F. (2000). Single-shot measurement of terahertz electromagnetic pulses by use of electro-optic sampling. *Optics letters*, 25(6), 426-428.
- [53] Wu, Q., Hewitt, T. D., & Zhang, X. C. (1996). Two-dimensional electro-optic imaging of THz beams. *Applied Physics Letters*, 69(8), 1026-1028.

- [54] Wang, X., Cui, Y., Sun, W., Ye, J., & Zhang, Y. (2010). Terahertz real-time imaging with balanced electro-optic detection. *Optics Communications*, 283(23), 4626-4632.
- [55] Gao, L., Liang, J., Li, C. & Wang, L. V. Single-shot compressed ultrafast photography at one hundred billion frames per second. *Nature* 516, 74-77 (2014).
- [56] Tiwari, V., Sutton, M. A., & McNeill, S. R. (2007). Assessment of high speed imaging systems for 2D and 3D deformation measurements: methodology development and validation. *Experimental mechanics*, 47(4), 561-579.
- [57] Nakagawa, K., Iwasaki, A., Oishi, Y., Horisaki, R., Tsukamoto, A., Nakamura, A., ... & Sakuma, I. (2014). Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP). *Nature Photonics*, 8(9), 695-700.
- [58] Kakue, T., Tosa, K., Yuasa, J., Tahara, T., Awatsuji, Y., Nishio, K., ... & Kubota, T. (2011). Digital light-in-flight recording by holography by use of a femtosecond pulsed laser. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 18(1), 479-485.
- [59] Matlis, N. H., Axley, A., & Leemans, W. P. (2012). Single-shot ultrafast tomographic imaging by spectral multiplexing. *Nature Communications*, 3(1), 1-8.
- [60] Qi, D., Zhang, S., Yang, C., He, Y., Cao, F., Yao, J., ... & Wang, L. V. (2020). Single-shot compressed ultrafast photography: a review. *Advanced Photonics*, 2(1), 014003.
- [61] Solli, D. R., Ropers, C., Koonath, P., & Jalali, B. (2007). Optical rogue waves. *Nature*, 450(7172), 1054-1057.
- [62] Mikami, H., Gao, L., & Goda, K. (2016). Ultrafast optical imaging technology: principles and applications of emerging methods. *Nanophotonics*, 5(4), 497-509.
- [63] Bidare, P., Bitharas, I., Ward, R. M., Attallah, M. M. & Moore, A. J. Fluid and particle dynamics in laser powder bed fusion. *Acta Mater.* 142, 107–120 (2018).
- [64] Kodama, R. et al. Fast heating of ultrahigh-density plasma as a step towards laser fusion ignition. *Nature* 412, 798–802 (2001).
- [65] Poulin, P. R. Irreversible Organic Crystalline Chemistry Monitored in Real Time. *Science* (80-. ). 313, 1756–1760 (2006).
- [66] Stein, R. B., Gossen, E. R., & Jones, K. E. (2005). Neuronal variability: noise or part of the signal?. *Nature Reviews Neuroscience*, 6(5), 389-397.
- [67] Wang, X., Yan, L., Si, J., Matsuo, S., Xu, H., & Hou, X. (2014). High-frame-rate observation of single femtosecond laser pulse propagation in fused silica using an echelon and optical polarigraphy technique. *Applied Optics*, 53(36), 8395-8399.
- [68] Nakagawa, K., Iwasaki, A., Oishi, Y., Horisaki, R., Tsukamoto, A., Nakamura, A., ... & Sakuma, I. (2014). Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP). *Nature Photonics*, 8(9), 695-700.
- [69] Ehn, A., Bood, J., Li, Z., Berrocal, E., Aldén, M., & Kristensson, E. (2017). FRAME: femtosecond videography for atomic and molecular dynamics. *Light: Science & Applications*, 6(9), e17045-e17045.
- [70] Piao, Z., Tani, M., & Sakai, K. (2000). Carrier dynamics and terahertz radiation in photoconductive antennas. *Japanese Journal of Applied Physics*, 39(1R), 96.
- [71] Ulbricht, R., Hendry, E., Shan, J., Heinz, T. F., & Bonn, M. (2011). Carrier dynamics in semiconductors studied with time-resolved terahertz spectroscopy. *Reviews of Modern Physics*, 83(2), 543.

- [72] Jelic, V., Iwaszczuk, K., Nguyen, P. H., Rathje, C., Hornig, G. J., Sharum, H. M., ... & Hegmann, F. A. (2017). Ultrafast terahertz control of extreme tunnel currents through single atoms on a silicon surface. *Nature Physics*, 13(6), 591-598.
- [73] Cong, L., Srivastava, Y. K., Zhang, H., Zhang, X., Han, J., & Singh, R. (2018). All-optical active THz metasurfaces for ultrafast polarization switching and dynamic beam splitting. *Light: Science & Applications*, 7(1), 1-9.
- [74] Moon, J., Yoon, S., Lim, Y. S., & Choi, W. (2020). Single-shot imaging of microscopic dynamic scenes at 5 THz frame rates by time and spatial frequency multiplexing. *Optics Express*, 28(4), 4463-4474.
- [75] Moon, J., Yoon, S. C., Lim, Y. S., & Choi, W. (2019). Microscopic imaging of non-repetitive dynamic scenes at 5 THz frame rates by time and spatial frequency multiplexing. *arXiv preprint arXiv:1909.00499*.
- [76] Dai, B., Zhuo, R., Yin, S., Lv, M., Hong, R., Wang, Q., ... & Wang, X. (2016). Ultrafast imaging with anti-aliasing based on optical time-division multiplexing. *Optics letters*, 41(5), 882-885.
- [77] Goodman, J. W. (2005). *Introduction to Fourier optics* / Joseph W. Goodman. (3rd ed.). Roberts & Co.
- [78] Oppenheim, A. V., Willsky, A. S., Nawab, S. H., & Hernández, G. M. (1997). *Signals & systems*. Pearson Educación.
- [79] Nahata, A., Yardley, J. T., & Heinz, T. F. (2002). Two-dimensional imaging of continuous-wave terahertz radiation using electro-optic detection. *Applied Physics Letters*, 81(6), 963-965.
- [80] Grosso, G., & Parravicini, G. P. (2013). *Solid state physics*. Academic press.
- [81] Rana, F. (2008). Graphene terahertz plasmon oscillators. *IEEE Transactions on Nanotechnology*, 7(1), 91-99.
- [82] Jolly, S. W., Mattis, N. H., Ahr, F., Leroux, V., Eichner, T., Calendron, A. L., ... & Maier, A. R. (2019). Spectral phase control of interfering chirped pulses for high-energy narrowband terahertz generation. *Nature communications*, 10(1), 1-8.
- [83] Kovács, K., Balogh, E., Hebling, J., Toşa, V., & Varjú, K. (2012). Quasi-phase-matching high-harmonic radiation using chirped THz pulses. *Physical review letters*, 108(19), 193903.
- [84] Blanchard, F. et al. Real-time terahertz near-field microscope. *Opt. Express* 19, 8277 (2011).
- [85] Zhao, J., E, Y., Williams, K., Zhang, X. & Boyd, R. Spatial Sampling of Terahertz Fields with Sub-wavelength Accuracy via Probe Beam Encoding. *Light Sci. Appl.* (2019).
- [86] Yan, Z., Zhu, L. G., Meng, K., Huang, W., & Shi, Q. (2022). THz medical imaging: from in vitro to in vivo. *Trends in Biotechnology*.
- [87] Samanta, D., Karthikeyan, M. P., Agarwal, D., Biswas, A., Acharyya, A., & Banerjee, A. (2022). Trends in terahertz biomedical applications. *Generation, Detection and Processing of Terahertz Signals*, 285-299.
- [88] Yin, X. X., Baghai-Wadji, A., & Zhang, Y. (2022). A biomedical perspective in terahertz nano-communications—A review. *IEEE Sensors Journal*.

# SOMMAIRE RÉCAPITULATIF

## 1. Introduction au rayonnement térahertz

La radiation térahertz (THz) est la partie du spectre électromagnétique dont la gamme de fréquences va de  $0.1 \times 10^{12}$  à  $10 \times 10^{12}$  Hz, correspondant à une longueur d'onde allant de 3000 à 30  $\mu\text{m}$  (Fig. 1). La radiation THz est couramment diffusée dans l'environnement naturel et nos lieux de vie, mais elle reste la bande spectrale la moins explorée en raison des difficultés technologiques à trouver des matériaux et des méthodes pour réaliser une génération THz de haute puissance et une détection de haute efficacité [1]. Pendant longtemps, le terme "fossé THz" a été utilisé pour décrire le manque significatif d'applications dans cette plage de fréquences entre les micro-ondes et la lumière infrarouge (IR). Cependant, le "fossé THz" se rétrécit depuis plusieurs décennies en raison du développement de nouveaux dispositifs optiques ultrarapides et semi-conducteurs [2-4], permettant ainsi un potentiel accroissement en matière d'applications pratiques dans ce régime de fréquences.

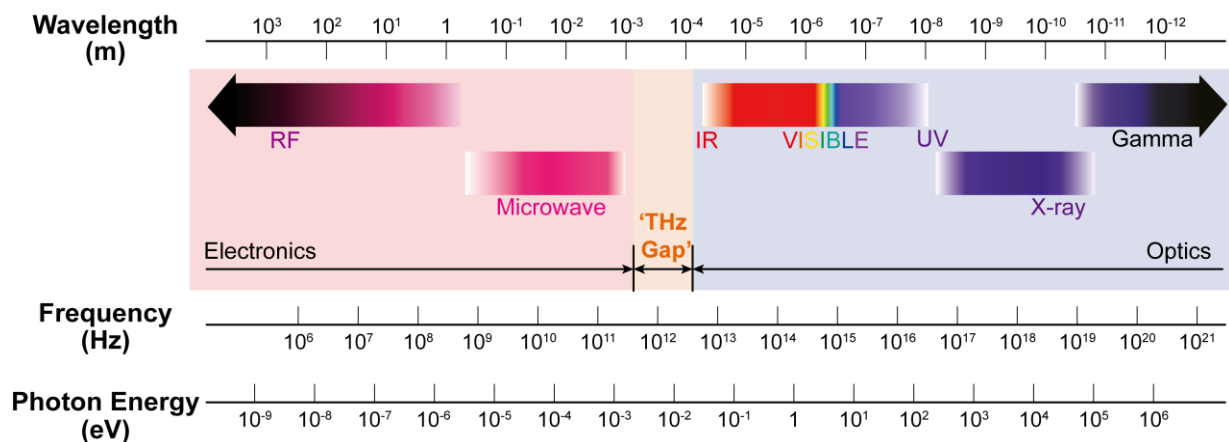


Figure 1 L'emplacement de la bande Terahertz (THz) dans le spectre électromagnétique, qui se situe entre les fréquences optiques et électroniques, est appelé "fossé THz".

En tant que technologie émergente, la radiation THz présente de nombreuses caractéristiques passionnantes. La première est la capacité à "voir à travers". La radiation THz a une bonne pénétrabilité sur une variété de matériaux optiquement opaques tels que le plastique, le papier, le carton et la céramique [5]. Cette propriété permet d'inspecter des échantillons fermés et de révéler leurs structures internes sous couvert. Par exemple, le rayonnement THz a été appliqué à l'évaluation non destructive (ND) d'emballages scellés [6], de circuits électroniques [7], de revêtements multicouches [8], ainsi que de peintures à l'huile anciennes [9].

La seconde propriété est la caractéristique 'empreinte digitale'. De nombreuses résonances spectrales, telles que les modes de rotation et de vibration des molécules [10] et les transitions intrabandes dans les semi-conducteurs [11-12], sont réparties dans la région THz. Ces caractéristiques sont indiquées par les raies d'absorption dans le spectre THz, de sorte que l'amplitude et l'emplacement spectral des pics d'absorption peuvent être utilisés pour identifier une substance donnée. La structure physique et la composition chimique de l'objet peuvent être caractérisées via la spectroscopie THz.

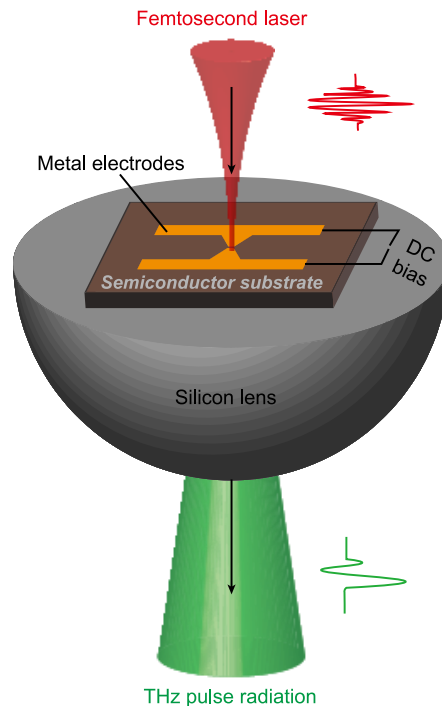
De plus, la radiation THz est fortement absorbée par les molécules d'eau et peut être utilisée comme indicateur sensible pour déterminer la teneur en eau dans divers matériaux [13-14]. En particulier, la radiation THz joue un rôle important dans les applications d'analyse biologique et médicale, telles que les biosenseurs à puce microfluidique et la détection biomédicale [15-16]. La radiation THz fournit également un bon contraste dans la visualisation des niveaux d'hydratation des plantes [17] ou permet une évaluation précise de la morphologie des cellules de tumeur [19].

Enfin, les radiations THz sont 'sûres' pour les êtres humains. L'énergie photonique des radiations THz est très faible (0.4 MeV à 41 MeV), inférieure à certaines liaisons chimiques, telles que dans les molécules organiques et biologiques. Par conséquent, il ne cause pas de réaction ionisante et ne représente pas un risque pour la santé des tissus vivants ou des corps humains (à la différence des rayons X). Par conséquent, de nombreuses études liées à des applications biomédicales THz ont été menées, telles que l'imagerie in vivo de la cornée humaine [20] et la spectroscopie temps-domaine des tissus cutanés [21-22].

Avec le développement rapide de technologies avancées en physique et en dispositifs électroniques, plusieurs techniques différentes de génération de radiations THz ont été exploitées [23]. En général, les méthodes de génération d'impulsions THz à large bande peuvent être classées en deux catégories en fonction de leurs mécanismes respectifs : la génération de THz par des électrons accélérés dans des semiconducteurs et la conversion de fréquence dans des cristaux non linéaires.

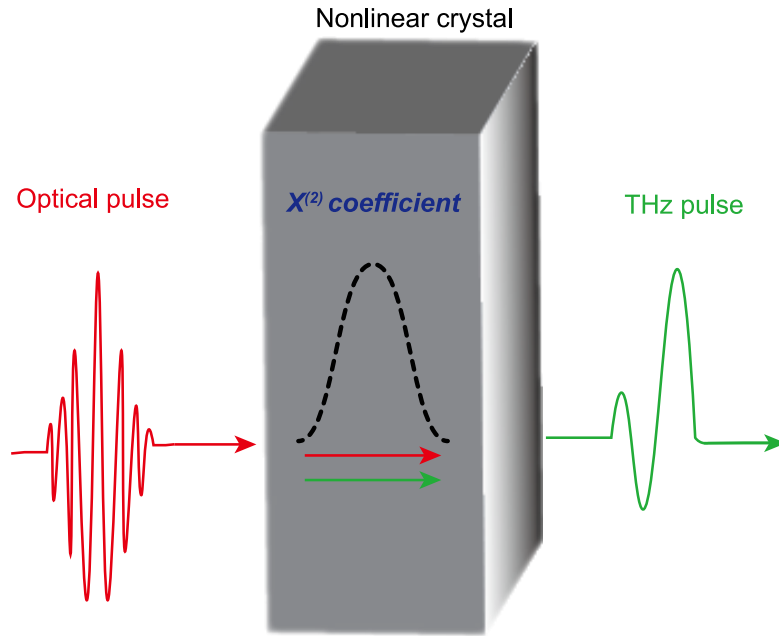
La méthode la plus couramment utilisée pour générer des impulsions THz à partir d'électrons accélérés est l'utilisation d'une antenne photoconductrice (PCA) polarisée [24-25]. Comme représenté sur la Fig. 2, la structure typique d'une PCA comprend des électrodes métalliques déposées sur un substrat semi-conducteur, tel que du GaAs. Lorsqu'elle est illuminée par un faisceau de laser femtoseconde dans l'intervalle entre deux électrodes, des porteurs de photocourant sont générés par excitation photonique, qui peuvent être accélérés par une tension polarisée DC appliquée. Les électrons accélérés induisent un courant photoconducteur variable

dans le temps et rayonnent des ondes électromagnétiques en conséquence. Une impulsion THz à large bande est alors générée, découlant de la forme d'onde variable dans le temps du pulse laser femtoseconde incident. Une lentille hémisphérique en silicium à haute résistivité peut être fixée sur la face arrière du substrat pour collecter et collimater le rayonnement THz très divergent.



**Figure 2 Structure typique d'un émetteur photoconducteur conventionnel (PCA).**

La rectification optique (OR) est une autre approche pour générer des impulsions THz à large bande passante basée sur la conversion de fréquence non linéaire [1]. Comparé aux émetteurs PCA conventionnels, l'OR a la capacité de générer des impulsions THz beaucoup plus fortes (jusqu'à sub-mW [27]). Le diagramme du processus OR est montré dans la Fig. 3. Dans le cristal non linéaire, une impulsion optique incidente subit une conversion de fréquence non linéaire et se transforme en radiation THz. La forme d'onde de la radiation THz émise ressemble à l'enveloppe de l'impulsion laser femtoseconde incidente.



**Figure 3 Schéma de la génération d'impulsions THz par rectification optique (OR) dans un cristal non-linéaire.** Du point de vue théorique, la rectification optique (OR) est un effet optique non linéaire de second ordre qui se produit dans un cristal non centrosymétrique, lorsque le champ électrique appliqué du faisceau optique incident est considérablement fort et entraîne des déplacements d'électrons par rapport à des positions d'équilibre [28]. Dans le régime linéaire conventionnel, les mouvements d'électrons peuvent être décrits de manière quantitative par le modèle d'oscillateur harmonique : la polarisation électronique  $P$  est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique appliqué de manière externe, cependant, un modèle linéaire échoue lorsque le champ appliqué est suffisamment élevé. Dans le régime non linéaire, l'équation générale décrivant la polarisation non linéaire induite est montrée ci-dessous:

$$\vec{P}(t) = \vec{P}_0(t) + \varepsilon_0(\chi^{(1)}\vec{E}(t) + \chi^{(2)}\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \chi^{(3)}\vec{E}(t)\vec{E}(t)\vec{E}(t) + \dots) \quad (6.1)$$

Ici, la polarisation électronique non linéaire  $\vec{P}(t)$  est décrite par la somme de la série d'expansion de Taylor en fonction du champ électrique extérieur  $\vec{E}(t)$  au temps  $t$ .  $\varepsilon_0$  désigne la permittivité diélectrique absolue dans le vide.  $\chi^{(n)}$  est le tenseur de susceptibilité d'ordre  $n$  du milieu non linéaire représenté par un tenseur de rang  $(n + 1)$ . Notez que la susceptibilité de second ordre  $\chi^{(2)}$  correspond au processus de génération de second harmonique (SHG) en OR. En supposant que le terme de polarisation non linéaire de second ordre  $\vec{P}^{(2)}(t) = \chi^{(2)}\vec{E}(t)\vec{E}(t)$  est la principale source de non-linéarité, et que le champ électrique extérieur est une onde plane polarisée



linéairement se propageant le long de l'axe  $z$ , l'équation d'onde non linéaire couplée du pulse THz généré peut être décrite par [29]:

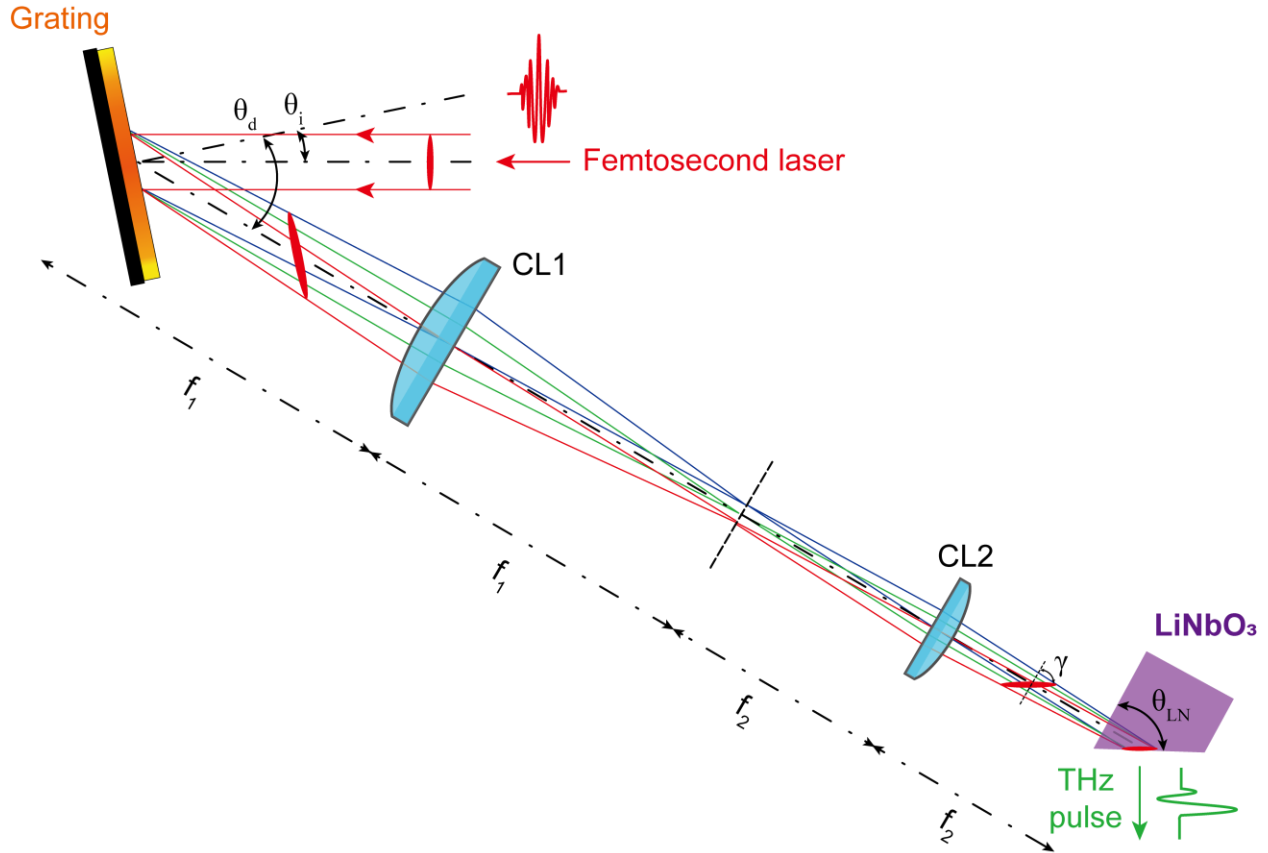
$$\nabla^2 \vec{E}_{THz}(z, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_{THz}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\chi^{(2)}}{c^2} \frac{\partial^2 |\vec{E}_o(z, t)|^2}{\partial t^2} \quad (1.2)$$

où  $\vec{E}_{THz}(z, t)$  et  $\vec{P}^{(2)}(z, t)$  représentent le champ électrique et la polarisation non linéaire de l'impulsion THz après avoir parcouru une distance de  $z$  dans le cristal au temps  $t$ .  $\vec{E}_o(z, t)$  représente le champ électrique de l'impulsion optique appliquée.

Comme décrit par l'équation (1.2), le coefficient  $\chi^{(2)}$  du cristal non linéaire est important, car il influence directement l'amplitude des impulsions THz générées. De plus, le cas idéal pour une génération THz efficace survient lorsqu'une impulsion THz se propage à la même vitesse que l'impulsion optique, c'est-à-dire,  $v_{p,THz} = v_{g,o}$ , ce qui est appelé la condition de correspondance de phase. La condition rigoureuse de correspondance de phase est satisfaite lorsque la vitesse de phase de l'impulsion THz correspond à la vitesse de groupe de l'impulsion optique, de sorte que l'impulsion THz peut être progressivement amplifiée dans la direction  $z$  tout en se propageant dans le cristal non linéaire.

Par conséquent, une source THz de haute puissance peut être réalisée en employant le cristal de Niobate de Lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ) qui a un coefficient de susceptibilité non linéaire considérablement élevé ( $r_{33} = 30.9 \text{ pm/V @ } 800 \text{ nm}$ ). Cependant, en raison de la grande différence d'indice de réfraction dans le cristal  $\text{LiNbO}_3$  ( $n_{THz}$  et  $n_{pump}$ ), la configuration de propagation colinéaire, lorsque l'impulsion de pompe est normalement incidente et parallèle à l'impulsion THz rayonnée, n'est plus applicable pour le  $\text{LiNbO}_3$ . La condition de correspondance de phase est remplie en appliquant la technique de 'basculement du front d'impulsion'. Étant donné que les indices de réfraction dans un  $\text{LiNbO}_3$  stœchiométrique sont  $n_{g,pump} = 2.3$  et  $n_{p,THz} = 5.2$ , l'angle optimal d'adaptation de phase est calculé comme  $\gamma = 63^\circ$  sur la base de l'équation :

$$\cos \gamma = \frac{v_{g,pump}}{v_{p,THz}} \quad (1.3)$$



**Figure 4** Schématiques d'un montage de génération d'impulsion THz basé sur la technique de basculement du front d'impulsion.

Le montage schématique pour la génération d'impulsions THz via la technique d'inclinaison de la face d'impulsion est illustré dans la Fig. 4. La pompe optique est un laser femtoseconde. Tout d'abord, le front d'impulsion est orienté perpendiculairement à la direction de propagation de façon à avoir un faisceau à propagation normale. En utilisant un réseau de diffraction avec un angle d'incidence de  $\theta_i$  et un angle de diffraction de  $\theta_d$ , la face d'impulsion du faisceau de pompe réfléchi est conséquemment inclinée. Une lame de retard demi-onde (HWP) est utilisée pour faire tourner la polarisation du faisceau de pompe. La face d'impulsion du faisceau de pompe entre alors dans un système d'imagerie 4f composé de deux lentilles cylindriques CL1 et CL2, où il est comprimé, retourné horizontalement (perpendiculaire à la page) et concentré à l'intérieur du LiNbO<sub>3</sub> près du plan d'interface de sortie. Ainsi, un angle d'inclinaison de la face d'impulsion de  $\gamma$  est finalement atteint, où l'angle  $\gamma$  peut être calculé comme suit [36]:

$$\tan \gamma = \frac{m \lambda_0 p}{n_{g,pump} \beta \cos \theta_d} \quad (1.4)$$

Ici,  $\lambda_0$  et  $n_{g,pump}$  sont la longueur d'onde centrale et l'indice de réfraction de groupe du faisceau de pompage dans le cristal LiNbO<sub>3</sub>.  $m$ ,  $p$  et  $\theta_d$  sont l'ordre de diffraction, la densité de rainure et l'angle de diffraction du réseau.  $\beta$  est le facteur de d'agrandissement du système d'imagerie 4f. Il est à noter que le cristal LiNbO<sub>3</sub> utilisé ici est fabriqué à un angle de coupe  $\theta_{LN}$  pour fournir un angle d'incidence normal pour le faisceau de pompage, spécifiquement  $\theta_{LN} = \gamma$ , de sorte que l'impulsion THz sera générée et émise par le cristal perpendiculairement au plan de sortie.

Les configurations de détection THz sont généralement dites soit cohérentes ou incohérentes. Les détecteurs THz incohérents sont des capteurs thermiques qui mesurent l'accumulation de chaleur de l'irradiation THz incidente, mais souffrent généralement d'une vitesse de réponse lente [37]. Les détecteurs THz cohérents ont des structures similaires aux sources THz que nous avons précédemment présentées, où les mécanismes sous-jacents sont étroitement liés aux techniques de génération correspondantes. Généralement, les PCA et les cristaux non linéaires sont également fréquemment utilisés comme détecteurs THz cohérents.

Le mécanisme fondamental de la détection d'impulsions THz dans les PCA ressemble à celui de la génération de rayonnement THz dans les mêmes dispositifs. Lorsqu'une tension continue de polarisation n'est pas présente, l'impulsion de sonde optique excite les porteurs de photocourant dans l'espace, et le courant induit est conduit par le champ électrique de l'impulsion THz incidente. Le photocourant est proportionnel à l'amplitude d'impulsion THz, où la forme d'onde du champ électrique THz est acquise en mesurant le profil variant dans le temps du photocourant. Ce profil est reconstruit en changeant le délai temporel relatif entre les impulsions THz et de sonde optique.

L'échantillonnage électro-optique en espace libre (EO) peut être utilisé en alternative à la technique de détection basée sur PCA et est capable de mesurer à la fois les informations d'amplitude et de phase des impulsions THz, avec un degré élevé de précision dans le domaine temporel [38-39]. Basé sur un processus optique non linéaire similaire, l'échantillonnage EO en espace libre utilise l'effet Pockels, qui est étroitement lié à l'OR à la base de la génération de THz dans des cristaux non linéaires.

La Fig. 5 décrit le principe opérationnel à la base de la technique d'échantillonnage optoélectrique en espace libre. Lorsqu'une impulsion THz et une impulsion optique copropagent dans un cristal non linéaire, le champ électrique de l'impulsion THz induit une biréfringence à l'intérieur du cristal, ce qui fera tourner la polarisation de l'impulsion optique en conséquence. En particulier, un état polarisé circulairement est transformé en un état polarisé elliptiquement. La polarisation elliptique est à nouveau transformée en une forme « quasi-circulaire » à travers la rotation de polarisation imposée par une plaque quart d'onde, puis divisée par un prisme de Wollaston en deux

composantes de polarisation orthogonales. Enfin, une photodiode équilibrée mesure la différence d'intensité entre ces composantes, qui est proportionnelle à l'intensité du champ électrique de l'impulsion THz.

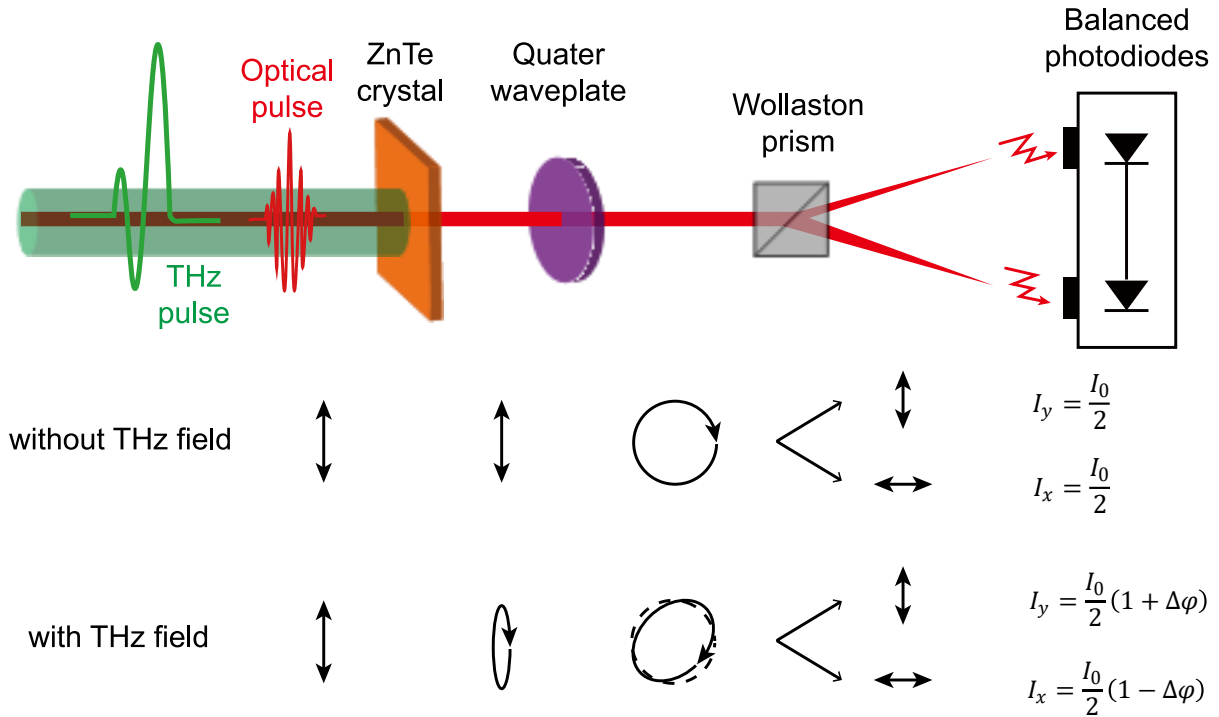
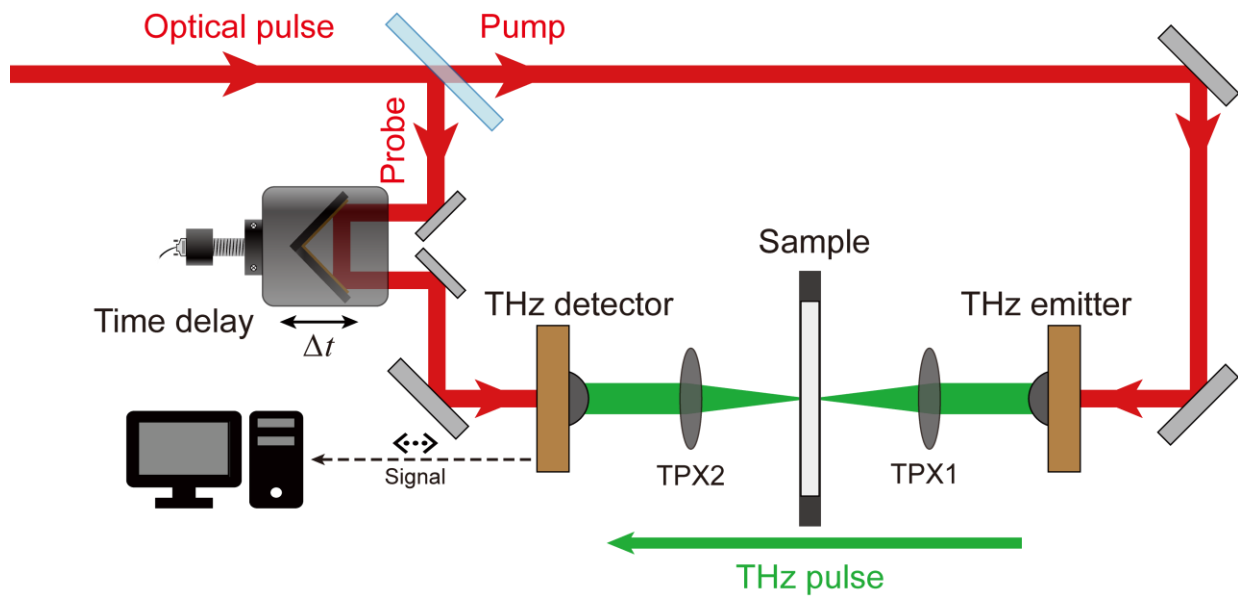


Figure 5 Une vue schématique de la technique d'échantillonnage EO dans le cristal ZnTe. Les changements de polarisation avec ou sans le champ THz sont illustrés.

## 2. Technologie d'imagerie térahertz

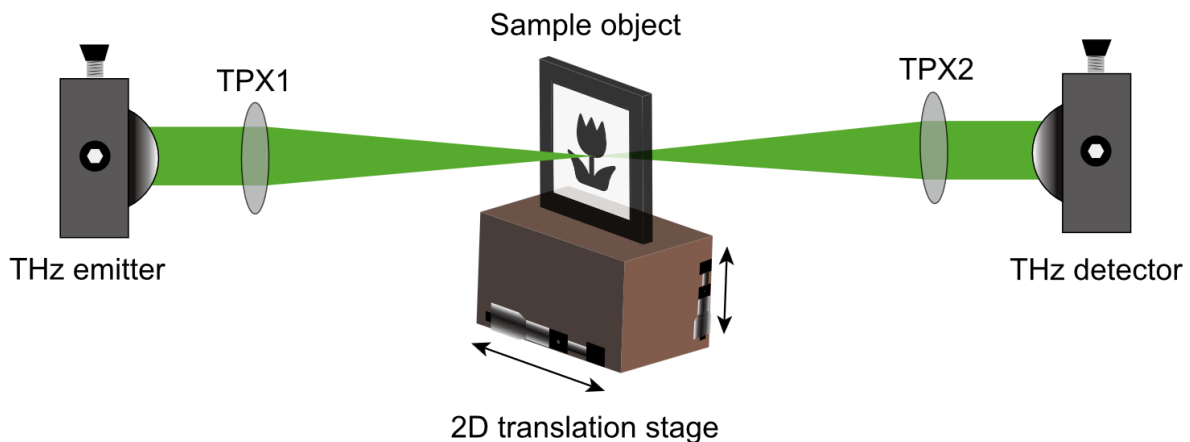
Au cours des dernières décennies, le rayonnement THz est devenu un outil avancé et puissant dans de nombreux scénarios d'application, en particulier dans le domaine de l'imagerie. Tout d'abord, le rayonnement THz a une bonne capacité de pénétration dans les matériaux diélectriques et organiques, tout en ne posant aucun risque de destruction ou de santé sur l'objet. De plus, bien que les micro-ondes puissent également pénétrer de nombreux matériaux, ils souffrent d'une faible résolution spatiale en raison de leurs longueurs d'onde plus longues (par rapport à celles du THz). La technologie d'imagerie THz est l'un des derniers accomplissements dans le champ de recherche chaud de la technologie d'imagerie et de nombreux concepts sont encore immatures ou ont des applications limitées dans les secteurs industriels pratiques. Néanmoins, un nombre croissant de nouvelles modalités d'imagerie THz ont été exploitées au cours des deux dernières décennies, ce qui a considérablement promu le développement de la technologie d'imagerie THz.

La spectroscopie dans le domaine temporel THz (THz-TDS) est l'une des techniques les plus puissantes pour la caractérisation de matériaux et le contrôle de processus dans le régime THz [40]. C'est un schéma expérimental de base pour la génération et la détection THz dans une configuration de pompe-sonde. L'illustration conceptuelle d'un système THz-TDS typique est montrée dans la Fig. 6.



**Figure 6** Vue schématique d'un système THz-TDS typique pour la génération et la détection d'impulsions THz. En général, chaque impulsion du faisceau laser pulsé est divisé en deux chemins : un chemin de pompe et un chemin de sonde pour réaliser à la fois la génération THz et la détection cohérente. Dans le chemin de la pompe, un pulse optique atteint l'émetteur THz afin de produire un pulse THz. Le pulse THz généré est concentré sur l'échantillon à l'aide d'une lentille TPX (lentille spéciale travaillant dans le spectre de fréquence THz), puis collecté par un détecteur THz. Dans le chemin du pulse sonde, une platine de translation motorisée contrôle la longueur de chemin optique afin de fournir un délai temporel relatif entre les deux chemins. En changeant le délai temporel relatif entre les pulses de pompe et de sonde, la forme d'onde temporelle du pulse THz peut être acquise via ce processus de numérisation. En se basant sur les informations d'amplitude et de phase acquises, les propriétés d'absorption et de dispersion du matériau d'échantillon peuvent être mesurées et analysées.

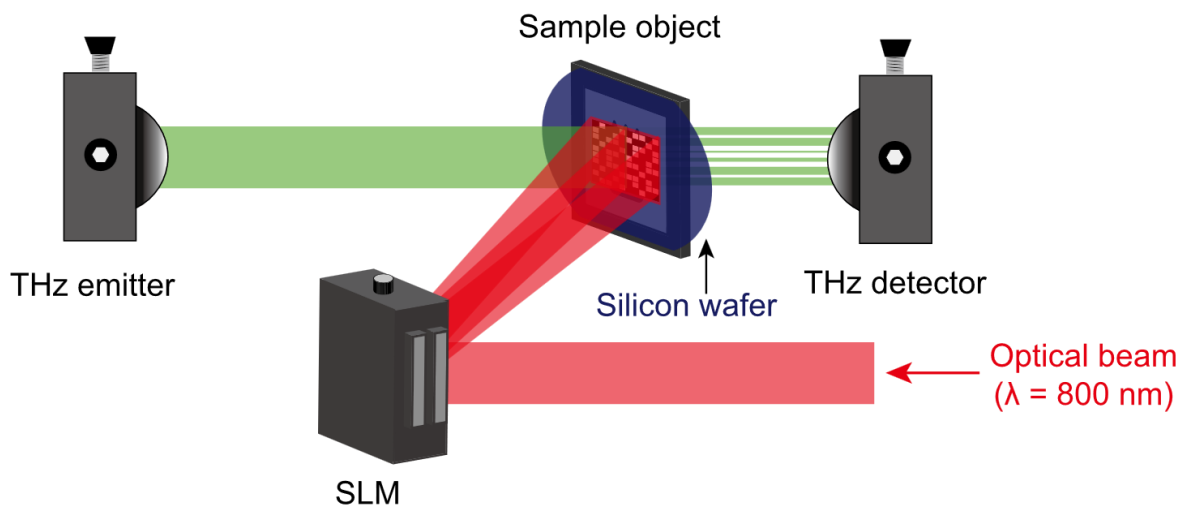
Sur la base du système THz-TDS, de nombreuses configurations et technologies ont été développées pour implémenter l'imagerie THz au cours des deux dernières décennies. L'imagerie par balayage Raster est la méthode la plus conventionnelle pour réaliser l'imagerie THz. Au début, un détecteur à pixel unique (tel que PCA) était la seule option pour la mise en œuvre de la détection THz [41-42]. Une configuration typique pour ce système est montrée dans la Fig. 7 : le faisceau THz généré est concentré sur un échantillon par une lentille TPX, et le signal transmis est acquis par un détecteur THz. Il est évident qu'un seul point de l'objet échantillon est détecté par le faisceau THz et qu'un seul pixel peut être image à la fois. Par conséquent, en fixant l'échantillon sur une platine de translation 2D motorisée, qui est contrôlé par un logiciel informatique, l'échantillon peut être déplacé dans deux directions et balayé, séquentiellement, pixel par pixel. Dans ce cas, l'imagerie de l'objet échantillon peut être réalisée après un processus de numérisation complet pour tous les pixels sur l'échantillon. Évidemment, la vitesse extrêmement lente est le principal inconvénient pour la technique d'imagerie par balayage raster. Le temps d'acquisition typique pour ce système est supérieur à plusieurs heures et cela le rend applicable uniquement dans l'imagerie d'objets statiques.



**Figure 7 Configuration typique d'un système d'imagerie THz à balayage tramé utilisant une translation 2D.**

Pour améliorer la vitesse d'imagerie, la détection par compression peut être appliquée au système d'imagerie THz [43-44]. La détection par compression est une technique de traitement du signal utilisée en optique pour acquérir des signaux d'image à une vitesse inférieure à la vitesse de Nyquist, ce qui améliore significativement la vitesse d'imagerie. Tout d'abord, les pixels de l'image sont échantillonnés par une séquence de matrices creuses appelées "projection linéaire non adaptative", pour comprimer et préserver les informations de l'image [45]. Ensuite, l'image brute peut être rapidement reconstruite à partir des projections en utilisant un algorithme d'optimisation

itinéraire [46]. La détection par compression est capable d'améliorer la vitesse d'imagerie dans le régime en temps réel. Plus précisément, l'imagerie en temps réel consiste à acquérir l'image d'un objet au moment exact de son apparition et lors de son évolution. Un moyen typique d'appliquer la détection par compression dans un système d'imagerie THz consiste à utiliser un modulateur de lumière spatial (SLM) [47]. Comme indiqué sur la Fig. 8, un faisceau THz collimaté est généré pour éclairer l'échantillon entier. Un SLM est employé et projette une séquence de masques spatiaux binaires optiques sur le plan d'échantillon. Notez que l'échantillon est attaché sur le dessus d'une plaquette de silicium, où le faisceau optique est projeté et où le faisceau THz est modulé par les porteurs de charge excités. Après l'échantillon, la séquence d'intensité dépendante du temps du faisceau THz est enregistrée par le détecteur THz, et l'image complète peut être reconstruite par des algorithmes de post-traitement. En utilisant la détection par compression, la vitesse d'imagerie est améliorée, car le module de translation lent n'est plus nécessaire. Cependant, elle est encore limitée par la fréquence de commutation des pixels du SLM et le temps de traitement de l'algorithme. Dans un travail récent [47], un système d'imagerie THz avec une vitesse d'acquisition de 6 images par seconde (fps) a été réalisé en utilisant un détecteur PCA à un seul pixel.



**Figure 8 Configuration typique d'un système d'imagerie THz basé sur la technologie de détection par compression.**

Une autre méthode possible pour réaliser une imagerie 2D en temps réel dans le domaine THz consiste à utiliser une caméra pour capturer une scène dynamique en temps réel. Cependant, aucune caméra THz commerciale avec une résolution et une efficacité suffisante n'est actuellement disponible sur le marché pour une imagerie en temps réel dans le domaine THz.

Une solution accessible consiste à réaliser une conversion-élevée de fréquence pour le faisceau THz en faisceau optique basé sur le mécanisme d'échantillonnage EO [49-51]. Par conséquent, une caméra CCD commerciale peut être utilisée pour réaliser une imagerie 2D en temps réel dans le domaine THz. Un schéma d'un système d'imagerie 2D en temps réel dans le domaine THz est représenté sur la Fig. 9. Le long du trajet du faisceau THz, une image THz de l'échantillon est envoyée par une paire de lentilles TPX sur un cristal ZnTe. Le long du trajet du faisceau optique, un laser femtoseconde pulsé est utilisé pour générer le faisceau de sonde optique. Pendant ce temps, l'état de polarisation du faisceau de sonde est modulé par le faisceau THz lorsqu'il traverse le cristal, et les informations spatiales du faisceau THz sont ensuite imagé dans le faisceau de la sonde. Enfin, l'image du faisceau de sonde modulé est capturée par une caméra CCD et l'image THz est instantanément récupérée. Notez que dans ce cas, la vitesse d'imagerie est limitée par la caméra elle-même en fonction de sa vitesse de commutation de l'obturateur et de la taille de son capteur. Par exemple, la fréquence d'images typique pour une caméra CCD commerciale peut atteindre ~ 60 fps (images par seconde) avec un temps d'exposition de 1 ms.

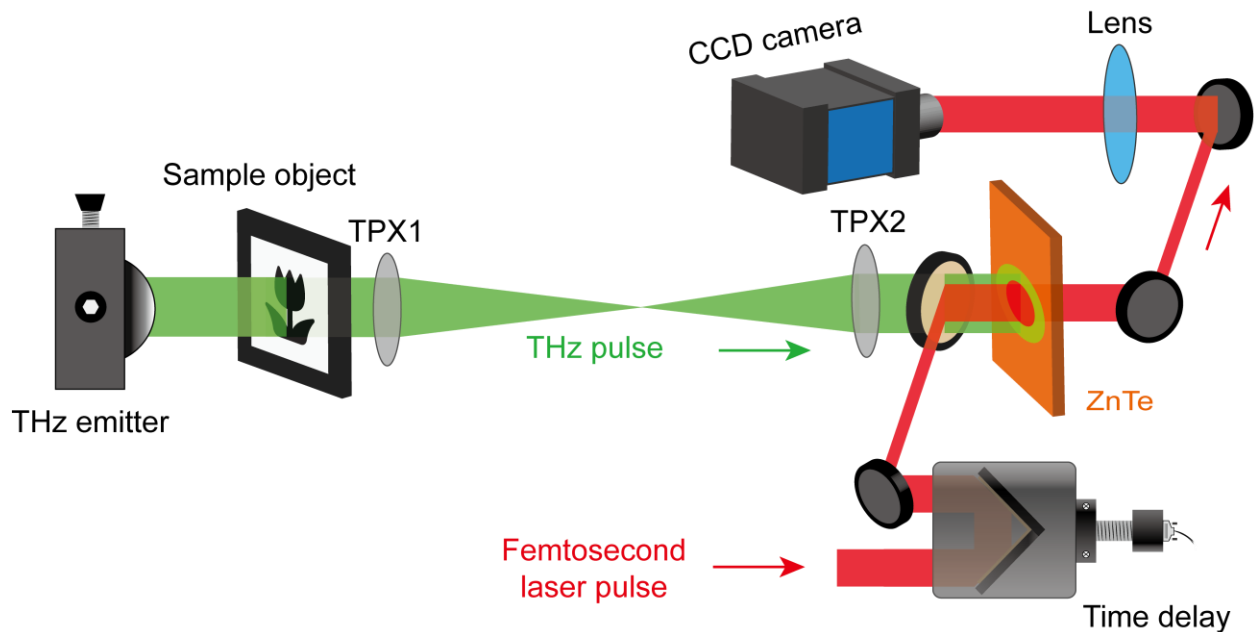


Figure 9 Vue schématique du système d'imagerie THz en temps réel.

### 3. Système d'imagerie térahertz bidimensionnelle ultrarapide à un seul coup

Face à la demande croissante d'étude d'événements dynamiques à des échelles de temps ultracourtes telles que le sous-nanoseconde [52], les chercheurs ont développé des techniques et algorithmes polyvalents pour surmonter les limitations mécaniques des caméras standards (taux d'acquisition) et améliorer davantage la vitesse d'imagerie [53-57]. Les nouvelles



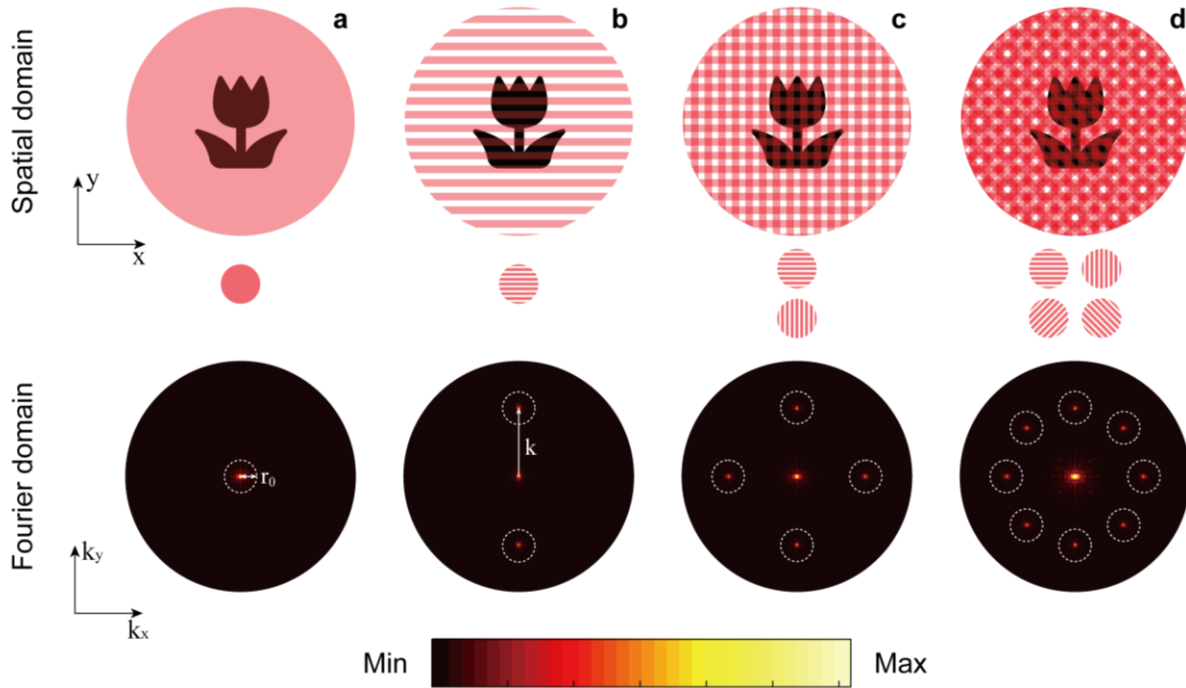
technologies d'imagerie ultrarapide avancées ouvrent la possibilité de comprendre les mécanismes de base en science fondamentale et dans les applications industrielles pratiques qui étaient techniquement inaccessibles auparavant.

En général, il y a deux étapes dans le développement de la technologie d'imagerie ultra rapide. Conventionnellement, une configuration pompe-sonde offre une solution simple pour enregistrer une scène dynamique ultra rapide via des mesures répétées. Cependant, cette technique ne peut pas être utilisée pour enregistrer des événements transitoires non répétables ou difficiles à reproduire, telles que les rogue waves [58-59], les explosions [60], la dynamique plasmonique [61], les réactions chimiques irréversibles [62] et l'action neuronale dans le domaine biomédical [63]. Par conséquent, l'imagerie ultra rapide à mesure unique a été développée comme une stratégie efficace dans les circonstances d'enregistrement d'événements non reproductibles. Cette technique prend en charge l'acquisition de plusieurs images dans un seul cycle d'exposition et augmente la fréquence d'images équivalente, qui est finalement au-delà de la vitesse maximale de commutation de l'obturateur de l'appareil photo. Au cours des dernières décennies, les chercheurs ont examiné une variété de méthodes de détection pour atteindre une imagerie ultra rapide à mesure unique, basées sur la division spatiale [64], le multiplexage de longueur d'onde [65], le multiplexage de fréquence spatiale [66], etc.

Cependant, les techniques d'imagerie ultra rapide à mesure unique n'ont été démontrées que dans la fenêtre de longueur d'onde optique conventionnelle, où les scénarios d'application sont fortement restreints aux objets optiquement transparents. En raison d'une petite profondeur de pénétration et de la profondeur de champ (DOF), l'observation de nombreux phénomènes ultra rapides importants, tels que la dynamique des porteurs dans les semi-conducteurs [67-69] et la commutation optique de l'anisotropie dans un métamatériau hybride [70], restent inaccessibles. Par conséquent, un système d'imagerie ultra rapide en un seul cliché alimenté par le rayonnement THz est très désiré pour enlever les obstacles actuels et étendre le champ des phénomènes ultra rapides jusqu'ici inaccessibles à des longueurs d'onde optiques. Malgré l'importance croissante, la recherche sur l'imagerie ultra rapide dans le régime THz reste à ses débuts en raison des défis posés par le développement de dispositifs d'imagerie fonctionnant à des fréquences THz.

Ici, nous proposons un nouveau système d'imagerie ultrarapide THz en un seul coup d'œil. Comme mentionné dans les chapitres précédents, les techniques de basculement du front d'onde de l'impulsion et d'échantillonnage EO sont utilisées dans notre système pour offrir une grande efficacité dans la génération et la détection de pulsations THz. De plus, le mécanisme de multiplexage en temps et en fréquence spatiale est considéré comme le principe fondamental qui

permet l'imagerie à des échelles de temps ultrarapides [71-73]. En utilisant le multiplexage du faisceau sonde, la technique d'échantillonnage EO et des algorithmes de calcul judicieux, un ensemble de trames ultrarapides, correspondant aux images à des instants de temps distincts, peuvent être acquises et reconstruites avec une résolution temporelle sous la picoseconde ( $<10^{-12}$  s).

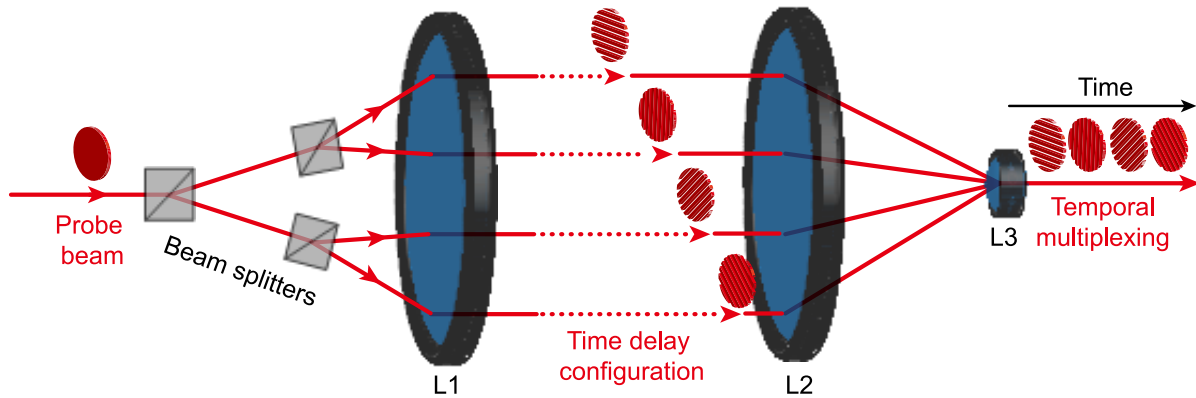


**Figure 10** Schéma conceptuel de la technique de multiplexage spatiofréquence. (a) Un objet (une fleur par exemple) est éclairé par une onde plane uniforme et le spectre de Fourier correspondant. (b) L'objet est éclairé par un motif de modulation d'intensité sinusoïdale. (c)-(d) D'autres motifs de modulation avec des orientations différents sont introduits.

Le mécanisme de multiplexage de fréquence spatiale (SFM) du faisceau sonde est illustré dans la Fig. 10. Alors que le faisceau original généré par le laser femtoseconde est considéré comme une onde plane uniforme dans le champ de vue considéré, le faisceau sonde après le SFM est composé de différents composants modulés, chacun d'entre eux ayant une fréquence spatiale distincte.

La figure 10a montre l'image acquise et le spectre de Fourier (spectre de puissance) d'un objet éclairé par un faisceau de sonde non modulé (onde plane).  $x$  et  $y$  sont des coordonnées spatiales.  $k_x$  et  $k_y$  sont des coordonnées dans l'espace de Fourier données par  $k_x = 2\pi/T_x$  et  $k_y = 2\pi/T_y$ , où  $T_x$  et  $T_y$  sont les périodes spatiales dans l'espace réel. Comme le montre la figure 10b, lorsque le faisceau de sonde est modulé par un motif sinusoïdal avec une fréquence spatiale

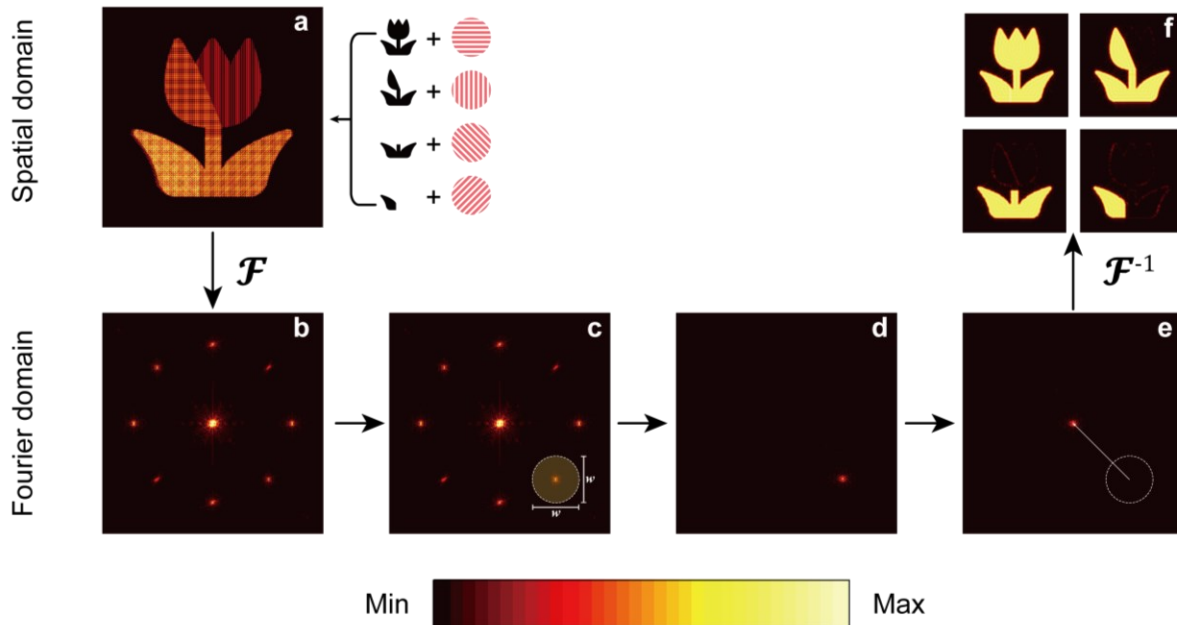
$\vec{k}$ , le spectre est représenté par deux bandes latérales aux emplacements de  $\pm\vec{k}$ . Les conditions du faisceau de la sonde sous des modulations multiples sont illustrées sur les figures 10c et d. Chaque motif de modulation possède une fréquence spatiale distincte avec des orientations différentes de sorte que le spectre original de l'objet est décalé dans différentes régions comme indiqué par les cercles blancs.



**Figure 11 Schéma conceptuel de la technique de multiplexage par répartition dans le temps.**

Voici une autre notion importante pour la multiplexation du faisceau sondeur, qui est la mise en œuvre de la multiplexation par division temporelle (TDM). En plus du processus SFM, le faisceau sondeur est également multiplexé dans le domaine temporel afin d'acquérir des images d'une scène dynamique à différents instants pour des échelles de temps ultracourtes. Comme illustré dans la Fig. 11, lors de l'imagerie de la scène dynamique, le faisceau pulsé sondeur est initialement divisé en quatre sous-impulsions. Ici, l'instant d'arrivée de chaque sous-impulsion est contrôlée par une ligne de délai optique individuellement, correspondant à un instant de temps spécifique. Après avoir été collecté par le système d'imagerie, les sous-impulsions sont finalement combinées ensemble. Étant donné qu'il n'y a pas de chevauchement entre les sous-impulsions ni dans l'espace de Fourier ni dans le domaine temporel, chaque bande latérale du spectre peut être extraite et reconstruite indépendamment en tant qu'une seule trame de la scène ultrarapide.

Le procédé de post-traitement se concentre sur l'extraction des informations spectrales de chaque trajet du faisceau de sonde multiplexé, puis sur la récupération des images bidimensionnelles du champ électrique THz. Basé sur un exemple de simulation, la Fig. 12 montre la procédure de reconstruction d'image étape par étape.



**Figure 12** Schéma de la procédure de post-traitement de l'image. (a)-(b) L'image brute multiplexée et le spectre de Fourier. (c) Un filtre de bande 2D est appliqué pour sélectionner une bande latérale. (d)-(e) La bande latérale unique est filtrée et décalée vers la région centrale du spectre. (f) Images récupérées en effectuant la transformée de Fourier inverse du spectre de (e) pour les quatre images.

Le multiplexage brut d'image et sa transformée de Fourier 2D sont montrés dans la figure 12a et b. Comme indiqué dans la figure 12c, un filtre passe-bande 2D avec un périmètre circulaire est appliqué (multiplié avec le spectre original) pour découper la bande latérale individuelle. La dimension du filtre est définie par le diamètre  $w$  de manière à éviter les interférences et les interactions de bande adjacente tout en préservant autant que possible les composants à haute fréquence.

Comme illustré dans les figures 12d-e, les composants de spectre découpés sont déplacés à nouveau à la position de fréquence zéro, représentant la démodulation du faisceau d'onde dans le domaine de fréquence spatiale. Enfin, en effectuant la transformée de Fourier inverse, l'information originale de l'image THz codée dans le faisceau d'onde multiplexé lors de la détection de l'échantillonnage EO est récupérée. Comme le montre l'ensemble de cadres dans la figure 12f, tous les quatre cadres peuvent être reconstruits en parallèle en effectuant les mêmes opérations. En conséquence, la scène dynamique de l'événement ultrarapide est

finalement révélée.

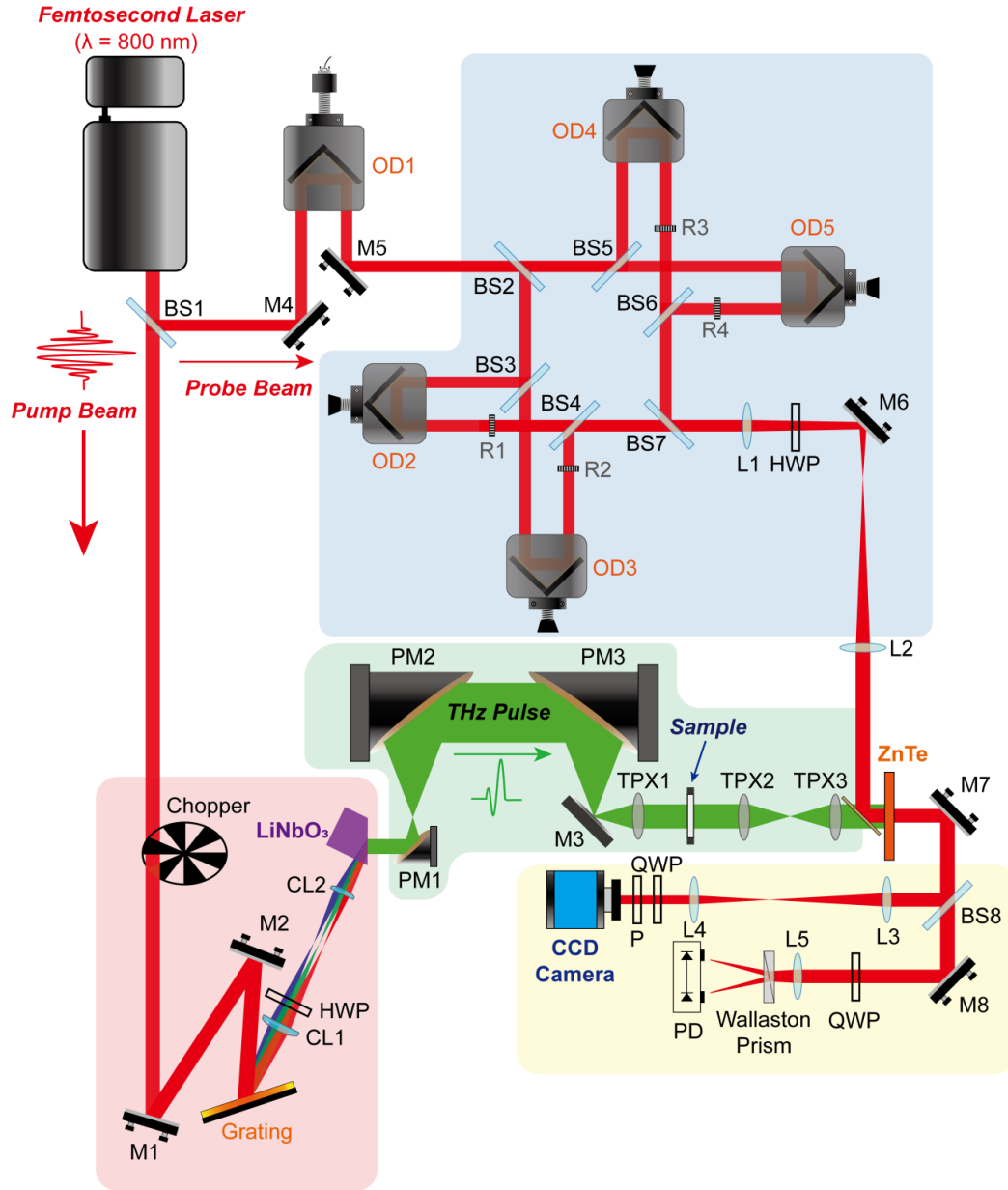


Figure 13 Configuration expérimentale du système d'imagerie THz 2D ultrarapide à un seul coup proposé.

La Fig. 13 illustre le montage schématique du système de traitement ultrarapide en 2D de l'imagerie THz à mesure unique. Le système est alimenté par un laser femtoseconde en Ti : Saphir de 800 nm, qui produit des impulsions optiques ultracourtes avec une énergie d'impulsion de 2 mJ et une durée d'impulsion de 150 fs fonctionnant à une fréquence de répétition de 1 kHz. Comme indiqué en rouge sur la Fig. 13, la génération de THz a été réalisée en utilisant le mécanisme de l'OR dans un cristal LiNbO<sub>3</sub>. Parallèlement, un schéma d'inclinaison de front

d'impulsion a été établi. La condition de mise en phase est atteinte à un angle de  $63^\circ$ . La section du système marquée en vert sur la Figure 13 concerne la mise en place des impulsions THz. Un ensemble de miroirs paraboliques décentrés (PMs) remodèlent le faisceau THz en un faisceau collimaté d'un diamètre d'environ 2 cm, ce qui permet de couvrir une plus grande plage de vue sur le plan d'échantillon pour une amélioration de l'imagerie. Après avoir traversé l'échantillon, le faisceau THz portant les informations spatiales 2D est collecté et projeté sur le cristal de détection ZnTe par une paire de lentilles TPX.

La réalisation expérimentale de la technique de multiplexage du faisceau sonde est montrée par la région marquée en bleu. Le faisceau sonde est incorporé dans une configuration de séparateur de faisceaux pour réaliser le multiplexage. Tout d'abord, le faisceau sonde principal est divisé en quatre chemins par un ensemble de séparateurs de faisceaux (BS) sous la forme de quatre sous-impulsions. Chaque sous-chemin a une structure identique comprenant une ligne de délai optique (OD) pour ajuster sa longueur de trajet optique et contrôler l'arrivée (pour le multiplexage dans le domaine temporel). En ce qui concerne la modulation dans le domaine de Fourier, un réseau de Ronchi (R) est utilisé pour imprimer le motif de réseau dans chaque sous-impulsion (pour le multiplexage dans le domaine spatiaux-fréquentiel). Guidé par les séparateurs de faisceaux, les quatre sous-impulsions sont finalement redirigées vers le même chemin et recombinaées en un faisceau sonde multiplexé.

Les modules d'acquisition d'image et d'enregistrement du signal sont représentés par la région jaune. Après avoir passé à travers les lentilles d'imagerie, le faisceau multiplexé de la sonde est incident sur le cristal ZnTe et se propage parallèlement au faisceau THz qui transporte les informations de la scène ultrarapide. L'état de polarisation du faisceau sonde est modulé par le champ électrique THz suivant l'échantillonnage EO. Selon les temps d'arrivée des sous-impulsions, les informations spatiales du faisceau THz aux instants temporels correspondants sont codées dans les sous-impulsions. Capturée par un appareil photo CCD à l'aide de la mesure unique, l'image brute est la superposition de quatre sous-impulsions qui ont été enregistrées pendant un cycle d'exposition unique de l'appareil photo, et alors les quatre trames d'images ultrarapides peuvent être reconstruites.

#### **4. Application du système d'imagerie**

Pour démontrer la capacité d'imagerie de notre système, nous avons imagé la propagation d'une impulsion THz bipolaire dans une feuille fine de Téflon avec un trou d'épingle. Un montage expérimental détaillé des principaux composants près de l'objet d'échantillon est montré dans la

Fig. 14. Avec une forme bipolaire de la forme d'onde de l'impulsion, le faisceau THz collimé se propage à travers l'objet d'échantillon et forme une image THz 2D. La fraction de l'impulsion THz passant à travers le trou d'épingle arrive à la cristallographie EO plus rapidement que la zone restante de quelques centaines de femtosecondes en raison de l'indice de réfraction plus petit dans le vide. Ainsi, l'événement ultrarapide de cet échantillon est produit en raison des différentes vitesses de propagation des impulsions THz dans les matériaux de Téflon et les zones de trou d'épingle, respectivement. En particulier, cet événement dynamique est capturé par le faisceau de sonde multiplexé en quatre cadres consécutifs dans l'échantillonnage EO pour révéler l'évolution temporelle du faisceau THz.

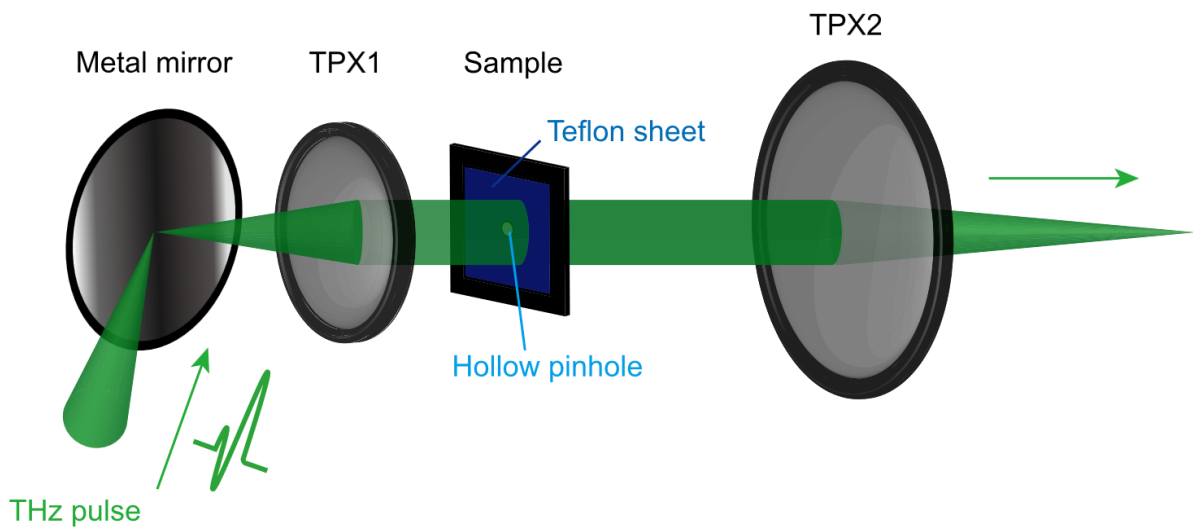
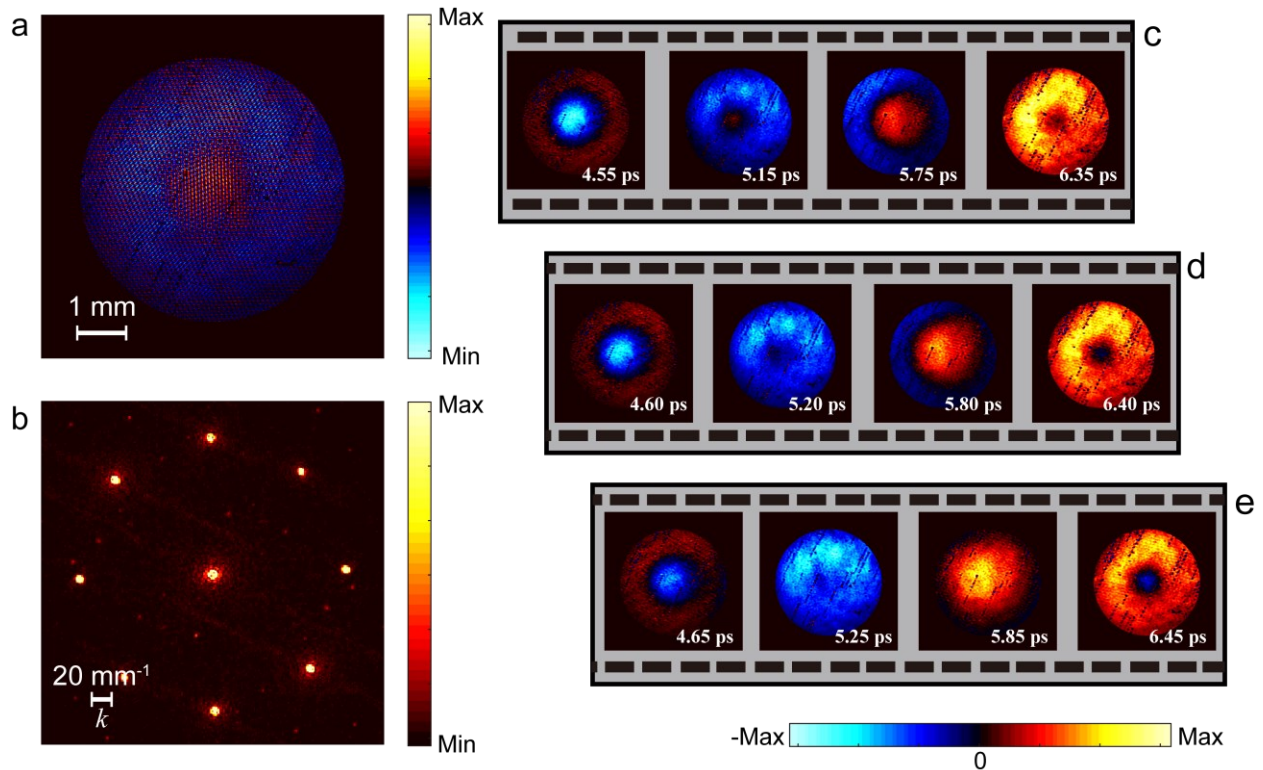


Figure 14 Montage expérimental pour l'imagerie ultrarapide d'une impulsion THz bipolaire se propageant à travers un échantillon de feuille de téflon.



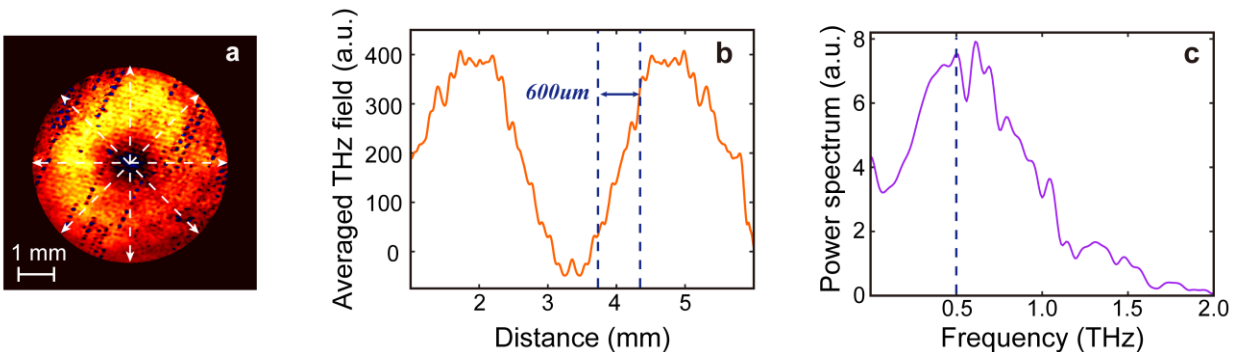
**Figure 15 Résultats expérimentaux et post-traitement des images de la scène ultrarapide. (a)-(b) Image brute multiplexée capturée par la caméra CCD et sa transformée de Fourier. (d) Un ensemble de 4 images ultrarapides récupérées à partir de l'image multiplexée de (a). (c) Images ultrarapides récupérées à partir du faisceau de la sonde qui est arrivé 50fs plus tôt que dans le cas de (d). (e) Images ultrarapides récupérées à partir du faisceau de la sonde qui est arrivé 50fs plus tard que le cas en (d).**

Les Fig. 15a et b montrent l'image brute capturée par l'appareil photo et le spectre de puissance correspondant. Comme discuté précédemment, les images multiplexées pour différents sous-chemins sont superposées dans l'espace réel après avoir été acquises par l'appareil photo, mais leurs composants spatiaux-fréquentiels sont distribués de manière clairsemée dans le domaine de Fourier. De plus, aucune interférence significative entre les cadres n'est observée en raison des intervalles de cadre suffisamment longs. Par conséquent, suivi des algorithmes de post-traitement, les quatre cadres de l'événement ultrarapide peuvent être bien séparés et reconstruits successivement. La Fig. 15d montre les images 2D récupérées de l'évolution du faisceau THz dans les quatre emplacements temporels respectifs. Conformément à nos attentes, le faisceau THz se propageant à travers la zone de trou d'épingle apparaît en premier avant la feuille de Téflon en raison de l'indice de réfraction plus petit dans l'air par rapport au matériau de Téflon, et la polarité négative du faisceau THz arrive également plus tôt que le faisceau THz présentant une polarité positive. Les deux derniers cadres affichent les faisceaux THz positifs qui arrivent plus tard. De plus, des images THz à différents emplacements temporels de l'événement ultrarapide peuvent être capturées en ajustant la ligne de retard optique principale (OD1). Les Fig. 15c et e



montrent deux autres groupes d'images THz obtenus en introduisant un délai temporel supplémentaire de  $\pm 50$  fs pour le faisceau de sonde multiplexé. Notez que les taches sombres apparaissant dans les images récupérées sont des défauts de vide du cristal ZnTe d'origine d'un processus de fabrication imparfait qui est aléatoire et ne peut pas être évité.

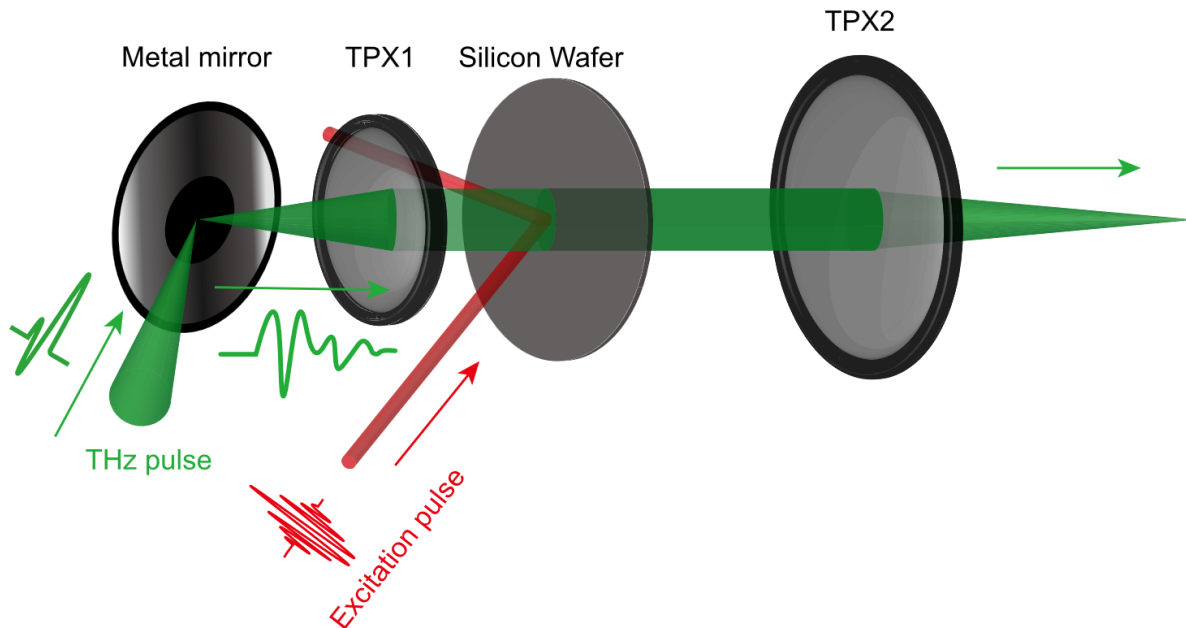
Afin de caractériser la qualité d'imagerie de cette configuration, la résolution spatiale de l'image reconstruite est évaluée numériquement. Comme indiqué dans la Fig. 16a, la quatrième image dans la Fig. 15d à 6,40 ps est analysée en exemple. Ici, la résolution spatiale est mesurée par la largeur de la réponse en bordure de l'image, qui est définie par la longueur entre 90% et 10% de la valeur maximale. Comme indiqué par les flèches de la Fig. 16a, la Fig. 16b montre la valeur moyenne du champ électrique THz sur ces huit lignes pour compenser l'éclairage non uniforme du faisceau sonde. La résolution spatiale moyenne est estimée à environ 600  $\mu\text{m}$ , correspondant à la fréquence de  $\sim 0.5$  THz. La Fig 16c montre le spectre de Fourier d'une impulsion THz typique générée par le cristal LiNbO<sub>3</sub> dans notre expérience. La résolution spatiale calculée dans l'imagerie THz est due à la limite de longueur d'onde du système d'imagerie THz en champ lointain, où la résolution spatiale peut être améliorée à l'avenir en utilisant des techniques d'imagerie en champ proche en tant que solution potentielle.



**Figure 16** Caractérisation de la résolution spatiale des images ultrarapides récupérées. (a) La quatrième trame de la Fig 15d (6.40ps) est analysée à titre d'exemple. (b) La moyenne des champs électriques 1D THz distribués sur les lignes dans différentes directions mises en évidence dans (a). La résolution spatiale est caractérisée par la mesure de la largeur de la réponse au bord. La résolution estimée est de  $\sim 600 \mu\text{m}$ , correspondant à la fréquence de 0.5 THz. (c) Le spectre de l'impulsion THz générée par LiNbO<sub>3</sub>.

Pour exploiter davantage la capacité d'imagerie de notre système d'imagerie THz ultrarapide pour les matériaux avancés, nous avons caractérisé le phénomène de génération de porteurs photo-excités dans une plaquette de silicium. Lorsque la plaquette de silicium est éclairée par le faisceau laser, la conductivité est temporairement accrue et le semi-conducteur se comporte comme une structure "métallique" [78]. Dans ce cas, le pulse THz est réfléchi et empêché de passer à travers la plaquette de silicium, jusqu'à ce que l'excitation optique et le processus subséquent de relaxation des porteurs photoconducteurs se terminent. Dans notre système d'imagerie, des

mesures dans les domaines temporel et spatial sont effectuées pour caractériser cet événement ultrarapide.

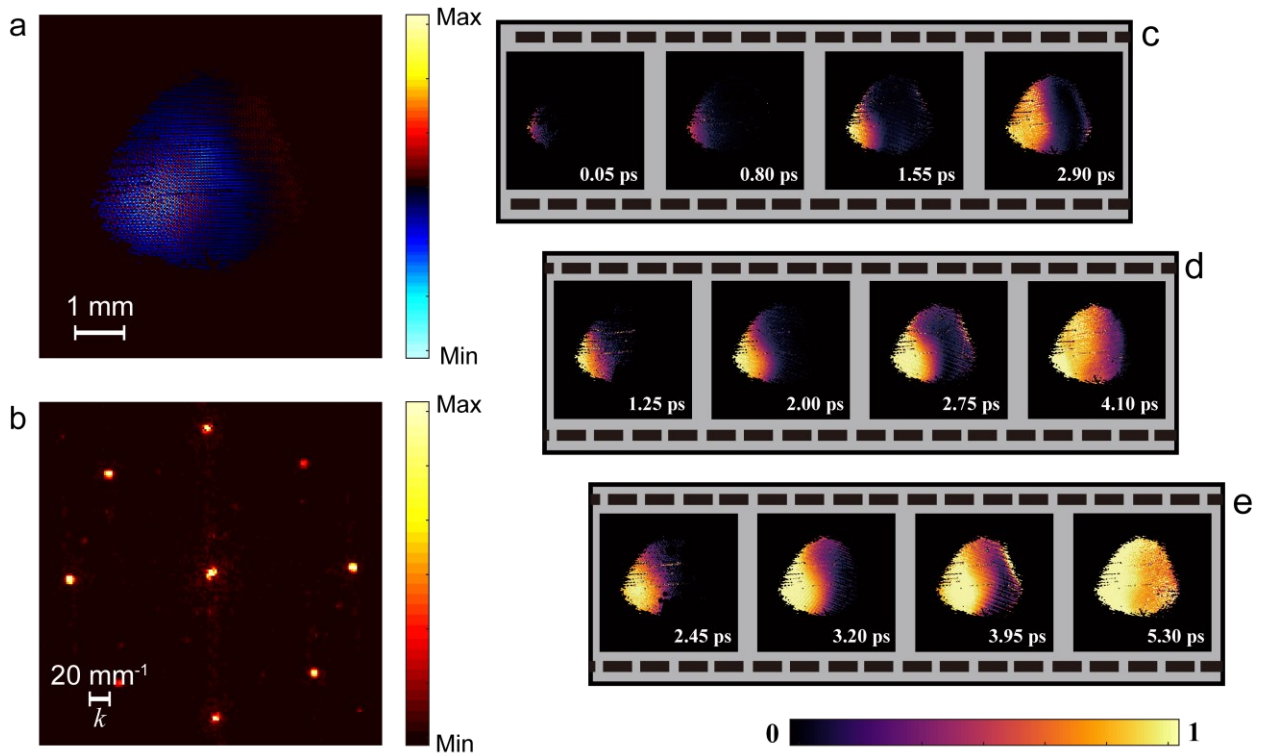


**Figure 17 Montage expérimental pour l'imagerie ultrarapide de la génération de porteurs photo-excités dans la tranche de silicium.**

Comme illustré dans la Fig. 17, un faisceau lumineux incident de manière oblique (50 mW) éclaire le centre de la plaquette de silicium (500 mW) avec un angle d'incidence de  $30^\circ$ . La ligne de faisceau optique de l'impulsion d'excitation est obtenue en divisant la ligne principale de la pompe, et le temps d'arrivée de l'impulsion d'excitation est contrôlé par un autre dispositif de délai de temps. Nous surveillons d'abord le changement de la transmission THz sur l'axe temporel de l'impulsion d'excitation pour caractériser la dynamique temporelle de la diffusion des porteurs de photocourant. Plus spécifiquement, nous fixons les temps d'arrivée à la fois de l'impulsion THz et de l'impulsion de la sonde, tout en modifiant uniquement l'impulsion d'excitation optique en déplaçant le dispositif de délai de temps sur son parcours. En conséquence de l'incidence oblique de la sonde, des événements dynamiques présentant une tendance de 5 ps de long sont observés.

Nous avons capturé et reconstruit plusieurs ensembles d'images à trois moments représentatifs démarrant à partir de 0.05 ps, 1.25 ps et 2.45 ps après l'arrivée première de l'impulsion d'excitation, comme affiché dans les figures 18c-e respectivement. L'image multiplexée acquise par l'appareil photo et son spectre de Fourier du deuxième ensemble de "cadres" sont montrés dans les figures 18a-b, par exemple. Dans le processus de post-traitement, le champ d'intensité

tracé ici est l'image 2D du rapport de modulation, calculé par la division du cadre spécifique récupéré et du cadre de référence. Le cadre de référence est pris à environ 6 ps après l'excitation des photoconducteurs lorsque l'état stable est atteint. Comme illustré par les ensembles de cadres reconstitués, les photoconducteurs sont progressivement excités de la gauche à la droite dans la zone éclairée, et la tendance globale de la scène dynamique dure environ 5,30 ps.



**Figure 18 Résultats expérimentaux et post-traitement d'image de la génération de porteurs photo-excités (a) Image brute multiplexée capturée par la caméra CCD. (b) La transformée de Fourier de l'image multiplexée de (a). (d) Quatre images ultrarapides récupérées à partir de l'image multiplexée de (a). (c) Images récupérées lorsque l'impulsion d'excitation arrive 1.20ps plus tard que dans le cas de (d). (e) Images récupérées lorsque l'impulsion d'excitation arrive 1.20ps plus tôt que dans le cas de (d).**

En conclusion, par l'analyse du signal dans le domaine temporel et d'imagerie ultrarapide en 2D, le système d'imagerie THz ultrarapide à mesure unique proposé fournit une compréhension complète des phénomènes d'excitation des porteurs de charges. Pendant ce temps, des matériaux semiconducteurs tels que le silicium ne sont pas transparents à des longueurs d'onde plus courtes que 1,1  $\mu\text{m}$  (correspondant à la bande d'énergie 1,12 eV pour le silicium), de sorte que la visualisation de ces effets est inatteignable dans les longueurs d'onde optiques ne peut être effectuée que dans les modalités d'imagerie THz.





