UNIVERSITÉ SAVOIE MONT BLANC

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ SAVOIE MONT BLANC

Spécialité : **Optique et Radiofréquences**

Arrêtée ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Bastien Muller

Thèse dirigée par **Jean-Louis Coutaz**
et codirigée par **Émilie Hérault et Maxime Bernier**

préparée au sein du **laboratoire IMEP-LAHC**
dans **l'École Doctorale EEATS**

Génération de rayonnements THz par plasma photo-généré dans les gaz et à la surface de métaux

Thèse soutenue publiquement le **15 Juillet 2021**,
devant le jury composé de :

Mme Angela Vella
Professeur, GPM, Université de Rouen, Présidente

M. Emmanuel Abraham
Professeur, LOMA, Université de Bordeaux, Rapporteur

M. Francis Hindle
Professeur, LPCA, Université du Littoral Côte d'Opale, Rapporteur

M. Ronan Le Dantec
Professeur, SYMME, Université Savoie Mont Blanc, Examinateur

M. Jean-Louis Coutaz
Professeur, IMEP-LAHC, Université Savoie Mont Blanc, Directeur de thèse

Mme Émilie Hérault

Maître de conférences, IMEP-LAHC, Université Savoie Mont Blanc, Co-Encadrante de thèse

M. Maxime Bernier
Maître de conférences, IMEP-LAHC, Université Savoie Mont Blanc, Co-Encadrant de thèse

"C’est très simple de faire compliqué, mais c’est très compliqué de faire simple"
Mich’Dej’

Remerciements

En un mot MERCI ; et pour ceux qui veulent en plusieurs mots :

Cette thèse a été menée au sein du laboratoire IMEP-LaHC, institut de microélectronique, électromagnétisme et photonique, laboratoire d'hyperfréquences et de caractérisation, sur le site du Bourget-du-Lac. Dans un premier temps, je voudrais remercier l'ensemble des membres de mon jury de thèse, MM. Emmanuel Abraham et Francis Hindle, pour avoir rapporté ce manuscrit, M. Ronan Le Dantec pour l'avoir examiné et enfin Mme Angela Vella pour avoir présidé le jury. Merci à eux d'avoir accepté d'être dans mon jury et d'avoir jugé ce travail de thèse avec grand intérêt.

Je remercie également mon trio d'encadrement : Jean-Louis Coutaz, Emilie Hérault et Maxime Bernier pour leurs disponibilités malgré des emplois du temps parfois très chargés en enseignement. Merci pour leurs conseils, leurs expertises et leurs passions dans le développement de prototype de source THz.

Je tiens à remercier aussi tout le personnel du laboratoire de leurs conseils, discussions, expertises : Gwenaël, Jean-François, Fréderic, Magalie, Cédric, Thierry, Florent ... Une thèse sans le partage de moments de travail avec d'autres doctorants ou post-docs serait bien différente, merci à vous : Federico, Gizem, Cyril, Ugur, Florent, Kadim, Lauranne, Farah, Dongwei ...

Merci à mes amis de Chambéry, connus la plupart par l'association MSN73 créée au début de ma thèse par un certain didier des bois, quel hasard (!) et dévoilée par Lauranne (!). Quel bonheur de vous connaitre maintenant ! Mric, Jérem, Fred, Eme, Romrom, Nono, Dédé, Pau, Toto, Cé, Ju, Marion, Solène, Alex, Auré, Lulu, Alain, Xavier, Ludo, Violaine, Vivien, Séb, Christophe, FX... Que de bons moments passé dans la nature !

Merci à mes amis alsaciens : JC, Pierre, Mathieu, Julien, Kevin, Arthur. J'espère qu'on passera encore de bons et grands moments ensemble !

Merci à mes parents de m'avoir aidé à réaliser ces études et de m'avoir fait confiance. Merci ma sœur pour ce que tu es, c'est déjà beaucoup ahah ! Merci mes grands-parents pour les bons diners improvisés le soir ! Vous êtes supers ! Merci la famille : tontons, tatas, cousines, cousins ...

Pour finir, j'aimerais remercier celle avec qui je partage ma vie maintenant, pour son sourire, son intelligence, son amour de l'effort et de la nature : gros schmoutz !

Table des matières

Remerciements i

Table des matières iii

Introduction générale **1**

1 Description des phénomènes physiques de la génération d'un rayonnement THz impulsionnel par claquage dans l'air et de sa détection électro-optique **12**

1.1 Généralités 13

1.2 Ionisation photo-induite d'un gaz 14

1.2.1 Principe de la filamentation 16

1.3 Génération THz par un plasma composé uniquement de l'impulsion fondamentale 17

1.3.1 Force pondéromotrice 17

1.3.2 Rayonnement par un faisceau d'électrons accéléré par laser 19

1.4 Génération THz en présence d'une polarisation électrique 20

1.5 Génération THz dans les filaments plasma photo-générés par les fréquences fondamentale et du second harmonique d'un faisceau laser 21

1.5.1 Génération THz par un redressement à quatre ondes 21

1.5.2 Asymétrie optique et photo-courant du plasma 22

1.6 Principe de détection d'un rayonnement THz 24

1.6.1 Détecteurs incohérents 24

1.6.2 Détecteurs cohérents 24

1.6.3 Détection électro-optique 25

1.6.4 Principe de détection d'un rayonnement THz par un plasma 30

1.7 Conclusion 32

2 Conception d'un banc optique pour générer un rayonnement THz via un filament plasma bicolore **34**

2.1 Description et fonctionnement du banc optique 35

2.2 Optimisations du banc 36

2.2.1 Détection des premiers signaux THz par claquage dans l'air à l'IMEP-LAHC 36

2.2.2 Etude du bruit de l'expérience 37

2.2.3 Etude de l'influence de l'optique de focalisation sur la génération THz . . 40

2.2.4 Etude de la génération du second harmonique 42

2.2.5 Étude du champ THz rayonné en fonction de la puissance optique 43

2.3 Profil transverse du rayonnement THz 46

2.4 Conclusion 47

3 Etude de l'interaction entre un plasma photo-induit et un plasma externe **51**

3.1 Contexte 52

3.2 Analyse polarimétrique du rayonnement THz 53

3.2.1 Analyse théorique 53

3.2.2 Mise en place expérimentale 56

3.2.3 Utilisation de la détection . . . 57
3.3 Banc expérimental et protocole de mesure . . . 57
3.3.1 Résultats et analyse . . . 59
3.4 Modélisation . . . 64
3.4.1 Description du modèle . . . 64
3.4.2 Étude de l'efficacité de génération THz . . . 69
3.4.3 Etude de l'orientation de la polarisation THz . . . 78
3.4.4 Résultats et interprétations . . . 79
3.5 Conclusion . . . 82

4 Génération d'un rayonnement térahertz sur de l'or **84**
4.1 Effets non linéaires à la surface du métal . . . 85
4.2 Modélisation de la génération d'un rayonnement THz à la surface de métaux . . . 85
4.3 Etat de l'art de la génération THz à la surface de métaux : redressement optique . 89
4.4 Démonstration de la génération THz à la surface d'or par non linéarité d'ordre 3 . 91
4.4.1 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 2 . . . 93
4.4.2 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 3 . . . 94
4.4.3 Expérience réalisée avec la détection EO sensible en polarisation . . . 99
4.5 Conclusion . . . 100

Conclusion générale **102**

Bibliographie **I**

Table des figures **XII**

Liste des tableaux **XVII**

Introduction générale

Généralités sur le rayonnement THz

Les ondes électromagnétiques térahertz (THz) se situent entre le domaine des micro-ondes et celui de l'infrarouge lointain, couvrant ainsi les fréquences de 100 GHz à 10 THz (figure 1). Les photons du domaine THz correspondant à des longueurs d'onde entre 3 mm et 30 microns possèdent une énergie comprise entre 0,4 et 40 meV. Ces valeurs caractéristiques sont résumées dans le tableau 1.

Fréquence :	$0,1\ THz < \nu < 10\ THz$	$1\ THz$
Période :	$0,1\ ps < T < 10\ ps$	$1\ ps$
Nombre d'onde :	$3\ cm^{-1} < k < 300\ cm^{-1}$	$33\ cm^{-1}$
Longueur d'onde :	$30\ \mu m < \lambda < 3\ mm$	$300\ \mu m$
Énergie photonique :	$0,4\ meV < W < 40\ meV$	$4\ meV$

TABLEAU 1 – Valeurs caractéristiques du domaine térahertz.

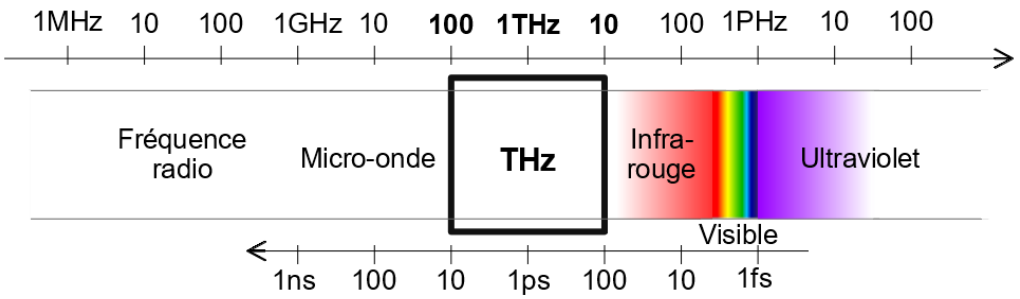


FIGURE 1 – Spectre électromagnétique. Le rayonnement THz se situe dans le spectre électro-magnétique entre les ondes dites "électroniques" et celles dites "optiques".

Comparées aux ondes micro-ondes et aux ondes optiques ou infrarouges, ces ondes ont été peu étudiées. En effet, alors qu'il existe de très nombreuses sources et détecteurs pour ces deux gammes de fréquences, le domaine térahertz souffre de difficultés à élaborer des sources et des détecteurs THz à la fois compacts, efficaces et puissants. C'est pourquoi cette région est appelée *THz gap* ou fossé THz (figure 2). [1]

Grâce aux avancées technologiques de ces dernières décennies, le fossé commence à se remplir : de nouveaux schémas de génération et de détection d'ondes THz se sont développés notamment grâce aux performances des lasers femtosecondes [2, 3].

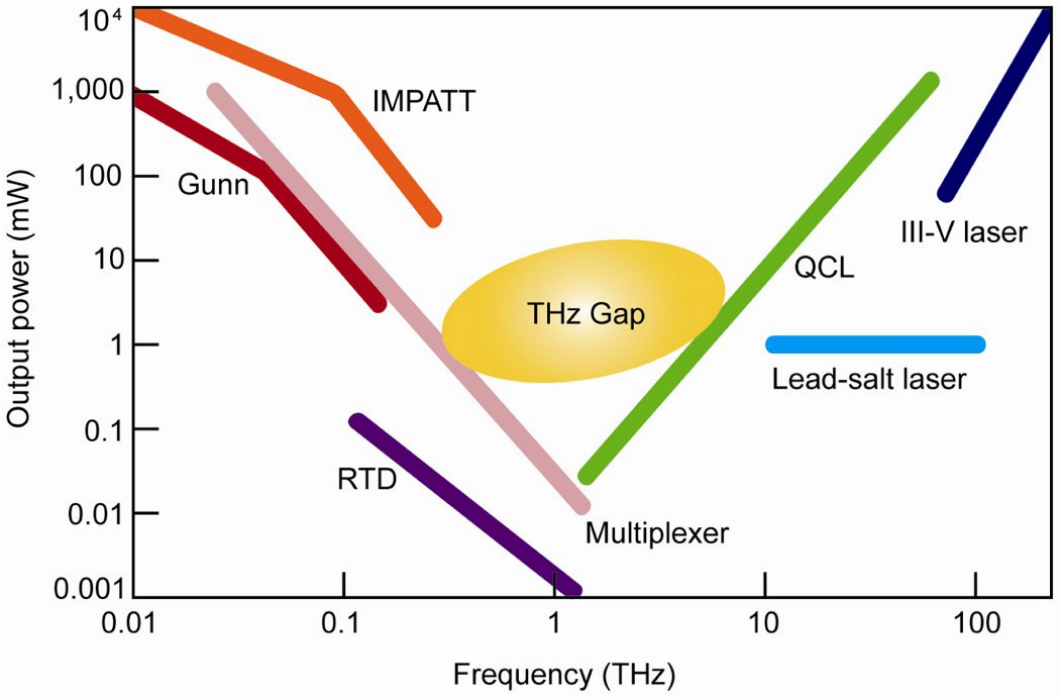


FIGURE 2 – Sources de rayonnement électromagnétique autour du fossé THz selon leur puissance. RTD : *Resonant tunnel diode*, diode tunnel résonnante. IMPATT : *Impactionization avalanche transit-time diode*, Diode de temps de transit d'avalanche à ionisation d'impact. Gunn : Gunn laser. QCL : *Quantum-cascade laser*, laser cascade quantique. III–V : éléments des groupes III et V dans le tableau périodique des éléments de Mendeleïev. [1].

Bien que le rayonnement THz soit étudié depuis la fin des années 70, leur intérêt est resté pendant longtemps confiné aux observations d'astrophysique de corps froid à des températures de quelques Kelvins, telles que la poussière froide du milieu interstellaire dans la voie lactée (10 à 20 K) et les galaxies d'étoiles [4, 5]. Les ondes THz ont pourtant de nombreuses propriétés remarquables :

— **elles sont peu énergétiques :** avec une énergie de l'ordre du meV, les photons THz sont mille fois moins énergétiques que les photons à 800 nm. À cette énergie, le niveau d'excitation de la matière se fait principalement au niveau des rotations et vibrations des molécules. Il est presque impossible d'ioniser de la matière avec une source THz, même à l'état solide. Ainsi, le rayonnement THz est sans danger pour les échantillons à étudier ou les personnes qui utilisent ce rayonnement. Cela constitue un avantage certain par rapport aux rayons X. Grâce à son grand taux d'absorption par l'eau, le rayonnement THz ne peut pas pénétrer le corps humain contrairement aux ondes micro-ondes. C'est pourquoi, même si un fort rayonnement THz est dirigé vers une personne, celui-ci sera arrêté au niveau de la peau, prévenant tout dommage en profondeur.

— **les matériaux non polaires et non conducteurs sont globalement transparents aux ondes THz :** elles peuvent traverser la plupart des matériaux diélectriques comme les vêtements, le papier, le bois, le plastique, la céramique, etc.

— **elles sont absorbées par l'eau :** le rayonnement THz pouvant difficilement traverser les liquides, l'atmosphère contenant de la vapeur d'eau est un bon absorbeur d'ondes THz.

— **elles ont une longueur d'onde plus grande que les ondes infrarouges ou visibles :** le rayonnement THz est diffusé par des motifs plus grands que les ondes infrarouges ou du visible. Elles sont donc moins sensibles aux rugosités de surface.

— **elles ont une longueur d'onde plus petite que les micro-ondes :** la longueur d'onde THz se situant entre la dizaine de μm et le mm, les images THz d'échantillons macroscopiques donnent donc des résultats plus précis et détaillés que les images dans le domaine micro-

onde ($\lambda_{micro-onde} > 3\ mm$).

— **de nombreuses molécules ont une empreinte moléculaire dans le domaine térahertz :** en effet, les ondes THz peuvent exciter des niveaux de rotation de certaines molécules, en particulier des molécules polaires, ou exciter des liaisons de faible énergie intermoléculaires. La spectroscopie THz peut ainsi permettre d'identifier ou de discriminer des molécules chimiquement ou structurellement proches.

Il a fallu attendre de récentes innovations technologiques en photonique, électronique et nanotechnologie et l'application de techniques innovantes telles que la spectroscopie résolue en temps dans le domaine THz (THZ-TDS, pour THz-Time Domain Spectroscopy), pour enfin ouvrir la porte à un nombre incroyable d'applications dans de nombreux domaines [2, 6–9]. La spectroscopie THz convient parfaitement à l'identification de molécules biologiques ou inorganiques [10], aux études dans les milieux condensés [11, 12], et au diagnostic des plasmas [13]. Des applications du rayonnement THz ont été démontrées dans des domaines tels que la biologie et la médecine [14–17], la sécurité [18], les télécommunications [19] [20] et les sciences de la terre [21]. Les ondes THz fournissent un outil de diagnostic utile pour le contrôle de la qualité [22], la restauration d'objets du patrimoine culturel [23, 24], le contrôle des processus de l'industrie alimentaire [25], etc.

Le facteur limitant de la technologie de spectroscopie THz large bande dans l'air ambiant pour des applications telles que les télécommunications, la sécurité et la surveillance de l'environnement, est l'absorption du rayonnement THz par l'humidité ambiante élevée. Celle-ci limite les applications à des distances généralement inférieures à 10 m [26]. Bien qu'il existe déjà des moyens de produire un rayonnement THz intense (GV/m) et large bande (>20 THz) pour dominer cette absorption sur de plus longues distances, sa production reste encore un défi technologique.

Pour résumer, les ondes THz sont peu énergétiques (de l'ordre du meV) et plus ou moins pénétrantes selon le matériau sondé. Le rayonnement THz peut traverser les matériaux non-polaires comme les vêtements, le papier, les plastiques, le bois ou encore la céramique sans les détruire tout en perturbant faiblement les résonances cristallines ou moléculaires, comme la figure 3 le décrit.

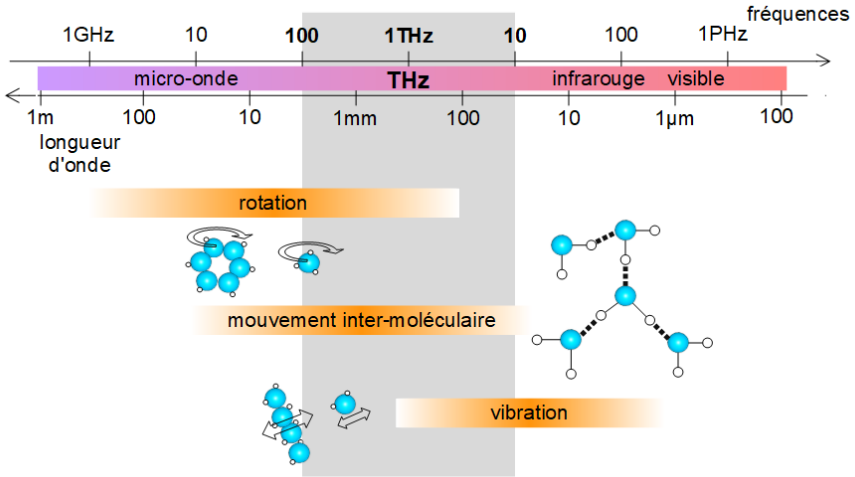


FIGURE 3 – Spectre THz et son influence sur les mouvements moléculaires [27].

Aperçu des émetteurs THz

Il est possible de concevoir des sources THz, aussi bien continues qu'impulsionnelles, grâce à différentes techniques de génération [28]. Bien que mentionnées ci-dessous, les méthodes de génération continue ne seront pas détaillées, cette thèse se concentrant sur les sources THz impulsionnelles.

Techniques d'émission THz continues

Les méthodes d'émission THz continues peuvent être réparties en deux groupes :

— battement de fréquence de 2 lasers continus ou quasi continus dans une antenne ou un cristal :

  * conversion vers les basses fréquences (*frequency downconversion*) en utilisant par exemple un ou deux lasers continus à gaz CO_2 dont les fréquences sont mélangées dans une antenne (*open antenna structure*) [29]
  * génération dans un cristal non linéaire par différence de fréquence (DFG) à l'aide de deux faisceaux séparés par des modes d'utilisation du laser par exemple [30]

— laser THz :

  * lasers à cascade quantique (QCL) reposant sur les puits quantiques couplés émettant un rayonnement THz de haute puissance (dizaine de mW) mais à des fréquences discrètes [31]
  * laser THz à pompage optique pouvant fonctionner à partir des transitions des rotations moléculaires de gaz comme CH_3OH, CH_3OD, CH_3F, CF_4, et d'autres [32, 33]
  * laser THz p-Germanium basé sur les transitions de bande d'intervalle de trou dans le semi-conducteur germanium. C'est la source la plus puissante de rayonnement THz (jusqu'à 10 W) [34]

Toutes ces techniques sont classées selon la bande passante du champ THz rayonné et sa puissance sur le graphique de la figure 4. Y figurent également des techniques de sources impulsionnelles qui seront décrites dans le paragraphe suivant.

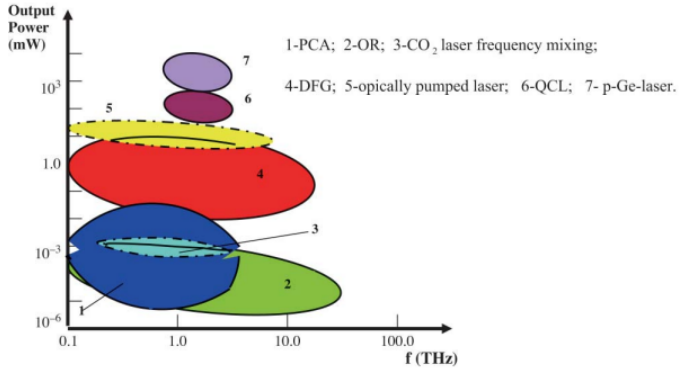


FIGURE 4 – Différentes sources de rayonnement THz classées selon la bande passante du rayonnement THz émis et leur puissance [35]. PCA : antenne photo-conductrice, OR : redressement optique, CO_2 *laser frequency mixing* : mélange de fréquences de laser CO_2, DFG : différence de fréquence, *optically pumped laser* : laser à pompage optique, QCL : laser à cascade quantique, p-Ge-laser : laser P-Germanium

On peut rajouter une source continue basée sur le principe de multiplication de fréquence. Ce processus est réalisé à la suite d'ondes micro-onde - produites par une diode électronique (par exemple une diode Schottky) - montées sur des guides d'ondes en cascade permettant de produire des harmoniques élevées pour atteindre la gamme de fréquence THz [36, 37].

Techniques d'émission THz impulsionnelles

Ces techniques d'émission sont basées sur des lasers à impulsions ultracourtes dont la durée est de quelques dizaines à quelques centaines de femtosecondes (10^{-15} seconde). Dans cette partie, nous classerons les techniques d'émission en trois groupes. Dans le premier, nous rangerons les sources se servant de charges photo-induites et de courants variant dans le temps pour émettre dans la gamme de fréquence THz. C'est par exemple le principe des antennes photo-conductrices. Les sources du deuxième et troisième groupes utilisent un milieu non linéaire pour convertir en fréquence le rayonnement laser. Nous distinguerons finalement les sources à base de cristaux des sources à base de gaz ionisés.

Sources à base d'antenne photo-conductrice

Principe

L'antenne photo-conductrice (PCA) est un des premiers et des plus anciens systèmes qui permet de générer un rayonnement THz. Elle est encore aujourd'hui couramment utilisée pour générer (et détecter) un rayonnement THz. Cette méthode a été développée en 1983 par Auston *et al.* [38]. La structure classique des antennes est proposée par Grischkowsky [39]. Cette structure présente deux électrodes métalliques (typiquement en or ou en aluminium) et au centre un guide d'onde coplanaire déposé sur un substrat semi-conducteur (figure 5). Les électrodes métalliques sont séparées par un écart de l'ordre de 5 à 10 μm.

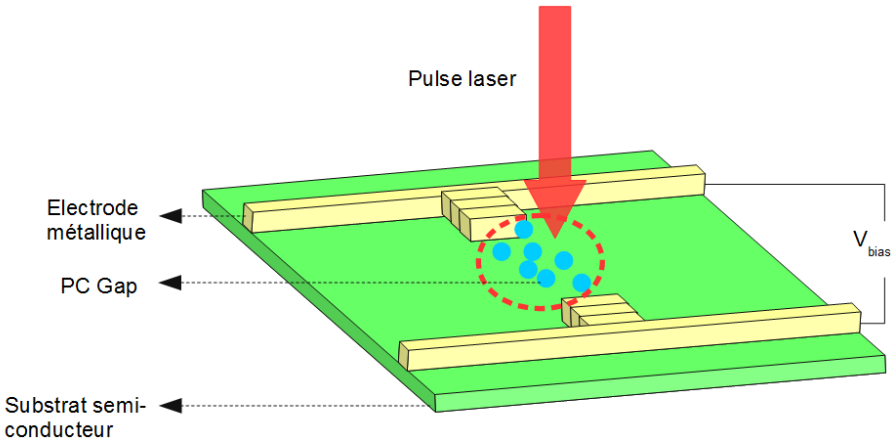


FIGURE 5 – Schéma d'une antenne photo-conductrice. L'impulsion laser génère des porteurs de charge dans le *gap* où ils sont accélérés par la tension électrique.

Les antennes photo-conductrices utilisent le rayonnement laser pour générer les paires électrons-trous qui se comportent comme un dipôle électrique. Leur moment dipolaire varie au cours du temps sous l'action du champ électrique interélectrode imposé par la tension de polarisation. Or, un dipôle dont le moment dipolaire change au cours du temps, rayonne un champ électro-magnétique. Sous l'effet du faisceau laser au niveau de l'écart entre les électrodes, les paires d'électrons sont photo-générées lorsque l'énergie des photons de l'impulsion laser est plus élevée que l'énergie de gap du semi-conducteur. Ces porteurs libres sont ensuite accélérés par le champ électrique, induit par une différence de tension appliquée aux électrodes (figure 6). La différence de tension ou de champ électrique appliquée est stockée dans la bande, de sorte que les impulsions laser servent de commutateurs transitoires qui libèrent l'énergie dans cette région sous forme d'impulsions électromagnétiques. C'est la raison pour laquelle il est important d'utiliser des impulsions laser de courte durée afin que le temps transitoire soit réduit en vue d'obtenir des impulsions électromagnétiques picosecondes, dont le spectre peut s'étendre jusqu'à la gamme THz.
Les paramètres physiques du semi-conducteur, la durée, ainsi que l'intensité de l'impulsion laser

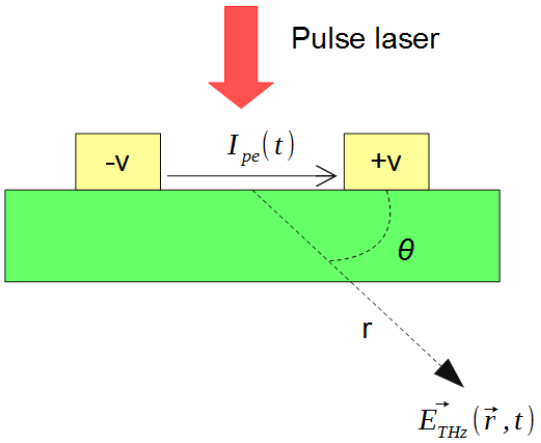


FIGURE 6 – Schéma d'une antenne photo-conductrice vue de côté rayonnant un champ électrique THz

définissent l'intensité et la bande passante du rayonnement THz. Il est possible d'utiliser différents semi-conducteurs comme Si, GaAs, InAs, InP.
L'arséniure de gallium fabriqué à basse température (LTG-GaAs) a la particularité d'avoir des porteurs de charge à courte durée de vie et à mobilité élevée, et une haute tension de claquage. Ceci explique pourquoi il est habituellement utilisé comme matériau semi-conducteur dans les PCA [40].

Le champ électrique THz est proportionnel au photo-courant $I_{PC}(t)$ généré entre les électrodes métalliques. Le rayonnement du champ THz est décrit en fonction de la distance r à un temps t :

$$\vec{E}_{THz}(t) = \frac{\mu_0 w_0}{4\pi} \frac{sin(\theta)}{r} \frac{\partial^2}{\partial t_r^2}(p(t_r))\Theta, \tag{1}$$

où μ_0 est la constante de perméabilité dans le vide, w_0 est la taille du faisceau laser, Θ est l'angle formé par la direction du dipôle et $p(t_r)$ est le moment dipolaire de la source à un temps de retard ($t_r = t - r/c$, c étant la vitesse de la lumière) qui est induit par le photo-courant. Dans la région de champ lointain (la longueur d'onde du champ THz est alors négligeable devant r), le champ THz rayonné est proportionnel à la dérivée première du photo-courant :

$$\vec{E}_{THz}(t) \propto \frac{\partial I_{PC}(t)}{\partial t} \tag{2}$$

La dépendance temporelle du photo-courant THz ($I_{PC}(t)$) est décrite comme la convolution de la forme temporelle de l'impulsion laser avec la réponse en courant impulsionnel de l'antenne photoconductrice [41] :

$$I_{PC}(t) = n(t)qv(t) = \int I_{laser}(t-t')qv(t')dt' \tag{3}$$

où $I_{laser}(t)$ est le profil de l'intensité de l'impulsion laser en fonction du temps, q est la charge élémentaire, $n(t)$ et $v(t)$ sont respectivement, la densité et la vitesse moyenne des porteurs générés.

La taille de la zone photo-excitée (env. 10 μm) est beaucoup plus petite que la longueur d'onde THz ($>$ 50 μm). Ainsi, le rayonnement THz est émis selon un très grand angle solide. C'est pourquoi une lentille est placée sur le substrat semi-conducteur afin de collimater le rayonnement THz pour mieux collecter le faisceau THz. Cette lentille est fabriquée en silicium hautement résistif qui permet une adaptation d'indice : afin d'éliminer la réflexion interne totale sur la face du substrat

en GaAs, et d'éviter que la majeure partie de la lumière soit piégée à l'intérieur du substrat [42]. Une lentille de forme hyperhémisphérique est utilisée de préférence.
Typiquement, une PCA peut émettre un rayonnement THz entre 0,1 et 4 THz [43] avec une puissance moyenne jusqu'à 40 μW [44]. Le rapport signal sur bruit peut être compris entre 2000/1 à 5000/1.

Pour générer des impulsions THz intenses avec des PCA, une des techniques est d'agrandir l'ouverture des antennes. Cette méthode est appelée, *large aperture photoconductive antenna* ou LAPCA, antenne photoconductive à grande ouverture. En 1993, le travail pionnier dans ce domaine est réalisé par You *et al.* qui utilise une LAPCA avec ouverture de 3,5 cm, alimentée par une tension de 37 kV et excitée par un laser impulsionnel de 770 nm, cadencé à 10 Hz, délivrant des impulsions THz d'énergie de 0,8 μJ et générant un champ électrique pic de 150 kV.cm^{-1} [45]. L'état de l'art actuel donne un champ électrique pic de 331 $\pm$ 4 kV/cm pour une LAPCA basée sur du ZnSe métallisé avec un mélange Cr/Au, alimentée par un champ électrique de 42 kV/cm et excitée par un laser d'impulsion centrée autour de 400 nm, de durée 60 fs et d'énergie 2,5 mJ [46].

Sources à base de cristaux électro-optiques

Principe

Les sources basées sur les cristaux électro-optiques font intervenir un processus non linéaire du second ordre appelé redressement optique (OR pour *optical rectification* en anglais). Cette méthode a l'avantage de ne pas nécessiter la fabrication d'une antenne. Elle a été démontrée par Bass *et al.* en 1962 en utilisant des cristaux de dihydrogénophosphate de potassium (*KDP*) et de phosphate de dideutérium de potassium (*DKDP*) [47]. Par la suite, un premier rayonnement THz a été mesuré en 1990 à partir de tantalate de lithium ($LiTaO_3$).

Le redressement optique est un phénomène non linéaire du second ordre pouvant avoir lieu dans les matériaux non centrosymétriques. Il s'agit d'un processus de mélange à trois ondes permettant la génération de la différence des fréquences ν_1 et ν_2 incidentes. Lorsque ν_1 et ν_2 sont très proches, la fréquence $f = |\nu_1 - \nu_2|$ est très inférieure à ν_1 et ν_2. Par abus de langage, on parle alors de redressement optique plutôt que de différence de fréquences. Dans le cas de la génération d'un rayonnement THz, les impulsions laser femtosecondes sont utilisées comme la source du rayonnement et le mélange de fréquences se produit entre les fréquences dans la bande passante des impulsions optiques. Cette bande passante peut être augmentée si des impulsions plus courtes sont utilisées. Ainsi, des fréquences plus éloignées peuvent se mélanger et élargir le spectre d'impulsions THz.

Le phénomène de génération d'onde THz peut être décrit en partant de l'équation d'onde obtenue grâce aux équations de Maxwell. On suppose des ondes planes et une onde optique linéairement polarisée selon l'axe <001> d'un cristal électro-optique et se propageant selon la direction z. On fait de plus l'approximation de l'enveloppe lentement variable, et on considère négligeables l'absorption de l'impulsion et les effets de diffraction. En prenant la polarisation P^{NL} comme terme source, on obtient :

$$\frac{\partial^2 E_{THz}(z,t)}{\partial z^2} - \frac{n(\Omega)^2}{c^2}\frac{\partial^2 E_{THz}(z,t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2 P^{NL}(z,t)}{\partial t^2}, \tag{4}$$

où $n(\Omega) = \sqrt{1+\chi^{(1)}(\omega)}$ est l'indice de réfraction du milieu à la pulsation Ω. Une transformée de Fourier du champ électrique permet d'exprimer cette formule dans le domaine spectral. On a alors :

$$\frac{\partial^2 E_{THz}(\Omega,z)}{\partial z^2} + k_{THz}^2(\Omega) E_{THz}(\Omega,z) = -\frac{\Omega^2}{\varepsilon_0 c^2} P^{NL}(\Omega,z). \tag{5}$$

La polarisation associée s'écrit de la manière suivante :

$$P^{NL}(\Omega,z) = P^{(2)}(\Omega,z) = \frac{\varepsilon_0}{2\pi}\int_0^{+\infty} \chi^{(2)}_{ijk}(\Omega;\omega+\Omega,-\omega).E(\omega+\Omega,z).E^{\star}(\omega,z)d\omega, \qquad (6)$$

où par définition, $\chi^{(2)}_{ijk} = 2d_{ijk}$ et $E(\omega,z)$ est la transformée de Fourier de l'enveloppe de l'impulsion pompe au point d'abscisse z.

Le redressement optique étant un processus non linéaire du second ordre, l'intensité du champ THz générée est proportionnelle au carré de l'intensité du faisceau laser incident. Elle dépend également des paramètres du cristal électro-optique choisi tels que son coefficient de non-linéarité, son coefficient d'absorption des ondes incidentes et du THz généré, la longueur de propagation (longueur de cohérence) et la condition d'accord de phase [8]. Un des cristaux les plus utilisés pour générer un rayonnement THz est le telluride de zinc (ZnTe) parce que sa vitesse de groupe optique est proche de la vitesse de phase térahertz à 800 nm [48]. Cependant, des résultats remarquables ont été obtenus en utilisant d'autres cristaux. Un rayonnement THz avec une bande passante allant jusqu'à 50 THz a ainsi été mesuré en excitant, avec un laser de durée de 50 fs, des cristaux de GaSe et GaAs [6, 49, 50]. La puissance des ondes THz générées se situe généralement dans la plage de quelques nanowatts jusqu'à des centaines des nanowatts [35]. La recherche d'une génération THz intense nécessite l'emploi de lasers très puissants. L'utilisation de cristaux de grande surface est alors essentielle afin de réduire les effets de saturation (dus à des effets, tels que l'absorption à deux photons) et de minimiser les dommages à la surface du cristal induits par la haute intensité. L'utilisation d'une source laser de longueur d'onde 800 nm, de durée d'impulsion de 40 fs et d'énergie allant jusqu'à 70 mJ par impulsion cadencée à 100 Hz, a ainsi permis de générer un rayonnement THz d'énergie allant jusqu'à 1,5 μJ et d'environ 230 kVcm^{-1} de champ THz pic au point focal avec un spectre allant de 0,1 à 3 THz. [51] Le redressement optique permet d'obtenir un grand rapport signal sur bruit (jusqu'à 5000/1) [35]. Son principal inconvénient est la faible efficacité de conversion de l'énergie d'impulsion laser à l'énergie d'impulsion THz ($\approx 10^{-6}$) [52].

Sources à base de gaz ionisés

Récemment, une nouvelle technique a été élaborée. Elle utilise les propriétés non linéaires d'un filament plasma créé en amont par une source laser, et est appelée plasma photo-généré. Cette nouvelle source utilise les propriétés non linéaires inhérentes aux charges comprises dans le plasma. La puissance laser incidente n'est plus limitée par le seuil de dommage d'un émetteur solide puisque l'émetteur est gazeux ou liquide. De plus, ce milieu se régénère en permanence. Elle présente ainsi un grand potentiel pour émettre un rayonnement THz intense et très large bande. Ce plasma photo-généré peut être produit dans un environnement gazeux tel que l'air [53], (on parle alors de claquage dans l'air) ou dans un gaz noble [54], ou encore dans un liquide [55,56]. La description précise de cette technique, utilisée lors de ces travaux de thèse, sera l'objet du prochain chapitre.

Même si le métal n'est pas à proprement parler un gaz ionisé, il se distingue par une mise en mouvement des électrons libres sous l'effet d'une excitation électromagnétique tel que le rayonnement d'un laser. Cette mise en mouvement va créer des non linéarités et permettre la génération d'onde THz. Peu d'études expérimentales ont été faites sur la génération THz à la surface d'un métal. Toutefois, des impulsions terahertz ont été obtenues sur des échantillons d'or et d'argent [57, 58].

Comparaison des sources impulsionnelles

Le tableau 2 ci-dessous dresse un bilan comparatif de chacune des 3 techniques de génération. Les antennes photo-conductrices et les émetteurs à base de cristaux electro-optiques sont plutôt faciles à utiliser, sans avoir besoin de système de refroidissement. A faible puissance, l'antenne

	Facteur physique limitant	Performance
PCA	durée de vie des porteurs de charge	330 kV/cm - 0,28 THz fréq. médiane (laser : 2,5 mJ ; 400 nm ; 60 fs) [46]
Cristaux EO	résonance phononique	230 kV/cm - 0,1-3 THz (laser : 48 mJ ; 800 nm ; 40 fs) [59]
Gaz ionisé	durée de l'impulsion laser	8 MV/cm - 0,1-10 THz (laser : 15 mJ ; 800 nm ; 30 fs) [60]

TABLEAU 2 – Comparaison des sources impulsionelles

photo-conductrice est plus efficace. Cependant, le seuil de saturation est plus élevé pour la génération THz par redressement optique. Il permet d'obtenir des performances comparables pour des énergies laser d'environ 500 μJ [52]. Pour une énergie d'impulsion laser supérieure à 1 mJ, le redressement optique surpasse les performances des antennes photo-conductrices de pointe.

Les LAPCA ont toutefois l'avantage d'avoir une relative bonne stabilité entre deux impulsions. Il y a deux raisons à cela. Premièrement, la génération THz à partir de PCA est un processus linéaire lorsque le pompage dans le substrat semi-conducteur se fait dans la bande interdite. Deuxièmement, la LAPCA peut être utilisée dans le régime de saturation, où le rendement THz est moins affecté par la modification de l'intensité du laser. Par conséquent, l'instabilité due au laser a moins d'effet sur le rayonnement THz par rapport aux techniques de génération THz qui utilisent des effets optiques non linéaires tels que la technique de redressement optique.

Les sources basées sur un gaz ionisé permettent de s'affranchir du seuil de dommage d'un dispositif et peuvent utiliser tout le potentiel des lasers amplifiés femtosecondes. Ces sources permettent donc d'obtenir un plus fort champ électrique avec une très large bande spectrale.

Objectifs des travaux de thèse

Les sources à base d'antenne photo-conductrice ou de cristaux électro-optiques sont à présent bien connues. Il est même possible de trouver des systèmes commerciaux utilisant l'un ou l'autre avec de bonnes performances. Ainsi, on peut trouver des appareils offrant des bandes passantes de presque 6 THz et des puissances de rayonnement allant jusqu'à quelques dizaines de μW. Même s'il est possible de continuer à améliorer leurs performances en travaillant sur la géométrie de l'antenne ou en recherchant un cristal possédant de meilleures propriétés par exemple, les phénomènes physiques liés à la génération térahertz sont à présent maîtrisés.

Les sources à base de gaz ionisés, en revanche, n'ont pas encore livré tous leurs mystères, leur étude étant relativement récente. C'est dans ce contexte que s'inscrit cette thèse. Dans le cas de la génération par claquage dans l'air, les enjeux sont à la fois fondamentaux et appliqués. En effet, les interactions au sein du plasma photo-généré sont multiples, complexes et ainsi pas intégralement maîtrisées. D'un point de vue plus pratique, ce type de sources promettant de grandes performances a l'inconvénient de nécessiter une source laser très énergétique, ce qui limite de fait leur déploiement. Dans cette thèse nous nous intéresserons à l'interaction entre le plasma photo-généré dans l'air et un flux de gaz, éventuellement lui-même ionisé. Nous vérifierons notamment si cette

perturbation peut améliorer l'efficacité de génération térahertz.
Dans le cas de la génération à la surface d'un métal, l'intérêt est purement fondamental. Peu d'études expérimentales ont été publiées et les phénomènes physiques complexes en jeu sont peu connus. Nous nous attacherons en particulier à étudier l'émission térahertz par mélange à quatre ondes à la surface d'une couche d'or. Cet effet utilisé dans la génération par claquage dans les gaz n'a jamais été testé sur les métaux.

La génération THz par claquage dans l'air utilisée dans cette thèse est décrite théoriquement dans le chapitre 1 de ce manuscrit, puis expérimentalement dans le chapitre 2. Le chapitre 3 présente l'interaction entre le filament plasma créé dans l'air permettant la génération des ondes THz et un flux d'hélium. Nous démontrerons que cette interaction permet de modifier l'amplitude et l'état de polarisation des ondes THz générées. Pour finir, le chapitre 4 présente l'étude théorique et expérimentale de la génération THz à la surface d'un métal.

1

Description des phénomènes physiques de la génération d'un rayonnement THz impulsionnel par claquage dans l'air et de sa détection électro-optique

Sommaire

1.1 Généralités 13
1.2 Ionisation photo-induite d'un gaz 14
1.2.1 Principe de la filamentation 16
1.3 Génération THz par un plasma composé uniquement de l'impulsion fondamentale 17
1.3.1 Force pondéromotrice 17
1.3.2 Rayonnement par un faisceau d'électrons accéléré par laser 19
1.4 Génération THz en présence d'une polarisation électrique 20
1.5 Génération THz dans les filaments plasma photo-générés par les fréquences fondamentale et du second harmonique d'un faisceau laser 21
1.5.1 Génération THz par un redressement à quatre ondes 21
1.5.2 Asymétrie optique et photo-courant du plasma 22
1.6 Principe de détection d'un rayonnement THz 24
1.6.1 Détecteurs incohérents 24
1.6.2 Détecteurs cohérents 24
1.6.3 Détection électro-optique 25
1.6.4 Principe de détection d'un rayonnement THz par un plasma 30
1.7 Conclusion 32

1.1 Généralités

Ces 20 dernières années ont permis le développement d'un nouveau type d'émission d'onde THz basé sur un plasma photo-généré. Le principe est de focaliser une impulsion laser femtoseconde très énergétique dans un milieu gazeux comme l'air ambiant. Lorsque le champ électrique du laser est assez fort pour ioniser le milieu, un plasma se forme dans la zone du point focal. Des ondes électro-magnétiques sont rayonnées comme des harmoniques de l'impulsion laser, des rayons X, mais également un rayonnement THz. Cette technique a été réalisée selon différentes méthodes :

— en utilisant directement les impulsions à la fréquence fondamentale d'un laser fs en 1993 [61]

— en rajoutant un champ DC de quelques dizaines de kV/cm autour du plasma pour améliorer l'efficacité [53]

— en combinant les impulsions fondamentale et du second harmonique du laser [62]

La génération d'un rayonnement THz par plasma dans un gaz est une des techniques les plus prometteuses pour la génération d'onde THz large bande et de haute intensité [8]. Elle présente de nombreux avantages comparée aux techniques conventionnelles d'émissions THz à l'état solide. Cette technique permet d'utiliser pleinement le potentiel des impulsions à haute intensité produites par les systèmes laser amplifiés modernes, qui fournissent des impulsions courtes (< 100 fs) avec une énergie par impulsion de l'ordre du mJ jusqu'à une centaine de mJ. De plus, ces impulsions peuvent être focalisées à une densité de puissance de l'ordre de $10^{14}\ W/cm^2$ voire au delà. Le faisceau laser de pompe peut être beaucoup plus puissant car il n'y a pas de seuil de dommage pour un gaz, étant donné qu'il est renouvelable en continu. Si on utilisait ces impulsions pour les émetteurs d'état solide commun tels que les antennes photo-conductrices, celles-ci seraient détruites quasi-instantanément. Bien qu'un gaz soit également détruit par de telles impulsions par ionisation, celui-ci se régénère puisque la durée de vie d'un filament plasma est de l'ordre de la nanoseconde, ce qui permet au plasma de se restaurer entre deux impulsions séparées typiquement d'une milliseconde. Ainsi, utiliser un laser avec une telle densité de puissance permet d'utiliser des champs laser beaucoup plus intenses, ce qui permet une plus grande efficacité des processus optiques non linéaires impliqués. Par conséquent, des champs électriques THz très intenses peuvent être générés, généralement de quelques dizaines de kV/cm. On peut noter qu'un champ électrique de 8 MV/cm a pu être enregistré avec cette technique [60].

De plus, la largeur de bande des impulsions THz générées par un filament plasma est essentiellement limitée par la durée des impulsions de la pompe. Les gaz n'ont pas de résonances phononiques dans la bande THz - une caractéristique que les semi-conducteurs et les cristaux non linéaires présentent généralement - et qui se traduit par des creux assez larges (quelques dizaines de GHz) dans le spectre THz mesuré. Le spectre d'impulsions THz obtenu avec cette technique affiche une bande passante qui s'étend en continu sur toute la région THz, c'est-à-dire de 0,1 à 15 THz voire au-delà. De plus, il n'y a aucune réflexion du rayonnement THz sur aucune interface, ce qui peut conduire à des schémas d'interférences compliqués, comme cela peut être le cas des émetteurs solides.

Les décharges électriques dans l'air ont été la première source de rayonnement électromagnétique (EM) [63]. Avec la découverte des lasers, l'usage des décharges induites par laser pour générer un rayonnement EM a eu une seconde vie. [64] A présent, on sait que plusieurs mécanismes différents contribuent à la génération d'ondes THz dans un milieu gazeux. Il est bien connu qu'un rayonnement EM est émis lorsqu'une particule chargée, tel qu'un électron, est accélérée, ou lorsqu'elle traverse un milieu diélectrique à une vitesse supérieure à la vitesse de phase de la lumière dans ce milieu [65, 66]. Une description simple du processus de génération dans un gaz consiste à dire que le rayonnement THz provient des oscillations cohérentes du plasma dues à une force

appelée pondéromotrice [67]. L'action de cette force pondéromotrice sera développée dans le paragraphe 1.3.1. A ce phénomène s'ajoute la contribution des nuages d'électrons accélérés par le champ de l'onde de sillage. Le nuage d'électrons accélérés dans un champ d'un sillage d'une onde contribue également au champ rayonné et, dans ce cas, ces électrons de haute énergie émettent un rayonnement de transition dans la gamme de fréquence THz quand ils franchissent un très fort gradient de la permittivité diélectrique sur une distance courte. La description de ce mécanisme est présentée dans le paragraphe 1.3.2. Sous l'action de la force pondéromotrice, l'oscillation du plasma se déroule principalement le long de la direction de propagation de l'impulsion et, par conséquent, le rayonnement a une forme conique, alors que les électrons accélérés par le champ du sillage de l'onde émettent un rayonnement THz vers l'avant.

Ces mécanismes fonctionnent bien dans les expériences utilisant une source laser puissante qui permet de fournir un degré d'ionisation assez élevé du milieu et un potentiel élevé de force pondéromotrice. Étant donné que les mécanismes considérés sont de nature non linéaire, leur efficacité à faible niveau d'excitation est faible. Cela peut être surmonté en appliquant un champ électrique constant à la région du plasma photo-induit. Ce champ DC (courant continu) accélère les électrons libres du plasma. Ainsi, le courant électronique augmente fortement, en même temps que l'amplitude du champ THz de l'impulsion. Ce cas est abordé dans le paragraphe 1.4. La direction de ce photo-courant est déterminée par la direction de la tension appliquée. Cela peut être choisi perpendiculairement à la direction de propagation de l'impulsion laser, permettant à l'ensemble du canal plasma de produire un rayonnement THz cohérent. Dans ce cas, l'efficacité de génération augmente de manière significative par rapport au cas de l'interaction pondéromotrice, et elle est limitée, principalement, par l'amplitude de la tension appliquée.

A noter que les ondes THz ne constituent qu'une partie limitée des ondes EM générées par des plasmas photo-induits utilisant des impulsions laser ultra-courtes de haute puissance. En effet, ces ondes EM vont des fréquences THz aux rayons X. [67, 68] L'émission d'impulsions THz large bande par un filament plasma nécessite des impulsions laser d'excitation ultra-courtes, généralement d'une durée inférieure à 100 fs, et de haute intensité ($10^{12} \approx 10^{15}\ W/cm^2$). [61, 69, 70]

En plus de la contribution des électrons libres dans le plasma, la génération de THz se produit par la non-linéarité optique des atomes neutres et des molécules du gaz, qui n'ont pas été ionisés par le faisceau laser excitant. La contribution optique non linéaire à la génération THz sera décrite dans le paragraphe 1.5.

1.2 Ionisation photo-induite d'un gaz

Lorsqu'un gaz est excité par un faisceau laser avec une densité de puissance élevée, les électrons sont arrachés à leurs atomes ou molécules par le biais du processus de photo-ionisation : il y a création d'un filament plasma. Pour qu'un électron se sépare de son atome, il faut exercer un champ électrique très intense E appelé barrière de potentiel. On note V(r) le potentiel total d'interaction noyau - électron, où r est la distance entre le noyau et l'électron. On exprime le potentiel de la barrière du champ électrique appliqué par : $V(r) = V_{Coulomb}(r) - erE$. Selon l'intensité du champ électrique incident, la barrière se retrouve plus ou moins haute et épaisse pour que l'électron puisse s'échapper de l'atome. Ainsi, l'atome peut subir différents types d'ionisations tels que l'ionisation multi-photonique, l'ionisation par effet tunnel ou encore l'ionisation par suppression de la barrière. Ces mécanismes sont représentés sur la figure 1.1.

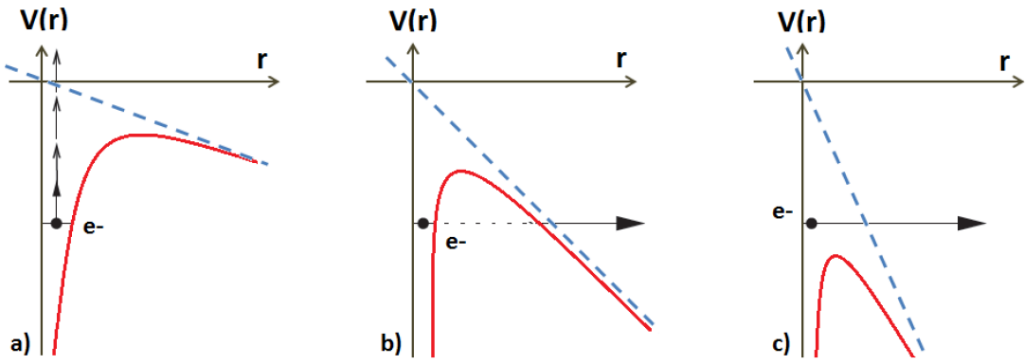


FIGURE 1.1 – Processus d'ionisation d'un atome en fonction du champ électrique incident qui déforme le potentiel noyau - électron V(r) : a) Ionisation multi-photonique, b) ionisation par effet tunnel et c) ionisation par suppression de barrière. La déformation de la barrière de potentiel induit par le champ électrique incident est représentée en pointillé bleu [71].

Le processus est multi-photonique à des densités de puissance laser relativement faibles ($< 10\ TW/cm^2$) : l'énergie de plusieurs photons est transférée à l'électron, dont l'énergie finale est supérieure à l'énergie d'ionisation. À des intensités laser plus élevées, le potentiel atomique est affaibli par le champ laser et les électrons pourraient être ionisés via un effet tunnel à travers la barrière de potentiel de Coulomb. [72] Les deux origines de la photo-ionisation ont été prises en compte simultanément dans plusieurs modèles, comme celui de Landau [73] et celui de PPT [74] pour les atomes de type hydrogène. Dans le modèle PPT, le taux d'ionisation varie comme l'énergie d'ionisation à la puissance $1/2-\kappa$, où κ est le nombre requis de photons absorbés par un atome pour le rendre ionisé. Dans la limite d'énergie laser élevée, le modèle PPT a été généralisé à n'importe quel atome, et pas seulement à celui de l'hydrogène (modèle ADK) [75]. En plus des ionisations à photons multiples et à effet tunnel, un processus d'avalanche dû aux chocs entre les électrons libres et les atomes neutres peut se produire, mais il est négligeable dans les matières diluées comme les gaz. Généralement, le taux d'ionisation de l'O_2 (N_2) est d'environ $3\ (5) \times 10^{20}\ s^{-1}.cm^{-3}$ pour une densité de puissance laser de $10^{13}\ W/cm^2$. [76] La dynamique de la densité de charge dans le plasma est régie par l'équation de Vlasov :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \nabla \cdot \frac{\partial}{\partial r} + \frac{q}{m} E(r,t) \cdot \frac{\partial}{\partial v}\right] f(r,\nabla,t) = 0, \tag{1.1}$$

où t, v sont respectivement le temps et la vitesse des particules, q et m sont respectivement la charge et la masse des particules, E est le champ électrique et f est la fonction de distribution. Cette équation est généralement résolue avec une hypothèse simplificatrice, par exemple, avec le modèle d'équation de propagation d'impulsion unidirectionnelle (UPPE). [77]

Pour atteindre un champ électrique suffisamment élevé pour former un plasma à partir d'impulsions laser ultra-courtes, le faisceau laser est focalisé à l'aide de miroirs paraboliques ou plus simplement d'une lentille. Au point de focalisation, l'intensité I du faisceau laser est définie par :

$$I = \frac{W}{S_{eff} \times \tau}, \tag{1.2}$$

où W est l'énergie d'une impulsion laser, τ sa durée et $S_{eff} = \pi(\omega_0/2)^2$ la surface effective du mode du faisceau, ω_0 étant le diamètre du laser. Pour les expériences menées durant cette thèse et décrites dans le manuscrit, le laser amplifié utilisé délivre des impulsions de puissance moyenne $P = 3,5\ W$, de durée d'impulsion $\tau = 45 fs$ à une cadence $f = 1\ kHz$. Le faisceau est focalisé afin d'avoir une taille au point focal $\omega_0 \approx 3\ \mu m$. On estime ainsi son intensité à $I \approx 5,5 \times 10^{17}\ W/cm^2$. Le phénomène prépondérant dans la formation du plasma est alors ici l'effet tunnel [71]. Lors de

la génération d'un plasma à partir d'un laser impulsionnel, le plasma subit différents effets qui lui donnent la forme de filament comme décrit dans les paragraphes suivants.

1.2.1 Principe de la filamentation

Il existe deux effets principaux qui permettent d'expliquer la filamentation. Il s'agit d'un effet Kerr optique d'auto-focalisation et d'un effet d'ionisation du milieu. L'effet Kerr optique agit contre la diffraction et tend à focaliser le faisceau en un point. Tandis que l'effet d'ionisation va avoir un effet de défocalisation du faisceau. Le faisceau laser subit l'effet Kerr optique, il se concentre sur un très faible volume et donc son intensité devient si forte qu'il va ioniser le gaz dans lequel il se propage. Cette ionisation va réduire l'indice de réfraction du milieu localement et va engendrer une défocalisation. L'équilibre dynamique de ces deux phénomènes donne lieu à la filamentation représentée sur la figure 1.2.

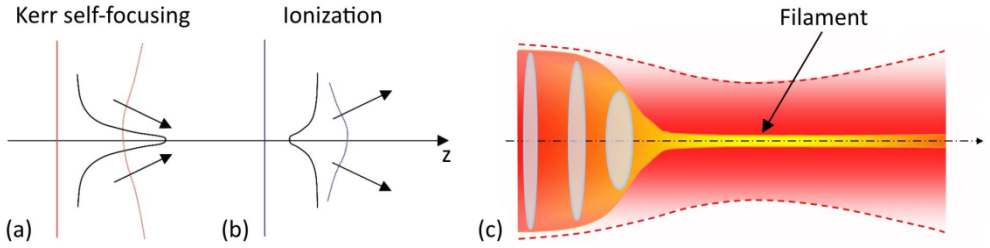


FIGURE 1.2 – Schéma des processus mis en jeu lors de la formation d'un filament. a) L'effet Kerr optique qui aboutit à focaliser le faisceau en un point. b) L'effet d'ionisation qui tend à défocaliser le faisceau. c) Formation d'un filament par focalisation du faisceau par effet Kerr optique qui engendre l'ionisation du milieu et qui a pour effet la formation d'un filament [78].

Effet Kerr optique d'auto-focalisation

L'effet Kerr optique d'auto-focalisation est étudié pour la première fois dans les années 60 dans les verres et les liquides [79, 80]. Lorsqu'un faisceau laser haute puissance se propage dans l'air, le fort champ électrique du faisceau va modifier l'indice de réfraction n du milieu par un effet Kerr [81] :

$$n = n_0 + n_2 I_L(\vec{r},t), \tag{1.3}$$

où n_0 et n_2 sont les composantes linéaire et non linéaire de l'indice de réfraction, $I_L(\vec{r},t)$ est l'intensité laser. Le coefficient non linéaire de l'effet Kerr de l'indice n_2 est associé à la susceptibilité du troisième ordre du milieu selon $\chi^{(3)} = 4\varepsilon_0 c n_2 n_0^2/3$, où ε_0 est la permittivité du vide et c la célérité de la lumière dans le vide. Comme le coefficient n_2 est positif pour la plupart des matériaux, l'indice de réfraction n augmente avec la présence d'un champ électrique intense. Cette augmentation d'indice provoque un changement de la distribution spatiale de l'intensité du faisceau laser qui va causer un effet de courbure du front d'onde équivalent à l'effet d'une lentille présente tout au long du faisceau.

Plasma défocalisant

L'effet Kerr focalise très fortement le faisceau. Son intensité devient si grande que le faisceau ionise le milieu de propagation. La génération d'un plasma cause une diminution locale de l'indice de réfraction selon l'équation [82] :

$$n \approx n_0 - \frac{\rho(\vec{r},t)}{2\rho_c}, \tag{1.4}$$

où $\rho(\vec{r},t)$ est la densité d'électrons libres du plasma et ρ_c est la valeur critique de la densité de plasma au delà de laquelle le plasma devient opaque à l'impulsion laser :

$$\rho_c = \varepsilon_0 m_e \frac{\omega_0^2}{e^2}, \tag{1.5}$$

où m_e et e sont respectivement la masse de l'électron et sa charge, $\rho_c \approx 1,7 \times 10^{21}\ cm^{-3}$ pour une longueur d'onde de 800 nm. Cette diminution locale de l'indice de réfraction agit comme une lentille divergente sur le faisceau laser, on parle alors de défocalisation du plasma.

Ces deux effets rentrent en compétition pour former un filament plasma jusqu'à ce que l'intensité du faisceau laser devienne trop faible pour ioniser le milieu.

1.3 Génération THz par un plasma composé uniquement de l'impulsion fondamentale

L'émission de rayonnement THz à l'aide d'un gaz ionisé par une impulsion laser intense et courte est prédite pour la première fois par Gaponov et Miller en 1958 [83, 83], par Askaryan en 1962 [84], et plus tard par Hamster et Falcone en 1990 [85], qui ont ensuite validé expérimentalement cette prédiction en 1993 [61, 69]. Ces travaux sont basés sur une méthode simple pour générer une impulsion THz dans le gaz : l'impulsion laser est focalisée dans le milieu comme le montre la figure 1.3A. Hamster et Falcone ont utilisé des impulsions de puissance très élevée, d'énergie 0,5 J, de durée jusqu'à 120 fs et de longueur d'onde centrée à 0,8 μm atteignant des puissances crêtes térawatt. Le faisceau est focalisé dans un gaz noble tel que l'hélium ou l'argon grâce à un miroir parabolique de 5 cm de focale pour produire un plasma. La détection est faite à l'aide d'une détection électro-optique. Ils parviennent à produire un spectre montrant un pic centré autour de 1,5 THz pour une densité de charges dans le plasma estimée à $4 \times 10^{17}\ cm^{-3}$. Il s'agit de la première démonstration d'une génération d'un rayonnement THz provenant d'un plasma formé par un laser impulsionnel. Ils décrivent deux mécanismes contribuant au signal THz : le premier est dû à la force pondéromotrice de l'impulsion laser produisant une séparation de charge, et le second résultant d'effets non linéaires de second ordre à l'intérieur de ce plasma spatialement non homogène. L'effet pondéromoteur est le processus prédominant.

1.3.1 Force pondéromotrice

La force pondéromotrice est expliquée sur la figure 1.4, les particules chargées sont sensibles au champ électromagnétique oscillant, tel que celui d'une impulsion laser. Les particules se dirigent vers la zone où l'intensité optique est plus faible, quelle que soit leur charge [86]. Cependant, comme les ions ont une masse de plusieurs ordres de grandeur plus élevée que les électrons, leurs mouvements diffèrent, ce qui provoque une grande différence de densité entre les charges ioniques et électroniques. Cette séparation de charge entraîne une puissante force électromagnétique transitoire [66, 87].

Ainsi, la force pondéromotrice agit sur le plasma induit par le champ laser. Son gradient de champ est non uniforme spatialement comme trouvé au foyer d'un faisceau laser pulsé. Il provoque une migration nette des porteurs de charge le long de l'axe de propagation du laser, due à la force pondéromotrice exprimée par unité de volume tel que : [83, 84]

$$F = -\frac{q^2}{2n_e m\omega^2}\nabla(E\Delta E), \tag{1.6}$$

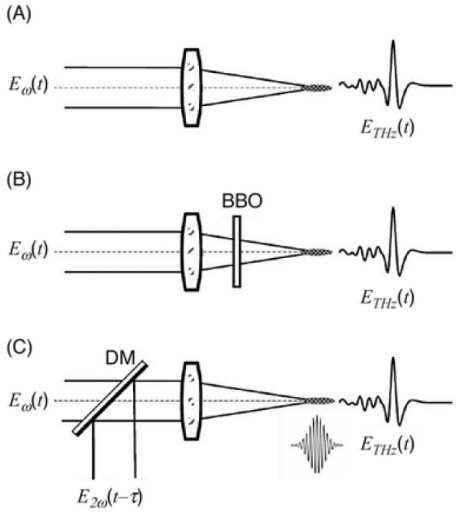


FIGURE 1.3 – Trois schémas généraux de la génération d'impulsions THz par claquage. (A) Une seule excitation de faisceau optique (ω ou 2ω), dans laquelle la génération d'onde THz est affectée à la force pondéromotrice pour entraîner les électrons et les ions. (B) La configuration habituelle pour le mélange à quatre ondes (FWM) qui admet le processus optique non linéaire du troisième ordre. (C) Un miroir dichroïque combine le faisceau du deuxième harmonique avec le faisceau fondamental. La phase, l'amplitude et la polarisation des deux faisceaux peuvent être contrôlées individuellement. [8]

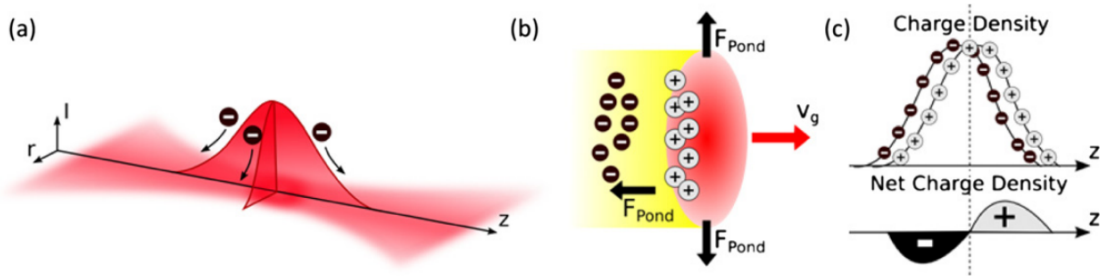


FIGURE 1.4 – Schéma expliquant la force pondéromotrice responsable de la génération THz via un plasma photogénéré. a) Impulsion laser se propageant selon l'axe z, la force pondéromotrice crée un gradient de champ électrique qui met en mouvement les électrons libres. b) La force pondéromotrice écarte les électrons libres du plasma en laissant les ions, plus lourds, relativement stationnaires au sein du plasma. c) La différence de la densité électronique entraîne la création d'un dipôle électrique le long de l'axe de propagation. [88]

où q est la charge de l'électron, m sa masse, n_e le nombre d'électrons par unité de volume, ω la fréquence laser, et E le vecteur du champ électrique du laser. Comme la charge est au carré dans cette expression, elle n'influence pas le sens de mouvement de l'électron.

Cependant, pour les impulsions courtes, le gradient le plus fort est dû à la traduction de la variation temporelle de l'impulsion en une variation spatiale suivant la direction du vecteur de Poynting. De plus, les ions positifs relativement lourds sont «gelés» tandis que les électrons plus légers sont très mobiles. Cela produit un courant net que Hamster et Falcone ont calculé dans un modèle hydrodynamique. Cet effet peut produire soit un transitoire dû à l'accélération de la porteuse pendant l'interaction laser/plasma, soit une oscillation subsistante plus longue. Cette dernière se produit lorsque l'inverse de la durée de l'impulsion laser correspond à la fréquence du plasma. Dans ce cas, une oscillation du plasma est excitée par résonance, résultant en un rayonnement plus intense et à bande plus étroite.

Bien qu'expérimentalement simple, car ne nécessitant que la focalisation de l'impulsion laser dans un gaz, le schéma n'est pas très efficace. De plus, comme le dipôle effectif oscille le long de l'axe

de propagation du laser, cela ne produit pas de rayonnement vers l'avant. La direction principale du rayonnement d'une source ponctuelle est perpendiculaire à l'axe de propagation et présente une mauvaise adaptation de phase lorsque la source se déplace. En conséquence, le rayonnement forme un cône représentant un compromis entre le diagramme de rayonnement et l'adaptation de phase, et par conséquent le rendement de génération est faible (10^{-8} à 10^{-7}).

1.3.2 Rayonnement par un faisceau d'électrons accéléré par laser

De manière similaire aux impulsions THz générées par la force pondéromotrice, l'accélération transversale des électrons peut être utilisée pour générer des paquets d'électrons de haute énergie, appelée accélération du champ de sillage laser [67]. Dans ce schéma d'accélération, le champ créé par la force pondéromotrice de l'impulsion excite une oscillation du plasma, se traduisant par une accélération de paquets d'électrons dans la direction de la propagation de l'impulsion laser. La force pondéromotrice elle-même n'accélère pas directement les électrons, comme expliqué dans la section précédente. Au lieu de cela, la force pondéromotrice éloigne les électrons du centre de l'impulsion de propagation, les faisant se comporter comme une quasi-particule voyageant à la vitesse de groupe. Ceci produit une oscillation de sillage de grande amplitude du plasma environnant, et c'est cette onde progressive qui fournit le gradient de potentiel nécessaire pour atteindre des énergies élevées (> GeV). Une fois qu'un tel faisceau d'électrons à haute énergie est formé par le laser, il génère un rayonnement THz lorsqu'il frappe une zone avec un très fort gradient de la constante diélectrique, comme l'ont démontré Leemans *et al* [89]. Dans le cas présent, ce gradient apparaît à la frontière entre le plasma lui-même et le vide. Il est produit par l'accélération à l'intérieur d'un jet de gaz de 1,5 mm dans une chambre à vide. Cette méthode délivre un rayonnement THz cohérent vers l'avant lorsque la longueur du paquet est inférieure à la longueur d'onde THz. En raison de la dispersion d'énergie des électrons ainsi excités, la distance entre la cible en transition et la région d'accélération est limitée. Cependant, la méthode qui consiste à accélérer un faisceau d'électrons a le grand avantage de produire un rayonnement significatif vers l'avant, ce qui est très utile dans les applications où le signal THz doit être focalisé sur une petite surface. Cependant, l'efficacité de conversion est plutôt faible, de l'ordre de 10^{-7}. Néanmoins, les énergies d'impulsion THz produites sont encore importantes, jusqu'à 100 nJ, puisque le plasma peut être créé et excité avec des impulsions laser de 1 J.

On peut établir une relation entre la puissance THz émise P_{THz} par le plasma et les paramètres du laser [69] :

$$P_{THz} \propto \left(\frac{W}{R_0}\right)^2 \left(\frac{\lambda}{\tau}\right)^4 \tag{1.7}$$

où W est l'énergie de l'impulsion laser, R_0 est le rayon à $1/e^2$ du faisceau laser au foyer, λ est la longueur d'onde du laser et τ est la durée des impulsions. Cette équation prédit une forte dépendance de la puissance THz avec la longueur d'onde et la durée d'impulsion du laser.

Un milieu non linéaire tel qu'un filament plasma permet la génération d'ondes THz très intenses. La filamentation plasma permet de stabiliser le faisceau avec un diamètre très petit (de l'ordre de 30 μm à 100 μm) et ainsi une intensité très élevée sur une distance plus longue que la longueur de Rayleigh. En effet, Roskos *et al.* ont montré que si l'on considère un laser amplifié délivrant des impulsions d'une durée de 150 fs à une cadence de 1 kHz, autour de 755 nm, il est typiquement possible de le focaliser avec une longueur de Rayleigh de $2z_0 \approx 350\ \mu m$. Le même laser, avec une énergie de 625 μJ, peut créer un filament plasma d'une longueur de 1400 μm [90].

Cette technique permet d'utiliser un laser impulsionnel haute énergie sans être limité par la puissance optique, qui pourrait endommager un émetteur pour les techniques plus traditionnelles. Néanmoins, la technique de claquage dans l'air a un rendement de conversion optique - THz

assez faible. Deux nouvelles méthodes décrites dans les paragraphes suivants permettent de distendre de manière plus importante l'asymétrie du champ électrique transverse pour augmenter ce rendement.

1.4 Génération THz en présence d'une polarisation électrique

Les deux origines de la génération THz à partir d'un plasma décrites précédemment (effet pondéromoteur et non-linéarité de la réponse EM des atomes / molécules) nécessitent une impulsion laser de très haute énergie afin de produire des énergies d'impulsion THz significatives. Ceci est dû en partie, au fait que le courant induit par le laser n'a pas une forme géométrique. En effet, cela conduirait facilement à une impulsion THz se propageant vers l'avant à la même vitesse que l'impulsion optique, ce qui permettrait une accumulation cohérente de rayonnement sur la longueur d'interaction. Un tel schéma nécessiterait la formation d'un dipôle suivant la direction du champ laser (ou au moins orthogonal à sa direction de propagation).

La manière la plus simple de produire un champ THz orthogonal est d'appliquer une tension en courant continu (CC) externe dans la région du plasma, comme l'ont démontré Löffler *et al.* [53]. Une telle technique permet de générer des impulsions THz avec des énergies d'impulsion laser d'entrée de 0,5 mJ, beaucoup plus faibles que les impulsions de plusieurs mJ requises pour le mécanisme précédent. Ces impulsions laser à plus faible énergie peuvent être produites à des taux de répétition plus élevés et avec des systèmes laser d'amplification à impulsions standards, permettant un meilleur rapport signal sur bruit.

Lorsque le laser est focalisé à des intensités de l'ordre de $10^{14}\ W/cm^2$, le gaz est ionisé et produit des porteurs libres. Les électrons libres sont accélérés par le champ électrique CC, produisant un courant. Le courant étant formé à une échelle de temps comparable à la durée de l'impulsion optique, sa première dérivée est similaire à l'enveloppe d'impulsion optique, et donc la partie principale de son contenu spectral appartient à la région THz. Étant donné la correspondance étroite entre la vitesse de groupe de l'impulsion optique et la vitesse de phase de l'impulsion THz, le rayonnement s'accumule de manière cohérente sur la longueur de la région où le plasma est généré, de sorte que, bien que l'accélération des électrons individuels ne soit pas très grande, leurs petites contributions s'ajoutent de manière constructive. L'amplitude des impulsions THz augmente linéairement avec le champ électrique de polarisation du plasma. La direction du photocourant est déterminée par la direction du champ de polarisation, il peut donc être réglé pour être orthogonal à la direction de propagation de l'impulsion, conduisant à une accumulation cohérente de l'amplitude des impulsions THz le long du plasma. Cela conduit à une augmentation d'un ordre de grandeur l'amplitude de l'impulsion THz par rapport à une génération basée uniquement sur l'accélération des électrons par la force pondéromotrice seule.

Pour une telle méthode, les principales limitations de la conversion laser-THz sont le nombre total de porteurs pouvant être créés (limité par l'intensité du laser), et leur accélération (limitée par le champ de polarisation, lui-même limité à environ 30 kV/cm en raison du seuil de claquage dans l'air). Cette dernière limitation peut être réduite en augmentant la pression du gaz. En effet, il est possible d'appliquer un champ de polarisation plus élevé pour une pression de gaz plus forte [91].

Cette technique est très peu appliquée car elle est plus compliquée à mettre en place que la méthode de génération THz par un filament plasma produit par les fréquences fondamentale et du second harmonique du faisceau laser. Cette méthode est décrite dans le paragraphe suivant.

1.5 Génération THz dans les filaments plasma photo-générés par les fréquences fondamentale et du second harmonique d'un faisceau laser

Le schéma de génération d'un rayonnement THz par un plasma photo-généré à la fréquence fondamentale (ω) et par un faisceau de deuxième harmonique (2ω) obtenu en doublant la fréquence du fondamental est aujourd'hui considéré comme la configuration optimale pour émettre des rayonnements THz intenses et à large bande spectrale, pouvant atteindre plusieurs centaines de kV/cm [92, 93].
En ajoutant sur le chemin du faisceau laser, avant le plasma, un cristal non linéaire qui génère des impulsions du second harmonique, tel qu'un beta-barium borate (BBO), l'efficacité de génération du rayonnement THz est considérablement meilleure, d'environ deux ordres de grandeurs. [62, 92, 94, 95]

Cette méthode avec un plasma dit "bicolore" a été démontrée [62] en même temps que la génération THz avec un plasma polarisé par une tension continue. Ce nouveau processus est bien plus pratique à mettre en œuvre et a donc été davantage exploré [52, 90, 96, 97].

Cela peut être expliqué à la fois par une non-linéarité du troisième ordre, conduisant à un redressement à quatre ondes ($((\omega+\Omega)-\omega=\Omega)$), et par une asymétrie géométrique de l'impulsion optique au foyer, ce qui conduit à des courants transitoires dans le plasma. Le schéma général est dessiné sur la figure 1.3B.

En 2007, on rapporte une efficacité de conversion onde optique à onde THz de 10^{-4} et une énergie THz générée de 5 μJ [98]. Cette méthode de génération a permis également d'obtenir des spectres avec une largeur de bande jusqu'à 100 THz [93]. Toutefois, pour obtenir de telles performances, il faut prendre en compte de nombreux paramètres expérimentaux. Par exemple, l'intensité du rayonnement THz est maximale lorsque les polarisations du rouge et du bleu sont parallèles, en revanche cette intensité est presque négligeable lorsque les polarisations sont perpendiculaires [94, 95].

C'est ce schéma de génération THz que nous avons décidé de mettre en œuvre sur le banc optique construit durant cette thèse.

1.5.1 Génération THz par un redressement à quatre ondes

La génération d'un rayonnement THz par mélange de l'impulsion fondamentale ω et du second harmonique 2ω dans un filament plasma est d'abord modélisée par un redressement à quatre ondes appelé FWM (*Four Wave Mixing*). Ce redressement à quatre ondes est en réalité très différent du classique mélange à quatre ondes, comme nous l'expliquerons plus tard. La polarisation non linéaire du milieu sous l'action d'un fort champ laser est :

$$P=\chi^{(1)}\cdot E+\chi^{(2)}:E\cdot E+\chi^{(3)}:E\cdot E\cdot E+\chi^{(4)}:E\cdot E\cdot E\cdot E+... \tag{1.8}$$

La génération des ondes THz par un mélange à quatre ondes implique un terme non linéaire du troisième ordre et est gouvernée par l'équation de conservation de l'énergie suivante, qui décrit également l'interaction photonique d'un tel phénomène :

$$(2\omega+\Omega)-\omega-\omega=2\omega-(\omega-\Omega)-\omega=\Omega \tag{1.9}$$

où les fréquences photoniques $\omega-\Omega$ et $2\omega+\Omega$ existent grâce à la grande largeur spectrale des impulsions laser ultra courtes. Le processus de rectification optique du troisième ordre est similaire au processus de rectification optique du second ordre (mélange à trois ondes), qui résulte de

l'interaction (différence de fréquence) de seulement deux photons ($(\omega+\Omega)-\omega=\Omega$). Selon les règles de sélection, le processus du second ordre est interdit dans les milieux de symétries centrales, y compris les gaz, tandis que les effets du troisième ordre y sont autorisés. Les figures 1.3B et C illustrent l'idée de base de la génération d'une impulsion THz dans l'air à travers le mélange à quatre ondes. Notons que, parce que $\omega >> \Omega$, les équations précédentes de conservation de l'énergie des photons peuvent être approximées par $2\omega-\omega-\omega\approx 0$ et $\omega-\omega\approx 0$. Le tenseur de susceptibilité du troisième ordre $\chi^{(3)}(0,2\omega,\omega,\omega)$ des milieux isotropes présente 21 éléments non nuls $\chi^{(3)}_{ijkl}$, dont les indices $ijkl$ obéissent aux relations suivantes, [99] en supposant que les deux derniers photons sont fournis par le même faisceau et qu'ils peuvent donc être interchangeables ainsi que leurs indices associés. On obtient :

$$\begin{cases} iijj = jjii \\ ijij = jiji = ijji = jiij \\ \frac{\chi^{(3)}_{iiii}}{3} = \chi^{(3)}_{iijj} = \chi^{(3)}_{ijij} = \chi^{(3)}_{ijji} \end{cases} \tag{1.10}$$

avec $i \neq j = x,y,z$ Les effets du second ordre et d'ordre pair sont interdits dans les plasmas isotropes homogènes, ainsi :

$$\chi^{(2)} = 0; \chi^{(4)} = 0 \tag{1.11}$$

Le modèle FWM décrit le champ électrique THz comme :

$$E_{THz}(t) \propto \chi^{(3)} E_{2\omega}(t) E^*_{\omega}(t) E^*_{\omega}(t) \tag{1.12}$$

où E_{THz}, E_{ω} et $E_{2\omega}$ sont respectivement le champ électrique du THz, de l'impulsion laser fondamentale et du second harmonique et $\chi^{(3)}$ la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 du milieu dans lequel l'interaction se déroule.

Le tableau 1.1 présente les non-linéarités du deuxième et du troisième ordres des matériaux de base utilisés dans l'optique non linéaire. On voit clairement que l'air a la plus faible non-linéarité. On ne peut donc pas s'attendre à de grands coefficients de conversion optique - THz dans l'air.

Ce modèle basique a des limites. L'intensité du rayonnement THz mesurée est trop grande pour provenir uniquement du mélange à quatre ondes. En effet, la valeur de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois, $\chi^{(3)}$, de l'air (pour le diazote, $\chi^{(3)}_{N_2} \approx 1,7\times10^{-25}\ m^2.V^{-2}$) est trop faible pour expliquer une émission THz aussi importante. De plus, Kress *et al.* [94] ont montré que la formation d'un plasma au point focal du laser est une condition nécessaire à la génération d'un rayonnement THz. Ces observations remettaient en doute la validité du modèle FWM. Mais, en 2006, ce modèle a été remis en avant expérimentalement [95], et montre qu'au delà du seuil d'ionisation du milieu gazeux pour créer un plasma, le champ THz généré est proportionnel à l'intensité de l'impulsion fondamentale et proportionnel à la racine carrée de l'intensité du second harmonique, comme on peut le voir sur la figure 1.5. Ces mesures démontrent également l'existence d'un seuil en intensité que le modèle FWM ne peut expliquer. En dépit de ces résultats, le modèle FWM prévoit la détection des ondes THz avec une impulsion laser provenant du second harmonique, consistant au phénomène inverse de la génération, qui a été démontré et appelé détection ABCD (Air Biased Coherent Detection) [100]. Cette détection sera développée dans le paragraphe 1.6.4.

Ainsi, le seuil de la génération des ondes THz est fortement corrélé avec le seuil d'ionisation du gaz, ce qui montre que le plasma joue un rôle significatif dans le processus de génération [62, 92].

1.5.2 Asymétrie optique et photo-courant du plasma

Lorsque les champs optiques ω et 2ω interfèrent au point focal avec une différence de phase de $\pi/2$, ils donnent naissance à un champ total dont la valeur moyenne dans le temps n'est plus

État	Matériau	$\chi^{(2)}10^{-9}$ $(cm^3/reg)^{1/2}$	$\chi^{(3)}10^{-9}$ $(cm^3/reg)^{1/2}$
Solide	$NaCl, CaF_2, CaCO_3$		10^{-5}
	verre		10^{-5}
	quartz	2	10^{-5}
	KDP	3	10^{-5}
	$LiJO_3$	20	10^{-4}
	$LiNbO_3$	50	10^{-4}
	CdS	200	10^{-2}
	$GaAs$	800	10^{-1}
Liquide	eau, éthanol		10^{-5}
	acétone, benzène		10^{-4}
	CCl_4		10^{-3}
	CS_2		10^{-11}
Gaz ($N \approx 10^{19}\ cm^{-3}$	Ar, Kr		10^{-9}
	air		10^{-8}

TABLEAU 1.1 – Susceptibilité optique non linéaire de divers matériaux

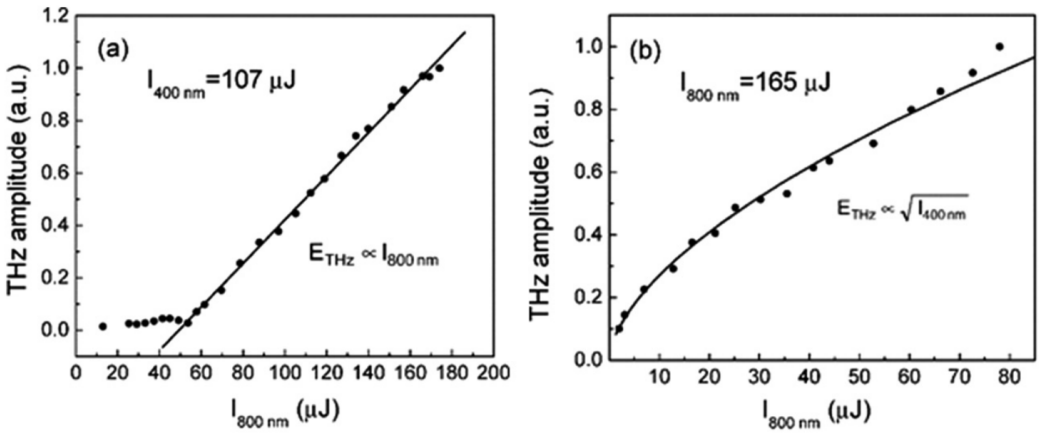


FIGURE 1.5 – Champ THz généré en fonction de l'intensité du faisceau laser fondamental à 800 nm (a) et de l'intensité du faisceau du second harmonique à 400 nm (b). [95]

nulle. Les électrons libres produits par l'ionisation de l'air, sont accélérés par un champ laser asymétrique formé par la superposition des champs fondamental et du second harmonique, et produisent un photo-courant non nul. Ce photo-courant se produit dans la même échelle de temps que la photo-ionisation, et émet une impulsion électromagnétique dans la gamme de fréquence THz. Il s'agit d'un photocourant transitoire de porteurs libres photo-excités comprenant une composante quasi-continue [96, 101]. Ce courant rend la génération THz plus efficace qu'avec une excitation laser d'une seule couleur. Comme l'asymétrie dépend de la différence de phase entre les champs optiques ω et 2ω, un positionnement soigneux du cristal non linéaire devant la région du plasma (généralement BBO) qui produit le faisceau laser du second harmonique est requis [102].

La génération par plasma photo-induit dans le gaz permet de produire facilement des fréquences allant jusqu'à plusieurs dizaines de THz. [100] Lors de l'utilisation d'impulsions laser ultra-courtes

de 10 fs, [103] des impulsions THz ultra-large bande sont générées, avec des composantes spectrales jusqu'à 200 THz, c'est-à-dire dans le proche infrarouge !

La détection des impulsions THz peut être réalisée avec des récepteurs classiques (antennes photoconductrices ou EO) mais également par des effets optiques non linéaires à travers un autre plasma photo-induit. En complément du phénomène d'émission par mélange à quatre ondes, l'interaction du signal THz et de l'impulsion laser haute puissance de la sonde dans le plasma induit par ce dernier produit un signal optique de deuxième harmonique, détecté avec un tube photomultiplicateur (la technique est appelée ABCD pour Air Biased Coherent Detection) [100]. Le paragraphe suivant décrit les différents types de détecteurs THz.

1.6 Principe de détection d'un rayonnement THz

La génération d'un rayonnement THz est complexe, sa détection l'est également et repose souvent sur un phénomène inverse à la génération.

On peut classer les détecteurs THz en deux familles : les détecteurs incohérents qui mesurent l'énergie THz et les détecteurs cohérents qui permettent de remonter à la forme d'onde du rayonnement.

1.6.1 Détecteurs incohérents

Il existe plusieurs systèmes de détecteurs incohérents, dont voici les principaux :

— Les photo-conducteurs extrinsèques et intrinsèques absorbent l'énergie des photons THz incidents, ce qui induit un changement du nombre de porteurs dans le semi-conducteur passant de la bande de valence vers la bande de conduction. Le germanium dopé gallium est un exemple de ce type de détecteur. Le NEP (*noise equivalent power*, puissance équivalente du bruit) d'un photo-conducteur est de l'ordre de $10^{-14}\ W/\sqrt{Hz}$ mais dans un domaine spectral assez restreint : environ $30-160\ \mu m$ pour le GeGa.

— Le bolomètre mesure la quantité d'énergie du rayonnement électromagnétique par une conversion en un signal électrique via un élément sensible qui s'échauffe avec le rayonnement incident. Un thermomètre permet dans un second temps de mesurer l'élévation de la température. Le NEP d'un bolomètre est de l'ordre de $10^{-11}\ W/\sqrt{Hz}$ avec un domaine spectral assez étendu : $200-2000\ \mu m$ pour InSb à 4,2 K pour un temps de réponse de l'ordre de la microseconde.

— La cellule de Golay est un détecteur construit autour d'un volume de gaz qui s'échauffe en absorbant le rayonnement THz incident. La face extérieure de la paroi arrière de la cellule est métallisée et permet la réflexion d'un faisceau laser en direction d'un détecteur. La déformation de cette paroi est proportionnelle à la dilatation du gaz et donc à la puissance THz incidente. L'éclairage du détecteur par le faisceau laser est affecté par cette déformation. Le NEP est de l'ordre de $10^{-10}\ W/\sqrt{Hz}$ et le domaine spectral de détection est large bande mais le temps de réponse est long (de l'ordre de la milliseconde).

1.6.2 Détecteurs cohérents

Les détecteurs de rayonnement THz cohérents sont des détecteurs opto-électroniques. Il en existe deux principaux types :

— Les détecteurs opto-électroniques qui génèrent des porteurs de charge grâce à un faisceau laser. Ils sont ensuite accélérés à l'aide du champ électrique du rayonnement THz afin de créer un courant électrique. Ils sont basés sur les antennes photo-conductrices.

— Les détecteurs opto-électroniques qui utilisent un cristal électro-optique dont l'ellipticité des indices est modifiée par le champ électrique du rayonnement THz incident. Cette modification engendre un changement de l'état de polarisation d'un faisceau incident traversant le cristal, appelé sonde. La modification de l'état de polarisation du faisceau sonde est ensuite mesurée via des éléments optiques polarisants.

On pourra citer un troisième type de détecteur cohérent qui utilise un plasma pour créer des photons via un processus non linéaire dans celui-ci. Cette détection est détaillée dans le paragraphe 1.6.4.
Des détecteurs électro-optiques, dont le fonctionnement est décrit dans le paragraphe 1.6.3, ont été utilisés pour ces travaux de thèse.

1.6.3 Détection électro-optique

Dans le cadre des travaux de thèse, la détection électro-optique est choisie pour avoir accès à la forme d'onde du rayonnement THz et de par l'expérience acquise au laboratoire IMEP-LAHC.

Considérons le principe fondamental de la dynamique appliqué à un électron i d'un matériau diélectrique, soumis à un champ électrostatique dans un équilibre r_i. Cet équilibre est défini lorsque la force de rappel f_i s'oppose à la force de Coulomb créée par ce champ. Le moment dipolaire induit $\overrightarrow{P_{tot}}$ s'écrit :

$$\overrightarrow{P_{tot}} = \varepsilon_0 \cdot \overleftrightarrow{\chi} \cdot \overrightarrow{E} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}, \tag{1.13}$$

où ε_0 est la constante de permittivité dans la vide, et $\overleftrightarrow{\chi}$ la matrice de susceptibilité diélectrique. Cette matrice étant diagonalisable, il existe des directions privilégiées (axes propres) pour lesquelles $\overrightarrow{P_{tot}}$ est parallèle à $\overrightarrow{E}$.

Certains cristaux ont leurs indices de réfraction qui peuvent être modifiés par la présence d'un champ électrique. Cette modification est le résultat des forces qui perturbent les positions, les orientations et les formes des molécules qui constituent le cristal. Ce changement d'indice peut avoir une dépendance linéaire avec le champ électrique (effet électro-optique linéaire ou effet Pockels dans les milieux non-centrosymétriques) ou une dépendance quadratique avec le champ électrique incident (effet électro-optique quadratique ou effet Kerr dans les milieux centrosymétriques).
La détection utilisée lors de ces travaux de thèse est basée sur l'effet électro-optique linéaire que, par la suite, on écrira simplement effet électro-optique.

Cette technique de détection permet de mesurer vectoriellement le champ électrique, et d'avoir accès à la phase, à l'amplitude et à la direction. L'effet électro-optique s'appuie sur la modification des indices propres d'un cristal non-centrosymétrique sous l'action d'un champ électrique appliqué $\overrightarrow{E_\Omega}$, de pulsation Ω. Cette modification engendre une biréfringence d'un cristal par le champ électrique du signal THz. La polarisation d'un faisceau optique (appelé sonde) traversant ce cristal aura subi une rotation. La mesure de la rotation donne accès à la valeur du champ THz.

En supposant un rayonnement THz et un faisceau optique traversant un cristal électro-optique

de manière co-propagatrice suivant un axe z, les indices de réfraction associés aux composantes du champ électrique du faisceau optique suivant les axes diélectriques propres x et y sont respectivement n_x et n_y. Après un cristal de longueur L, et en l'absence de champ THz, le champ optique, en notation complexe, s'écrit :

$$\begin{cases} E_x = E_{0x} cos(\omega t - \frac{\omega}{c} n_x L) \\ E_y = E_{0y} cos(\omega t - \frac{\omega}{c} n_y L) \end{cases} \tag{1.14}$$

Avec E_{0x} et E_{0y} les composantes du champ optique à l'entrée du cristal. On note $\Phi = \frac{\omega}{c} n_x L$ et $\Delta = \frac{\omega}{c}(n_y - n_x)L$. Le champ optique se réécrit :

$$\begin{cases} E_x = E_{0x} cos(\omega t - \Phi) \\ E_y = E_{0y} cos(\omega t - \Phi - \Delta) \end{cases} \tag{1.15}$$

En utilisant les propriétés trigonométriques pour éliminer $(\omega t - \Phi)$, on trouve l'équation d'une ellipse :

$$\left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 - 2\frac{E_x}{E_{0x}}\frac{E_y}{E_{0y}} cos(\Delta) = sin^2(\Delta) \tag{1.16}$$

En posant $x = \frac{E_x}{E_{0x} sin(\Delta)}$ et $y = \frac{E_y}{E_{0y} sin(\Delta)}$, et en prenant une notation matricielle, on obtient une équation plus simple de l'ellipse :

$$x^2 + y^2 - 2xy cos(\Delta) = \begin{pmatrix} x & y \end{pmatrix} M \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = 1, \tag{1.17}$$

où $M = \begin{pmatrix} 1 & -cos(\Delta) \\ -cos(\Delta) & 1 \end{pmatrix}$. Les axes a et b de l'ellipse sont égaux à l'inverse de deux fois la racine carrée des valeurs propres de la matrice M, et leurs directions sont celles des vecteurs propres :

$$a = \frac{1}{2cos\left(\frac{\Delta}{2}\right)}, b = \frac{1}{2sin\left(\frac{\Delta}{2}\right)} \Rightarrow \xi = tan\left(\frac{\Delta}{2}\right), \tag{1.18}$$

où ξ est l'ellipticité de la polarisation. En notant θ l'angle entre l'axe a de l'ellipse et la direction y, on obtient :

$$tan(\theta) = 1 \Rightarrow \theta = \frac{\pi}{4} \tag{1.19}$$

Le changement de variables (E_x, $E_y \rightarrow x$, y) donne un angle $\theta = \frac{\pi}{4}$ constant quel que soit le déphasage du champ optique lors de la propagation de celui-ci dans le cristal.
En repassant dans l'espace (E_x, E_y), la dilatation des coordonnées déforme et incline l'ellipse. On définit l'angle d'inclinaison de la polarisation elliptique, θ', tel que $tan(\theta') = \frac{E_{0y}}{E_{0x}}$, en fonction du déphasage.
Sous l'influence d'un champ THz, l'ellipsoïde des indices du cristal est déformée. Un déphasage supplémentaire est présent, δ, dû à l'effet électro-optique. En supposant que δ soit très petit devant Δ, on peut reprendre les équations précédentes en remplaçant Δ par $\Delta + \delta$. Ainsi, les axes a et b de l'ellipse varient respectivement de δa et de δb tel que :

$$\delta a = -\frac{\delta}{4}\frac{cos\left(\frac{\Delta}{2}\right)}{sin^2\left(\frac{\Delta}{2}\right)}, \delta b = -\frac{\delta}{4}\frac{sin\left(\frac{\Delta}{2}\right)}{cos^2\left(\frac{\Delta}{2}\right)} \Rightarrow \Delta\xi = \frac{\delta}{2cos^2\left(\frac{\Delta}{2}\right)} \tag{1.20}$$

Calcul de la biréfringence induite par le champ THz

On peut alors calculer la biréfringence induite par le champ THz. L'effet électro-optique induit, par un champ $\overrightarrow{E_\Omega}$, de pulsation Ω, une déformation de l'ellipsoïde des indices du cristal. L'ellipsoïde des indices représente les caractéristiques diélectriques du cristal et est notée de façon générale :

$$\frac{x^2}{n_1^2}+\frac{y^2}{n_2^2}+\frac{z^2}{n_3^2}+2\frac{yz}{n_4^2}+2\frac{xz}{n_5^2}+2\frac{xy}{n_6^2}=1, \tag{1.21}$$

où x, y, z sont les axes propres diélectriques du cristal.
En présence d'un champ électrique, les coefficients de l'ellipsoïde sont modifiés de la manière suivante :

$$\frac{1}{n_i^2}=\frac{1}{n_{0i}^2}+\sum_{j=1}^{3} r_{ij}E_j^{THz}, \tag{1.22}$$

où i correspond aux coefficients de l'ellipsoïde, j est la composante du vecteur champ électrique, r_{ij} le coefficient électro-optique du tenseur associé au cristal et n_{0i} sont les indices du cristal en l'absence de champ électrique suivant les trois axes diélectriques propres du cristal x, y, z.
Cette modification des coefficients de l'ellipsoïde en présence d'un champ électrique se traduit par une déformation de l'orientation et de la longueur des axes de l'ellipsoïde. Elle est également vectorielle car elle est fonction des amplitudes de chacune des composantes du champ électrique. On définit le tenseur électro-optique $\overleftrightarrow{r}_{ijk}$ dont les coefficients sont indépendants du champ électrique et qui permet d'évaluer les cristaux électro-optiques selon leurs degrés de modification sous l'effet d'un champ électrique. Le tenseur électro-optique du cristal fait le lien entre les 3 composantes du champ électrique (E_x, E_y, E_z) et la perturbation linéaire des coefficients de réfraction due au champ électrique $\overrightarrow{E_\Omega}$. Il s'écrit de la manière suivante :

$$\overleftrightarrow{r}_{ijk}=\begin{pmatrix} r_{11} & r_{12} & r_{13} \\ r_{21} & r_{22} & r_{23} \\ r_{31} & r_{32} & r_{33} \\ r_{41} & r_{42} & r_{43} \\ r_{51} & r_{52} & r_{53} \\ r_{61} & r_{62} & r_{63} \end{pmatrix} \tag{1.23}$$

Les 18 valeurs du tenseur dépendent du groupe ponctuel (classe cristalline) du cristal. Par exemple, dans le cas du ZnTe que l'on utilise pour la détection et qui fait partie des cristaux cubiques isotropes, le tenseur électro-optique est :

$$\overleftrightarrow{r}_{ijk}=\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix} \tag{1.24}$$

De plus, dans le cas des cristaux de la famille des zinc-blendes (isotropes) couramment utilisés pour la détection électro-optique, les indices de réfraction se simplifient :

$$n_x=n_y=n_z=n_0 \tag{1.25}$$

Ainsi, l'équation de l'ellipsoïde devient :

$$\frac{x^2}{n_0^2}+\frac{y^2}{n_0^2}+\frac{z^2}{n_0^2}+2r_{41}E_xyz+2r_{41}E_yzx+2r_{41}E_zxy=1 \tag{1.26}$$

Pour accéder à toutes les orientations possibles relatives au cristal, on passe du référentiel propre du cristal $\mathscr{R}$ au référentiel laser $\mathscr{R}'$ qui permet de placer le vecteur d'onde optique selon l'axe Z. Ce changement de repère revient à faire deux rotations successives autour des angles ϕ et θ de l'axe initial z représenté sur la figure 1.6.

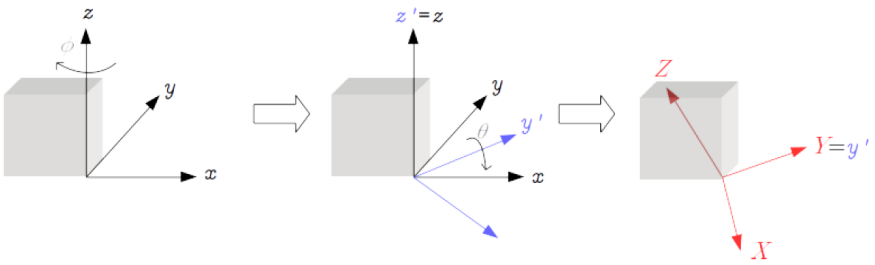


FIGURE 1.6 – Représentation du changement de repère suivant deux rotations à partir du repère propre du cristal (x, y, z) à (X, Y, Z) qui permet au vecteur d'onde optique de se propager suivant Z [104]

Les matrices de rotations associées à ce changement de repère sont les suivantes :

— Rotation autour de y :

$$R_y(\theta)=\begin{pmatrix} cos(\theta) & 0 & -sin(\theta) \\ 0 & 1 & 0 \\ sin(\theta) & 0 & cos(\theta) \end{pmatrix} \tag{1.27}$$

— Rotation autour de z :

$$R_z(\phi)=\begin{pmatrix} cos(\phi) & sin(\phi) & 0 \\ -sin(\phi) & cos(\phi) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tag{1.28}$$

Afin d'obtenir la nouvelle matrice de l'ellipsoïde des indices dans le référentiel $\mathscr{R}'$, $M_{ell/\mathscr{R}'}$ correspondant à celle vue par l'onde optique, on résout l'équation :

$$M_{ell/\mathscr{R}'}=R_y(\theta).R_z(\phi).M_{ell/\mathscr{R}}.R_y(-\theta).R_z(-\phi) \tag{1.29}$$

Plus spécifiquement dans le cadre de ces travaux de thèse, on utilise des cristaux de ZnTe de coupe <110> et <111>. Dans le cas d'un cristal de coupe <110>, c'est-à-dire avec des angles $\theta=\pi/2$ et $\phi=\pi/4$, la matrice de l'ellipsoïde des indices dans le référentiel $\mathscr{R}'$ s'écrit :

$$M_{ell/\mathscr{R}'}=\begin{pmatrix} \frac{1}{n_0^2} & \frac{(-E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{2}} & -\frac{(E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{2}} \\ \frac{(-E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{2}} & \frac{1}{n_0^2}-E_zr_{41} & 0 \\ -\frac{(E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{1}{n_0^2}+E_zr_{41} \end{pmatrix} \tag{1.30}$$

De même, dans le cas d'une coupe du cristal <111>, c'est-à-dire avec des angles $\theta = arccos(\frac{1}{\sqrt{3}})$ et $\phi = \pi/4$, la matrice de l'ellipsoïde des indices dans le référentiel $\mathscr{R}'$ est donnée par :

$$M_{ell/\mathscr{R}'} = \begin{pmatrix} \frac{1}{n_0^2} + \frac{1}{3}(-2(E_x+E_y)+E_z)r_{41} & \frac{(-E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{3}} & -\frac{(E_x+E_y-2E_z)r_{41}}{3\sqrt{2}} \\ \frac{(-E_x+E_y)r_{41}}{\sqrt{3}} & \frac{1}{n_0^2} - E_z r_{41} & \frac{(E_x-E_y)\ r_{41}}{\sqrt{6}} \\ -\frac{(E_x+E_y-2E_z)r_{41}}{3\sqrt{2}} & \frac{(E_x-E_y)r_{41}}{\sqrt{6}} & \frac{1}{n_0^2} + \frac{2}{3}(E_x+E_y+E_z)r_{41} \end{pmatrix} \tag{1.31}$$

Ensuite, il est possible de déterminer les indices n_+ et n_- dans chacun des cas, par diagonalisation de ces matrices.
On trouve, dans le cas d'un cristal <110> :

$$\Delta n = n_+ - n_- = n^3 r_{41} E \tag{1.32}$$

Et dans le cas d'un cristal <111> :

$$\Delta n = n_+ - n_- = \sqrt{\frac{2}{3}} n^3 r_{41} E \tag{1.33}$$

L'amplitude de la modification d'indice est plus faible dans le cas d'une coupe <111>, c'est-à-dire qu'il sera moins sensible d'un facteur $\sqrt{\frac{2}{3}} \approx 0,82$. Mais la coupe <111> offre l'avantage de ne pas avoir un vecteur de sensibilité prédominant. Cette propriété est utilisée dans le cas d'une détection électro-optique sensible en polarisation, détaillée dans le paragraphe 3.2. Les cristaux de ZnTe <110> sont utilisés pour trouver un premier signal THz et également optimiser le banc optique.

Choix du cristal électro-optique

Pour être choisi, le meilleur cristal électro-optique doit mesurer le champ de façon non perturbatrice et doit être non absorbant, c'est-à-dire être transparent sur une gamme assez étendue de longueur d'onde comprenant celle du rayonnement THz et celle du faisceau sonde. Les coefficients électro-optiques doivent être suffisamment élevés pour observer une variation d'indice importante en présence du champ THz. Si le cristal est isotrope, il présente deux autres avantages :

— il offre la possibilité de mesurer deux composantes du vecteur champ électrique simultanément [105]

— la polarisation du faisceau sonde traversant ce cristal reste inchangée quelle que soit la température, à la différence de cristaux anisotropes.

Les principaux cristaux utilisés pour la détection d'un rayonnement THz font partie de la famille des zinc-blendes. Le tableau 1.2 ci-dessous résume les propriétés de 5 cristaux de cette famille en s'aidant des références [48, 106] :

	ZnTe	GaAs	InP	GaP	ZnS
champ électrique demi-onde $E_\pi(l = 1\ mm)\ (kV/cm)$	89,0	161	153	252	388
sensibilité en champ (mV/cm$\sqrt{Hz}$)	3,20	5,80	5,51	9,07	12,2
$\sqrt{\varepsilon}$	3,18	3,63	3,54	3,34	2,88
n_{opt} à $(\lambda_{opt}(nm))$	2,85 (822)	3,63 (1405)	3,54 (1230)	3,18 (1030)	2,32 (470)
r_{41} (pm/V)	3,9	1,4	-1,4	-1	1,6
résonance phononique $\nu_{TO}(THz)$	5,3	8,0	10,4	11	10,8

TABLEAU 1.2 – Propriétés de cinq cristaux électro-optiques zinc-blendes

Il est important de prendre en compte l'accord de phase. Il montre que les ondes THz et laser peuvent se propager en même temps afin d'interagir. Le cristal électro-optique que nous avons choisi est le ZnTe car son indice de réfraction est presque le même dans l'infrarouge lointain ($@1\ THz,\ n_{ZnTe} = 3,17$) et le proche infrarouge ($@800\ nm,\ n_{ZnTe} = 2,85$), ce qui le rend relativement efficace pour la détection THz. De plus, son coefficient électro-optique r_{41} est le plus élevé des cristaux de la famille des zinc-blendes.

En ce qui concerne les expériences menées durant cette thèse, dans un premier temps, on utilise un cristal ZnTe de coupe <110> pour la détection du rayonnement THz afin de comprendre et développer la source plasma. Dans un deuxième temps, on développe une détection électro-optique avec un cristal ZnTe de coupe <111> qui permet de mesurer directement la polarisation du champ THz car il n'existe pas de vecteur sensibilité privilégié. Cette technique sera détaillée par la suite, dans le paragraphe 3.2.

1.6.4 Principe de détection d'un rayonnement THz par un plasma

La détection d'un rayonnement THz par un plasma permet de s'affranchir des inconvénients d'un état solide, tels qu'une puissance laser limitée, la présence de résonances phononiques ou des réflexions. Cette technique de détection étant complexe à mettre en place, nous avons choisi de ne pas l'utiliser dans le cadre de ces travaux de thèse, lui préférant une détection basée sur des cristaux électro-optiques. Elle mérite toutefois d'être expliquée pour justifier une suite dans les travaux de recherche permettant de profiter de ces avantages.

La technique est appelée THz-ABCD, pour *Air Biased Coherent Detection*, c'est-à-dire détection cohérente par air polarisé. Elle est basée sur le processus non linéaire de génération du second harmonique induit par le champ THz. Elle permet d'obtenir typiquement une bande passante supérieure (de 0,1 à 15 THz ou plus) et une sensibilité de détection plus élevée. En effet, le schéma fait intervenir une détection hétérodyne cohérente par l'intermédiaire d'un champ électrique externe E_{DC} qui joue le rôle d'oscillateur local contrairement aux détecteurs THz solides.

La figure 1.7 montre typiquement la forme d'onde et le spectre associés à une impulsion THz provenant de techniques basées sur un plasma.

La détection THz-ABCD mesure le champ de second harmonique généré par un processus non linéaire appelé mélange à quatre ondes entre 2 photons, à la pulsation fondamentale ω et un photon THz, à la pulsation Ω_{THz}. Ce processus conduit à la génération d'un photon à la pulsation du second harmonique 2ω. Cette détection est le phénomène inverse de la génération : le processus

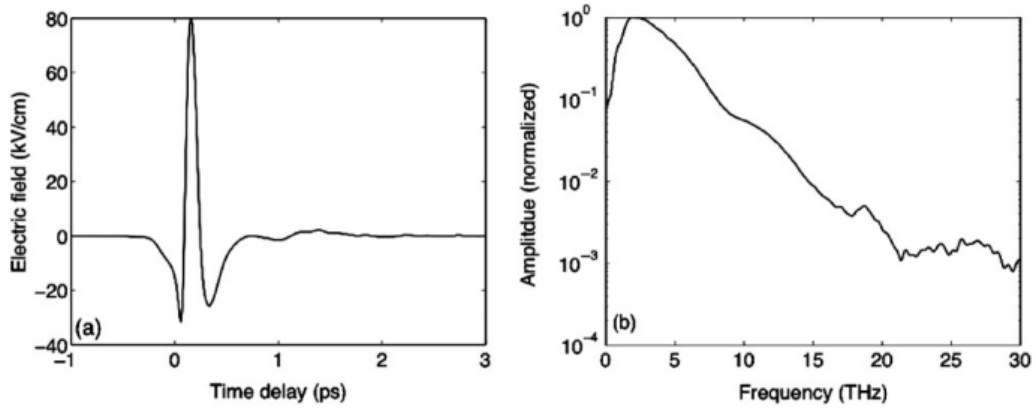


FIGURE 1.7 – (a) La forme d'onde (b) et le spectre associé à une impulsion THz typique émis et détecté par des filaments plasma [107].

de génération est le mélange de deux photons à ω et un photon à 2ω. Certains détails physiques entre la génération et la détection sont cependant assez différents.

Le processus de mélange à quatre ondes qui génère un champ du second harmonique provenant du champ fondamental et du THz induit peut s'écrire : $2\omega = \omega + \omega + \Omega_{THz}$ et $2\omega = \omega + \omega - \Omega_{THz}$. Le champ du second harmonique émis est proportionnel au produit des trois champs électriques incidents tel que :

$$E_{2\omega} \propto P_{2\omega} = \chi^{(3)} E_\omega E_\omega E_{THz}, \tag{1.34}$$

où $\chi^{(3)}$ est la composante non linéaire du troisième ordre du tenseur de susceptibilité et $P_{2\omega}$ est la polarisation non linéaire du second harmonique. Lors d'une mesure, c'est généralement la puissance du second harmonique qui est mesurée et non le champ électrique. La quantité mesurée est proportionnelle à l'intensité, elle-même proportionnelle au carré du champ électrique :

$$I_{2\omega} \propto |E_{2\omega}|^2 \propto \left(\chi^{(3)} I_\omega\right)^2 E_{THz}^2. \tag{1.35}$$

Toutefois, cette équation montre que le signal mesuré est proportionnel au carré du champ THz, l'information sur la phase du champ étant alors perdue. Mais, comme pour la génération THz induite par le second harmonique dans un plasma, le signal du second harmonique peut être produit en utilisant un champ électrique externe. En supposant que la susceptibilité non linéaire pour les deux processus soit la même et que les faisceaux laser soient des ondes planes, on peut écrire l'expression suivante :

$$E_{2\omega} \propto \chi^{(3)} E_\omega E_\omega (E_{THz} + E_{DC}), \tag{1.36}$$

que l'on peut écrire en montrant les termes croisés :

$$I_{2\omega} \propto |E_{2\omega}|^2 \propto \left(\chi^{(3)} I_\omega\right)^2 \left(E_{THz}^2 + 2E_{THz}E_{DC} + E_{DC}^2\right). \tag{1.37}$$

Contrairement au cas d'un oscillateur local produit par le second harmonique généré par des effets de surface ou par la génération de la lumière blanche, la phase du second harmonique peut être contrôlée. En changeant simplement la direction du champ électrique appliqué, cela entraîne un décalage de la phase du second harmonique. Le signe du terme croisé change alors en laissant les autres termes inchangés. Ainsi, en utilisant un champ AC synchronisé sur la répétition des impulsions laser, le terme croisé peut être modulé à la fréquence du champ AC.

Par conséquent, l'application d'un champ électrique externe se traduit par un processus hétérodyne qui permet de détecter le terme cohérent de la mesure. Donc, aucune exigence n'est imposée

aux amplitudes relatives des champs THz et de la polarisation pour obtenir une détection cohérente afin d'obtenir la mesure d'un champ THz intense sur un petit fond de bruit, améliorant la plage dynamique possible de détection.

1.7 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, on a montré que la génération par claquage dans l'air permet d'utiliser tout le potentiel d'un laser amplifié femtoseconde conduisant à la création d'un filament plasma. Cette méthode de génération permet de s'affranchir d'émetteur solide, et donc de seuil de dommage des dispositifs des techniques d'émissions THz plus traditionnelles.

La méthode de génération THz par claquage dans l'air se divise en trois familles. La première utilise uniquement l'impulsion fondamentale du laser pour générer un rayonnement THz, expliqué par la force pondéromotrice combinée à l'oscillation de sillage du plasma. Mais celle-ci a un rendement de conversion optique - THz faible comparé à d'autres méthodes d'émissions THz impulsionnelles. Pour augmenter ce rendement, on préférera les deux autres familles qui ajoutent un élément permettant de distendre le champ électrique de manière transversale.

La deuxième famille ajoute un champ électrique très intense par l'intermédiaire d'une source haute tension. La source placée au niveau du filament plasma crée un courant d'électrons libres permettant une accumulation cohérente du rayonnement THz et donc une augmentation de l'amplitude des impulsions THz. Mais l'utilisation d'une source haute tension est contraignante.

La troisième famille ajoute un cristal non linéaire permettant d'obtenir un faisceau optique composé des impulsions fondamentale ω et de son second harmonique 2ω. Cette technique expliquée par un redressement à quatre ondes donne un meilleur rendement de conversion optique - THz. Elle permet de générer un rayonnement THz très intense et large bande. C'est pourquoi nous avons choisi de construire un banc optique basé sur cette troisième famille.

Pour détecter ce rayonnement, on a choisi la détection électro-optique. Elle offre un bon compromis entre l'expérience et la connaissance acquise du laboratoire et la performance de celle-ci.

2

Conception d'un banc optique pour générer un rayonnement THz via un filament plasma bicolore

La conception d'un banc optique pour générer des ondes THz est complexe. La génération THz par filament plasma a été choisie pour son aptitude à générer des impulsions THz intenses et large bande.

Sommaire

2.1 Description et fonctionnement du banc optique 35
2.2 Optimisations du banc 36
2.2.1 Détection des premiers signaux THz par claquage dans l'air à l'IMEP-LAHC 36
2.2.2 Etude du bruit de l'expérience 37
2.2.3 Etude de l'influence de l'optique de focalisation sur la génération THz . 40
2.2.4 Etude de la génération du second harmonique 42
2.2.5 Étude du champ THz rayonné en fonction de la puissance optique . . . 43
2.3 Profil transverse du rayonnement THz 46
2.4 Conclusion 47

2.1 Description et fonctionnement du banc optique

Le banc optique décrit dans ce chapitre a été développé au cours de ma thèse autour d'une chaîne laser amplifiée de chez COHERENT (modèle : Libra He+). Cette chaîne laser délivre des impulsions laser centrées à 800 nm avec une énergie de 5 mJ par impulsion et cadencées à 1 kHz. Les impulsions ont une durée de 45 fs.

Le montage décrit ci-après (figure 2.1) permet de générer et de détecter des impulsions THz ultra-brèves (sub-picoseconde). Pour ce faire, une lame séparatrice non polarisante est située en sortie de la chaîne laser afin de séparer le faisceau principal en une pompe et une sonde optique dont les puissances moyennes sont respectivement de 3,2 W et 0,4 W. Un système optique composé d'une lame demi-onde (HWP) et d'un polariseur permet de faire varier continument la puissance du faisceau pompe entre une centaine de mW et 3,2 W et ce en ne jouant que sur l'orientation de la demi-onde. Ceci permet d'étudier le phénomène de génération THz en fonction de la puissance optique décrit ultérieurement dans ce chapitre (paragraphe 2.2.5). Le faisceau pompe est ensuite focalisé à l'aide d'une optique réflective (miroir parabolique hors axe, MP1 sur la figure 2.1) ou réfractive (lentille). L'impact de ces différentes optiques de focalisation sur le signal THz généré est également étudié (paragraphe 2.2.3). Un cristal doubleur de $\beta - BBO$ positionné précisément en amont du point focal, permet de générer le second harmonique du faisceau pompe. Le recouvrement spatio-temporel de la pompe et du second harmonique au niveau du plasma photo-généré est à l'origine du rayonnement THz selon le principe de mélange à quatre ondes décrit dans le chapitre 1. Cette impulsion THz, débarrassée du faisceau optique à l'aide d'un filtre (plaque de téflon de 5 mm d'épaisseur), est ensuite mise en forme et acheminée jusqu'au système de détection par le jeu de quatre miroirs paraboliques hors axe (MP2, MP3, MP4 et MP5).

Le système de détection est basé sur l'effet électro-optique tel que décrit dans le paragraphe 1.6.3, et a été mis en œuvre car largement employé et maîtrisé dans le laboratoire. Le faisceau sonde est focalisé dans le cristal électro-optique de ZnTe de coupe <110>. Une lame quart d'onde (QWP) située avant le cristal de ZnTe permet de transformer le faisceau sonde initialement polarisé rectilignement en une polarisation circulaire. Le champ THz induit par effet électro-optique une biréfringence dans le ZnTe. Cette biréfringence proportionnelle à l'amplitude du champ THz engendre une modulation de l'état de polarisation du faisceau sonde. Un prisme de Wollastone (WP) sépare les deux composantes du faisceau sonde dont les intensités respectives dépendent de son état de polarisation. Une photo-diode balancée génère finalement un courant proportionnel à la différence des intensités des deux composantes du faisceau sonde : en l'absence de champ THz le faisceau sonde est polarisé circulairement et donc le courant est nul. Sous l'action d'un champ THz, la biréfringence induite dans le ZnTe se traduit par un courant proportionnel à l'amplitude du champ.

Le photo-courant délivré par la photo-diode balancée est si faible (de l'ordre du nA) qu'il est indispensable d'utiliser une détection synchrone (*lock-in amplifier*) synchronisée sur la fréquence d'un hacheur mécanique (*chopper*) placé sur le trajet du faisceau THz. Une ligne à retard modifie le délai entre les impulsions sonde et THz de manière à reconstruire la forme temporelle du signal THz. Cette technique d'acquisition en temps équivalent est incontournable vu le pas temporel nécessaire (< 10 fs) pour la résolution de l'impulsion THz. Les lignes à retard typiquement utilisées dans ces montages présentent un pas minimum de déplacement spatial d'un micron, correspondant à un pas temporel d'environ 7 fs.

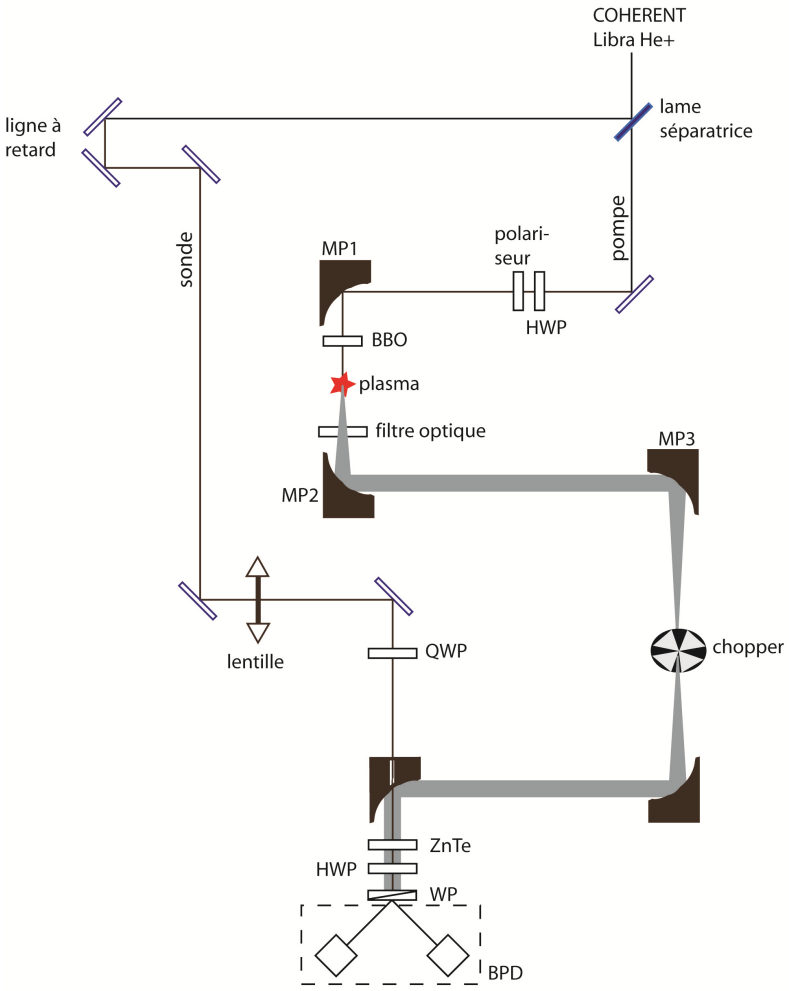
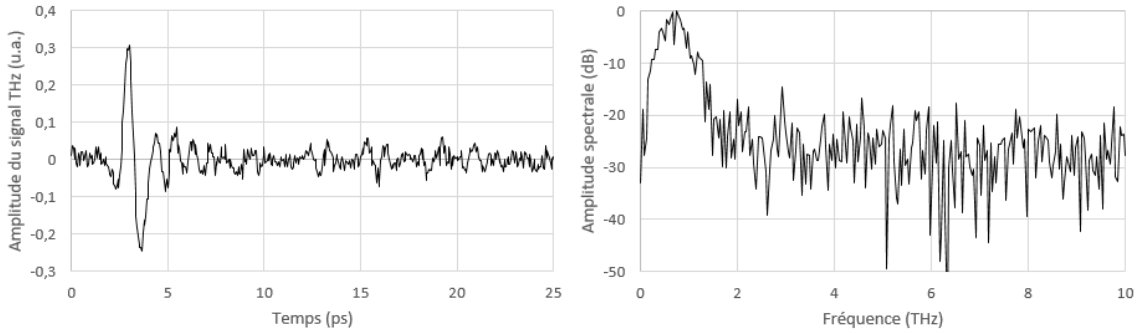


FIGURE 2.1 – Schéma de l'expérience montée au début des travaux de thèse comprenant une génération THz via un filament plasma bicolore et une détection électro-optique. MP : miroir parabolique, QWP : lame quart d'onde, HWP : lame demi onde, WP : prisme de Wollaston, BDP : photo-diode balancée.

2.2 Optimisations du banc

2.2.1 Détection des premiers signaux THz par claquage dans l'air à l'IMEP-LAHC

Le système décrit précédemment, et développé dans les premiers mois de thèse, a permis de détecter les premières impulsions THz générées par claquage dans l'air au sein du laboratoire. Outre l'alignement optique, l'enregistrement de ces impulsions a nécessité le développement d'un logiciel "fait maison" en langage Python, qui contrôle en temps réel la position de la ligne à retard et permet en parallèle l'acquisition du photo-courant amplifié par le *lock-in*. La figure 2.2 montre la forme temporelle d'une impulsion THz ainsi enregistrée (a) et son spectre associé (b).
L'impulsion THz présente un pic principal à 3 ps et de largeur de l'ordre de quelques ps, suivi d'oscillations dues à l'absorption par la vapeur d'eau contenue dans l'air ambiant. Le signal est très bruité. Le spectre associé au signal, obtenu par transformée de Fourier s'étend de 0,2 THz jusqu'à 1,5 THz et présente une dynamique d'environ 20 dB à 0,6 THz. On observe de faibles raies d'absorption dues à la vapeur d'eau dans le spectre. Selon Matsubara *et al.* [103], la durée des impulsions est le facteur limitant la bande passante. Notre chaîne laser délivrant des impulsions d'une durée de 45 fs devrait nous permettre de générer des fréquences THz allant jusqu'à 30 THz. Les paragraphes suivants vont s'attacher à étudier l'impact des différents paramètres ex-



(a) (b)

FIGURE 2.2 – (a) Signal temporel obtenu grâce au banc de spectroscopie avec pour émetteur un filament plasma bicolore et pour détection électro-optique un cristal ZnTe <110> de 0,2 mm d'épaisseur. (b) Spectre associé.

périmentaux (puissance de pompe, alignement du cristal doubleur, optique de focalisation) dans le but d'optimiser le signal généré.

2.2.2 Etude du bruit de l'expérience

Dès les premières acquisitions de signaux THz, on a pu observer un problème de reproductibilité. Cette étude permet de comprendre l'origine du bruit afin de le réduire pour réaliser des mesures les plus précises possible. Ce bruit est clairement visible par superposition des différents signaux temporels THz acquis à différents instants sans modification du banc expérimental. La figure 2.3 montre 10 signaux temporels mesurés en l'espace de moins d'une heure. On peut observer que les signaux ne se superposent pas exactement, mettant en exergue des fluctuations de deux types : fluctuations temporelles de l'impulsion THz (gigue THz) et de son amplitude. En un point temporel donné, la variation de signal THz est la somme de ces deux fluctuations a priori non dissociables. Néanmoins, et en première approximation, il est possible de les décorréler en certains points temporels pour quantifier leurs contributions respectives. Pour tous les points de mesures auxquels la dérivée temporelle de l'impulsion THz est nulle, la variation du signal observée ne peut être due qu'à la fluctuation en amplitude du système (δA). Par exemple, la zone 1 représentée sur la figure 2.3 montre l'impact de cette fluctuation. A l'inverse, la zone 2 centrée sur le point d'inflexion du pic principal de l'impulsion THz (dérivée temporelle de l'impulsion maximum) montre une variabilité du signal majoritairement due à la gigue THz (δt). Il est à noter que compte tenu du montage expérimental (figure 2.1), la gigue THz n'est aucunement liée à la gigue du laser. En effet, le système de détection en temps équivalent ne dépend que du décalage temporel relatif entre la pompe et la sonde. Par conséquent, la gigue laser impacte de façon équivalente ces deux faisceaux et le signal THz détecté devrait rester constant pour une position de la ligne à retard fixée.

Dans la suite de ce chapitre, le bruit en amplitude correspondra à l'écart-type du signal THz mesuré au sommet de l'impulsion (zone 1) alors que la gigue THz (bruit en phase) sera obtenue au point d'inflexion de l'impulsion (zone 2). Nous avons voulu dans un premier temps quantifier ces deux sources de bruit en fonction du temps d'intégration (τ) du *lock-in amplifier*. Pour réaliser cette étude, nous avons développé un programme permettant d'enregistrer le signal toutes les 500 ms sur une plage de 300 secondes. La figure 2.4 montre l'évolution des bruits en amplitude et en phase en fonction du temps d'intégration du signal.

Comme attendu, les niveaux de bruit vont en décroissant avec l'augmentation du temps d'intégration. Le bruit en amplitude décroit en τ^{-1}, comme le montre le bon accord entre les points de

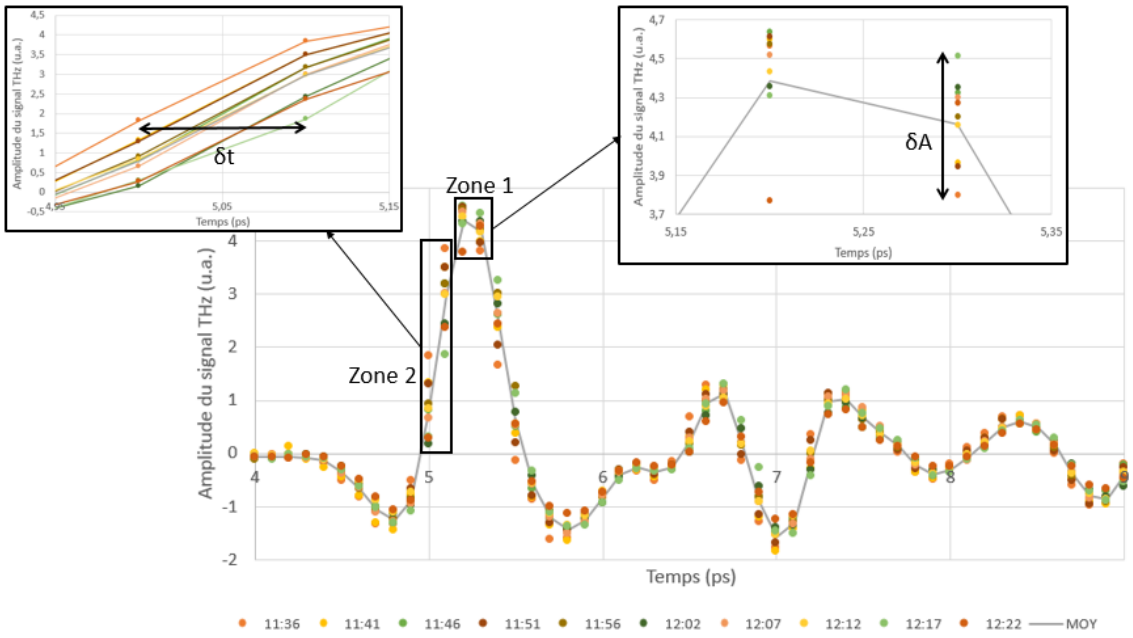


FIGURE 2.3 – 10 signaux temporels (points de mesures) et la moyenne de ces signaux (trait plein gris). Les encadrés correspondent aux agrandissements des zones 1 et 2.

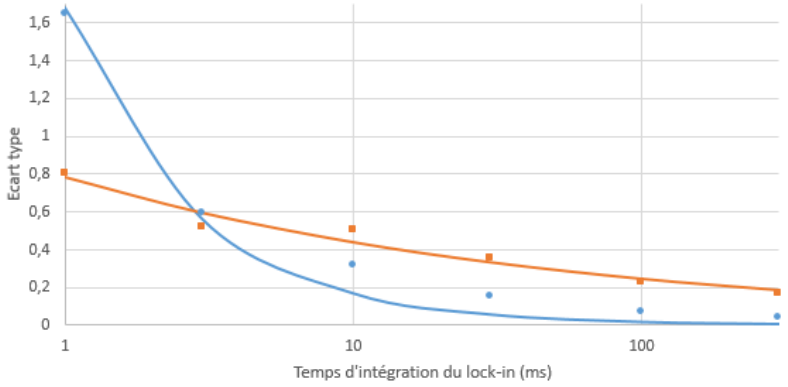


FIGURE 2.4 – Bruits en amplitude (point bleu) et en phase (carré orange) mesurés en fonction du temps d'intégration du lock-in, ainsi que leurs courbes d'ajustements respectives en τ^{-1} (trait plein bleu) et en $\tau^{-1/4}$ (trait plein orange).

mesures et la courbe d'ajustement de la figure 2.4, ce qui est prédit par la théorie. Le bruit en phase quant à lui évolue en $\tau^{-1/4}$ et trouve son origine dans les fluctuations de la différence de marche entre les faisceaux pompe et sonde. Ces différences de marche peuvent être dues à des vibrations mécaniques au niveau des différents optiques, et plus probablement à des fluctuations de la position de la ligne à retard restée a priori à une position fixe durant toute la campagne de mesures, mais néanmoins alimentée électriquement. Pour aller plus loin dans les compréhensions du bruit du banc expérimental, on ajustera le temps d'intégration sur 300 ms pour les études suivantes. Ce temps d'intégration est un bon compromis entre un moyennage de points permettant de limiter les fluctuations tout en conservant un temps d'acquisition raisonnable (inférieur à 5 min par mesure).

Concernant le bruit en amplitude, celui-ci peut être induit par les fluctuations de la puissance du faisceau laser délivré par la chaîne amplifiée. En effet, selon le modèle simple FWM présenté dans le paragraphe 1.5.1 du chapitre 1, l'amplitude du champ THz est directement liée à la puissance laser (cf équation (1.12) à la page 22). Ainsi, toute fluctuation de puissance laser se traduira par une variation de l'amplitude du champ THz. Pour vérifier cette hypothèse, on prélève 30%

du faisceau laser en amont de l'expérience à l'aide d'une lame séparatrice. Elle permet la mesure simultanée du champ THz au sommet de l'impulsion à l'aide de la détection électro-optique et de la puissance laser du faisceau prélevé à l'aide d'un puissance-mètre. La figure 2.5 présente les évolutions temporelles de la puissance du faisceau laser et de l'amplitude du signal THz sur plusieurs centaines de secondes et ce avec un pas de 0,5 seconde. Nous observons sur ces deux courbes des dérives lentes et des fluctuations rapides certainement corrélées. Comme le champ THz est proportionnel à la puissance optique au carré, nous sommes en mesure de quantifier les variations de champ THz induites par les fluctuations de puissance laser et de les comparer aux fluctuations mesurées. Selon les mesures effectuées et présentées par la figure 2.5, une courbe d'ajustement affine nous permet d'obtenir une dérive lente de la puissance optique d'environ $5 \cdot 10^{-6}$ W/s autour d'une valeur moyenne d'un watt. Cette puissance optique permettant de générer un champ THz de 4 u.a. (unité arbitraire), il en découle que la dérive lente engendre à elle seule une dérive du signal THz de l'ordre de $1,2 \cdot 10^{-4}$ u.a./s. Une courbe d'ajustement affine de l'amplitude du champ THz nous indique une dérive lente de celui-ci de l'ordre de $9 \cdot 10^{-4}$ u.a./s.
Si l'on considère maintenant les fluctuations rapides, celles-ci sont calculées à partir de l'écart-type de chacune des courbes de la figure 2.5. Les variations rapides de la puissance optique mesurées par un puissance-mètre dont la constante de temps est de quelques centaines de ms (suffisant pour mesurer des fluctuations entre 2 points de mesures consécutifs $\approx$ 500 ms), sont égales à $2 \cdot 10^{-3}$ W. Selon le calcul, cette valeur engendre une fluctuation rapide du champ THz de l'ordre de $4,8 \cdot 10^{-2}$ u.a., ce qui est comparable à la valeur extraite de l'écart-type du champ THz ($5,7 \cdot 10^{-2}$ u.a.).
Au vu des résultats ci-dessus, plus de 80% des fluctuations rapides du signal THz s'expliquent par les fluctuations de la puissance laser, quand un peu moins de 15% des dérives lentes de celui-ci sont liées aux dérives de la puissance optique. En augmentant le temps d'intégration du *lock-in amplifier*, les fluctuations rapides seraient limitées (cf figure 2.4), en revanche le temps d'acquisition augmenterait et rendrait nos mesures plus sensibles aux dérives lentes. Toutefois, s'affranchir de ces dérives lentes induites par les conditions expérimentales qui impactent les caractéristiques laser (puissance optique et pointage laser), nécessiterait un meilleur contrôle de la température et de l'hygrométrie du laboratoire. Si plus des 4/5ème des fluctuations rapides sont inhérentes à la chaîne laser et donc intrinsèquement inaccessibles, l'origine de plus de 85% des dérives lentes restent à être identifiées.

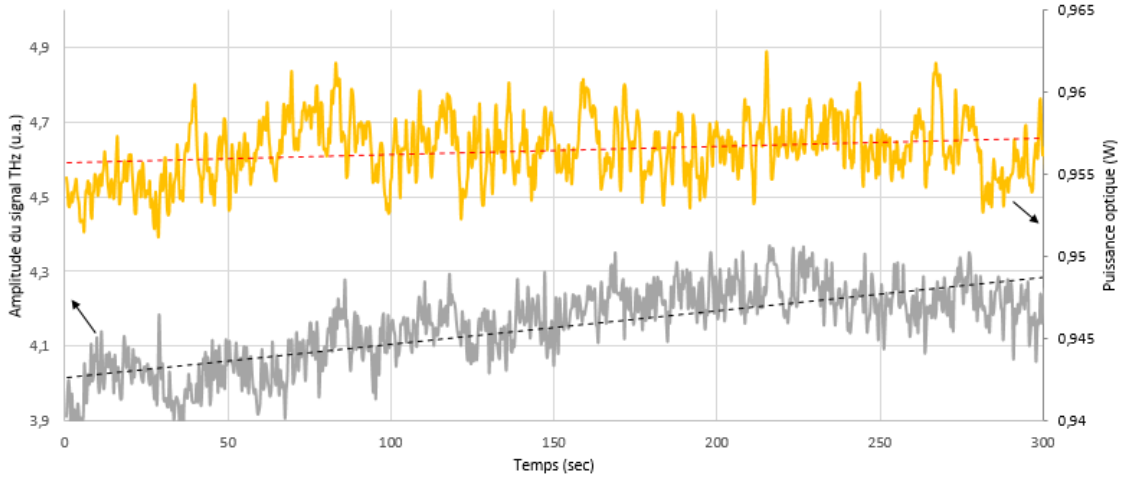


FIGURE 2.5 – Amplitude du signal THz (gris) et puissance optique (jaune) en fonction du temps, ainsi que leurs courbes d'ajustements linéaires respectives en pointillés.

Une dérive lente est souvent due à un problème de température fluctuante dont les échelles de temps sont de plusieurs secondes. On émet, ici, l'hypothèse que le filament plasma chauffe très lo-

calement l'air ambiant de la zone dans laquelle le rayonnement THz est généré. L'impulsion THz porte potentiellement les stigmates de cette fluctuation thermique. Pour vérifier cette hypothèse, une fois encore on se place au sommet de l'impulsion THz, et on effectue une première acquisition du signal au cours du temps, et ce à partir de l'instant t_0, correspondant à l'ouverture de l'obturateur du faisceau laser. Cette mesure est ensuite comparée à une seconde acquisition faite à $t_0 + 10$ minutes. En considérant ce temps suffisamment long pour atteindre la thermalisation de la zone de génération THz, nous devrions obtenir un signal plus stable pour cette deuxième acquisition que pour la première. Cette procédure expérimentale a été réalisée avec une seconde série de mesures dont les résultats sont présentés par la figure 2.6. En comparant les deux séries de mesures, aucune corrélation ne peut s'établir entre la thermalisation de la zone de génération THz et la stabilité du signal THz. En effet, lors de la première série de mesures, les fluctuations du signal obtenues à $t_0 + 10$ minutes sont plus faibles qu'à t_0, validant notre hypothèse. En revanche, lors de la deuxième série de mesures, nous constatons le phénomène inverse, ne permettant pas de conclure quant à la corrélation entre la thermalisation de la zone de génération THz et la stabilité du signal THz.

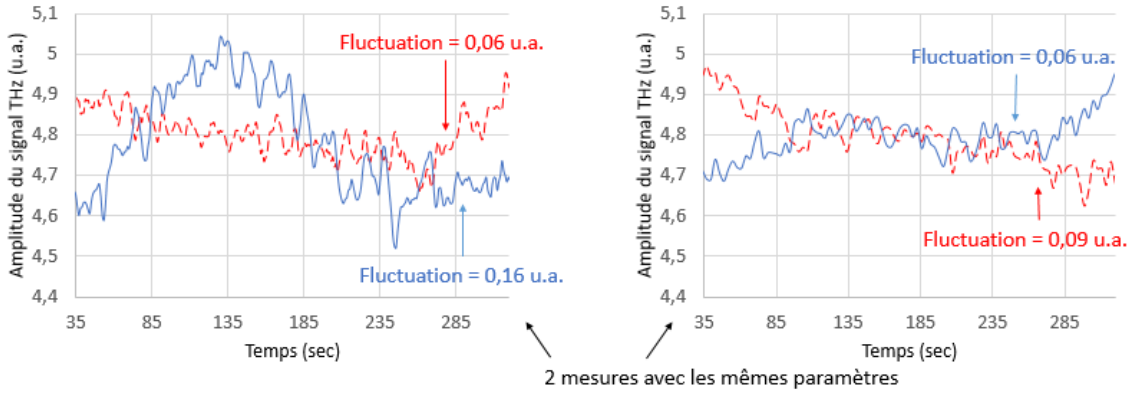


FIGURE 2.6 – Deux séries de mesures pour enregistrer le maximum du signal temporel avec en trait plein bleu le tracé du maximum du signal temporel mesuré dès la génération du filament plasma, et en pointillés rouges le maximum du signal THz mesuré 10 minutes après la génération du filament plasma.

Une autre hypothèse de l'origine d'une dérive lente est la présence de mouvement d'air dans la pièce dû au système de climatisation. En effet, une circulation d'air peut faire pression sur des optiques, ce qui désalignerait les faisceaux laser et/ou THz. Pour simuler un mouvement d'air, on place un ventilateur au dessus de l'expérience en le faisant pivoter de droite à gauche. La figure 2.7 montre le maximum du signal THz en fonction du temps. On a ajouté une courbe de tendance sinusoïdale dont la période correspond à celle du mouvement du ventilateur validant ainsi l'hypothèse. On peut en conclure que les flux d'air peuvent avoir une influence significative sur le bruit des mesures. Pour s'accommoder de la contribution du bruit dû au mouvement d'air, nous avons encapsulé le faisceau THz et ses miroirs paraboliques dans une enceinte conçue et réalisée par nos soins. Cette enceinte nous permet également d'assécher l'air le long du chemin optique THz.

Pour conclure sur l'étude du bruit, on protégera le plus possible l'expérience des flux d'air pour éviter les dérives lentes, et on utilisera une constante de temps de 300 ms pour intégrer les mesures afin de réduire les variations rapides tout en conservant un temps d'acquisition raisonnable.

2.2.3 Etude de l'influence de l'optique de focalisation sur la génération THz

Comme montré sur le schéma de la figure 2.1, l'optique de focalisation joue un rôle dans le système de génération THz par claquage dans l'air dans la mesure où elle impose les conditions expérimentales nécessaires à la filamentation et donc à la génération THz. De plus, étant située

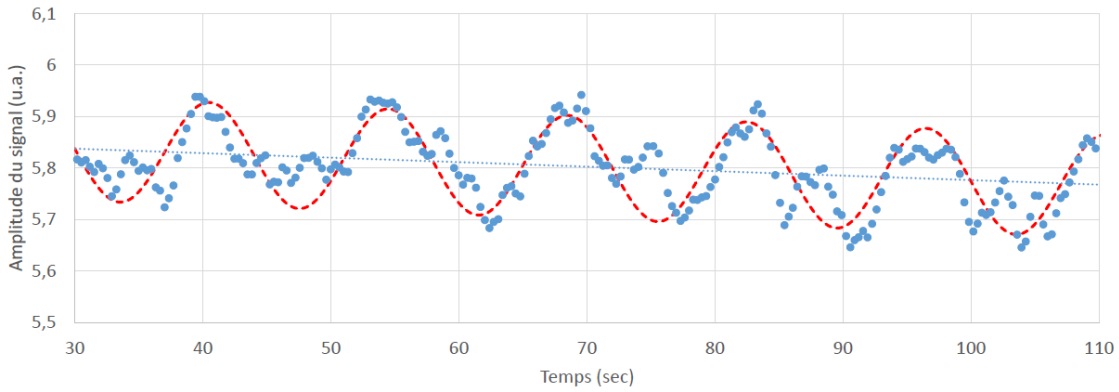


FIGURE 2.7 – Maximum du signal THz en fonction du temps (points bleus) ainsi qu'une courbe de tendance sinusoïdale (pointillés rouges).

en amont du cristal doubleur (BBO), sa position impacte également le rendement de SHG et donc l'efficacité de génération THz. Dans ce paragraphe, nous ne prenons en compte que l'influence de la focale sur la filamentation.
Pour cette étude, nous avons d'abord choisi de tester un miroir parabolique de 5 cm de distance focale qui a l'avantage de ne pas engendrer de dispersion ni de perte de Fresnel. En revanche, cette optique est difficile à aligner et est coûteuse. Pour tester d'autres distances focales, on a choisi de faire des mesures avec deux lentilles de distance focale de 10 cm et 20 cm. La figure 2.8 montre les signaux temporels pour les 3 optiques de focalisation. Le bruit des signaux THz temporels obtenus avec les lentilles est relativement similaire. On voit que l'amplitude du signal et la dynamique (figure 2.9) sont relativement plus importants pour la lentille de 20 cm de distance focale. Notons qu'une distance focale plus importante donne un filament plasma plus long et moins dense, alors qu'une petite focale donne un plasma plus ponctuel et très dense. La génération THz en fonction de la distance focale se résume donc en un compromis entre densité de gaz ionisé et longueur du filament. Dans cette vision simple de la génération THz par le phénomène non linéaire de mélange à quatre ondes au sein du filament, la longueur d'interaction entre le fondamental et l'harmonique (équivalent à la longueur du filament) devra être inférieure à la longueur de dispersion dans le plasma et ce afin d'assurer l'accord de phase entre les trois ondes (ω, 2ω et Ω_{THz}). Si l'accord de phase n'est pas respecté, le processus de génération THz par claquage dans l'air n'est pas efficace. Comme cette longueur de dispersion est inversement proportionnelle à la fréquence THz, plus le filament sera long et moins le spectre THz généré sera large. En revanche plus le filament est court, moins le rendement de conversion optique / THz sera élevé. Les figures 2.8 et 2.9 sont en accord avec cette description phénoménologique.

En effet, plus la focale (5 cm) est courte et plus le filament est court, donnant naissance à une impulsion THz moins intense mais plus large bande. A l'inverse, plus la focale est longue (20 cm) plus l'impulsion est intense mais moins large bande.

Il est à noter que ce comportement est similaire et bien connu dans le cadre de la génération THz par rectification optique dans les cristaux électro-optiques : plus le cristal est fin et plus l'impulsion THz générée est brève (large bande) mais faible. Il en est de même pour la détection électro-optique.
Il s'agit alors de trouver un compromis. Nous choisirons de prendre pour les études suivantes une lentille de focale de 20 cm, comme de nombreuses autres expériences le font avec un laser comparable au nôtre [95, 108, 109]. De plus, ce choix de focale nous permet de privilégier un signal THz certes moins large bande mais plus intense, ce qui est préférable pour la suite des études.

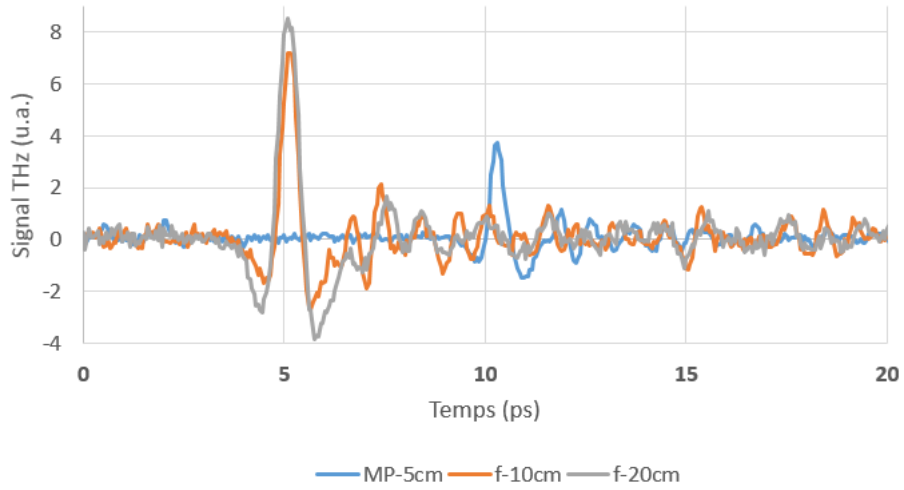


FIGURE 2.8 – Signaux temporels des impulsions THz obtenues avec différentes optiques de focalisation : miroir parabolique de distance focale de 5 cm (MP-5cm en bleu) ou une lentille de distance focale de 10 cm (f-10cm en orange) et 20 cm (f-20cm en gris).

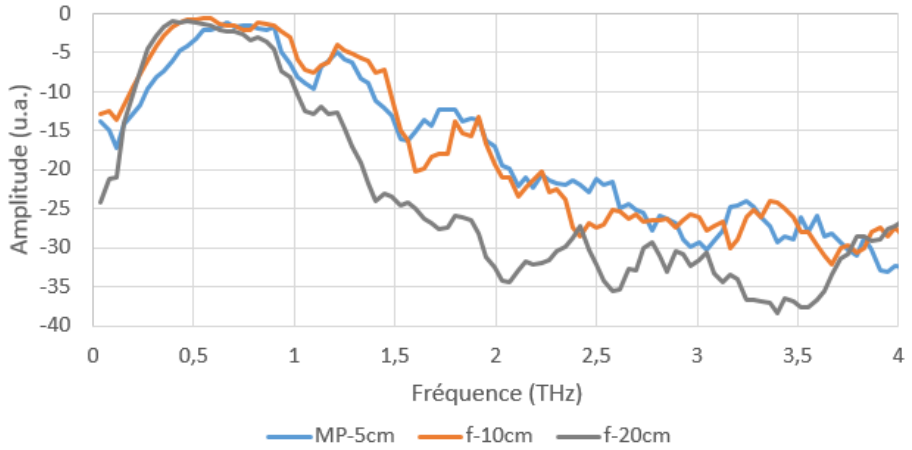


FIGURE 2.9 – Spectres associés aux impulsions THz en changeant la distance focale de l'optique de focalisation : miroir parabolique de distance focale de 5 cm (MP-5cm en bleu) ou une lentille de distance focale de 10 cm (f-10cm en orange) et 20 cm (f-20cm en gris), montrés sur la figure 2.8.

2.2.4 Etude de la génération du second harmonique

Comme présentée dans le paragraphe 1.5, la génération du second harmonique ($E_{2\omega}$) est primordiale pour assurer un bon rendement de génération THz par claquage dans l'air. Pour ce faire, le faisceau laser traverse un cristal de $\beta - BBO$ qui est un cristal non linéaire dédié à la génération de second harmonique optimisé pour un faisceau laser de longueur d'onde centrée à 800 nm. Expérimentalement, le positionnement du cristal de $\beta - BBO$ entre l'optique de focalisation et le plasma, son orientation mais aussi l'angle d'incidence (tilt) sont autant de degrés de liberté qu'il faut ajuster avec précision pour optimiser la génération d'un signal THz.

Dans un premier temps, on étudie l'influence de l'angle α que forme l'axe ordinaire du $\beta - BBO$ relativement à la polarisation linéaire du faisceau incident. Il détermine l'efficacité de SHG. Pour trouver le bon angle α pour lequel la puissance du second harmonique est maximale, on réalise l'expérience suivante : le faisceau laser fondamental ω traverse le cristal de $\beta - BBO$ de type I et de 200 μm d'épaisseur, monté sur une platine de rotation. On place un miroir dichroïque en aval du cristal, afin de séparer spatialement le fondamental de pulsation ω et le second harmonique de

pulsation 2ω. La puissance de ce dernier est alors mesurée en fonction de α pour une puissance laser incidente donnée (1,7 W). La figure 2.10 montre le comportement de la SHG en fonction de α.

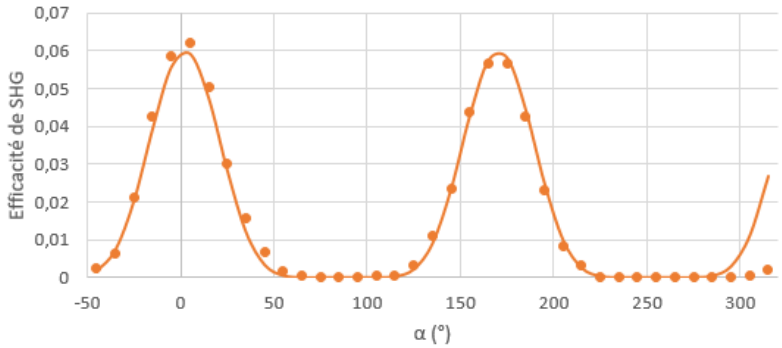


FIGURE 2.10 – Efficacité du processus de SHG en fonction de l'angle α et sa courbe d'ajustement en $sin^4(\alpha)$.

Ces mesures permettent de calculer l'efficacité de SHG. Elle est de 6% pour l'angle optimal. La courbe d'efficacité de SHG suit une loi en $sin^4(\alpha)$ comme montré dans la référence [94]. Cette référence met en avant le fait que la meilleure efficacité de SHG ne signifie pas un meilleur rendement de conversion optique / THz. En effet, lorsque l'efficacité de SHG est optimale (faisceau incident polarisé selon l'axe ordinaire du $\beta - BBO$) les polarisations du fondamental et du second harmonique sont croisées : ω sur l'axe ordinaire et 2ω sur l'axe extraordinaire (type I). Ainsi, pour avoir un rendement de conversion optique / THz optimal, un compromis doit être trouvé sur l'angle α pour assurer simultanément un bon rendement de SHG au niveau $\beta - BBO$ et la colinéarité des polarisations du fondamental et du second harmonique. Selon la référence [94], ce compromis est trouvé pour un angle $\alpha = 55°$, angle choisi pour la suite de nos études.

Dans un second temps, on veut vérifier le comportement du cristal doubleur en fonction de différentes puissances optiques. Nous avons séparé spatialement le rayonnement du fondamental et de son second harmonique en sortie du cristal de $\beta - BBO$ à l'aide cette fois-ci d'un prisme dont le seuil de dommage est plus élevé que le miroir dichroïque utilisé précédemment. Nous avons réglé le tilt du $\beta - BBO$ pour que le signal THz soit le plus intense possible à une puissance optique de pompe incidente donnée. On étudie ensuite le processus de conversion ω / 2ω en traçant la puissance du second harmonique en fonction de la puissance du fondamental en entrée de $\beta - BBO$. La figure 2.11 donne les résultats de cette expérience. Une courbe d'ajustement quadratique (trait plein) montre très clairement que le processus de génération du second harmonique est un processus non linéaire d'ordre deux, comme attendu, dépendant directement de la susceptibilité diélectrique non linéaire $\chi^{(2)}_{BBO}$ du $\beta - BBO$.

2.2.5 Étude du champ THz rayonné en fonction de la puissance optique

Selon le modèle simple FWM présenté dans le paragraphe 1.5.1 du chapitre 1, l'amplitude du champ THz généré est proportionnelle au carré de la puissance laser (cf équation (1.12) à la page 22) tel que :

$$E_{THz} \propto \chi^{(3)}_{plasma} E_\omega E_\omega E^*_{2\omega} \propto \chi^{(3)}_{plasma} \chi^{(2)}_{BBO} P^2_\omega \tag{2.1}$$

Cependant, il faut également considérer que le signal THz généré dans le filament sera sensible à la présence de charges qui absorbent une partie du rayonnement. Plus ces charges sont nombreuses plus le rayonnement est absorbé. Ainsi, en augmentant la puissance optique on s'attend à générer plus de THz, au travers du processus de FWM, mais également à augmenter la densité de porteurs et donc à augmenter le coefficient d'absorption. Si l'on considère simplement une densité

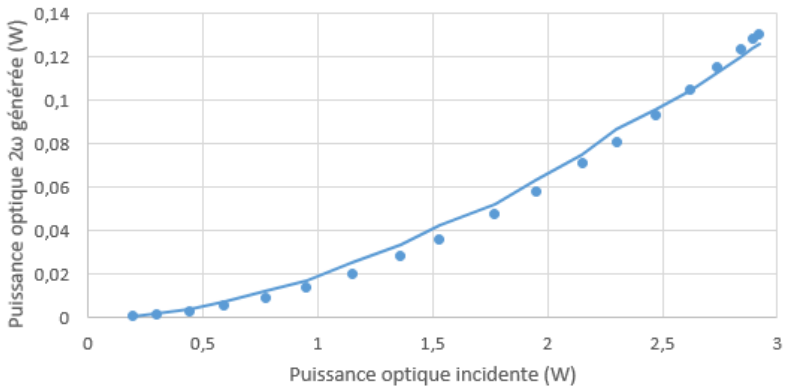


FIGURE 2.11 – Puissance optique du second harmonique (2ω) en fonction de la puissance optique incidente sur le cristal de $\beta - BBO$ et sa courbe d'ajustement quadratique

de porteurs photo-créés qui dépend linéairement de la densité de puissance optique incidente P_ω, le signal THz devrait suivre la relation suivante :

$$E_{THz} = A \times P_\omega^2 \times exp(-B\, P_\omega) \tag{2.2}$$

Pour vérifier ce modèle, nous avons mesuré l'amplitude de l'impulsion THz à l'aide de la détection électro-optique, pour plusieurs valeurs de puissance optique. La figure 2.12 montre les résultats obtenus. On peut constater que tant que la puissance optique est faible, le phénomène d'absorp-

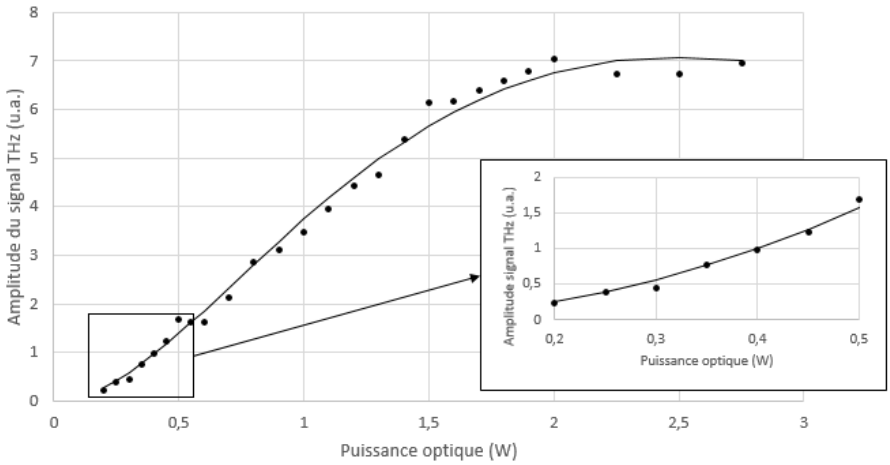


FIGURE 2.12 – Amplitude de l'impulsion THz générée via un filament plasma en fonction de la puissance optique incidente (points de mesures) et son ajustement théorique (trait plein) basé sur le modèle de l'équation (2.2). L'encadré montre les points de mesure à plus basse puissance optique avec une courbe d'ajustement quadratique.

tion reste négligeable devant la génération dictée par le processus de FWM. Le comportement sera alors quadratique, comme le confirme l'encadré de la figure 2.12. Dans ces conditions, le paramètre d'ajustement quadratique est alors proportionnel au produit $\chi^{(3)}_{plasma} \times \chi^{(2)}_{BBO}$, en accord avec l'équation (2.1). A plus haute puissance optique, le bon accord entre le modèle (trait plein) issu de l'équation (2.2) et les mesures (points), nous permet d'expliquer le phénomène de saturation de la génération THz par claquage dans l'air. Toutefois, il convient de s'assurer que le comportement asymptotique observé sur la figure 2.12, n'est pas dû à une saturation du système de détection utilisé. En effet, le signal électro-optique étant proportionnel à la puissance de sonde et à l'amplitude du champ THz, un trop fort signal et/ou un faisceau sonde trop intense peuvent potentiellement saturer la photo-diode balancée. Afin de confirmer ou infirmer cette hypothèse quant à la saturation de la détection, nous avons réitéré l'expérience décrite ci-dessus (E_{THz} vs P_ω)

pour quatre configurations expérimentales différentes. En plaçant ou retirant un wafer de silicium haute résistivité de 1 cm d'épaisseur sur le trajet du faisceau THz afin d'atténuer l'amplitude THz (pertes de Fresnel) tout en rejetant les échos (multiples réflexions internes) loin de l'impulsion THz principale, et cela pour deux puissances sondes différentes (32 mW et 21 mW), nous obtenons les résultats présentés par la figure 2.13. Le bon accord entre les mesures et leurs courbes

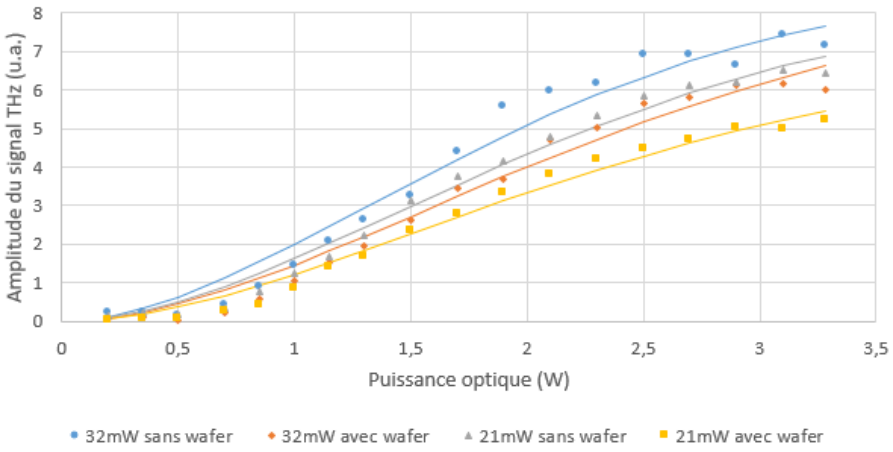


FIGURE 2.13 – Amplitude du signal THz généré en fonction de la puissance optique avec wafer de silicium (jaune et orange) et pour deux puissances de sonde différentes (32 mW en bleu et orange et 21 mW en gris et jaune). Les courbes d'ajustement prédites par le modèle (2.2) en trait plein.

d'ajustements respectives permet par la suite de faire une analyse quantitative du comportement asymptotique observé à forte puissance de pompe, sur la base des paramètres d'ajustements A et B de l'équation (2.2) obtenus pour chacune des quatre séries de mesures. Les tableaux 2.1 et 2.2 donnent les valeurs de ces paramètres d'ajustement.

	sans wafer	avec wafer
P_{sonde} = 21 mW	2,44	1,79
P_{sonde} = 32 mW	3,13	2,13

TABLEAU 2.1 – Paramètres d'ajustement, A, pour les courbes théoriques de la figure 2.13.

	sans wafer	avec wafer
P_{sonde} = 21 mW	0,41	0,38
P_{sonde} = 32 mW	0,45	0,38

TABLEAU 2.2 – Paramètres d'ajustement, B, pour les courbes théoriques de la figure 2.13.

Le paramètre A décrivant le coefficient de proportionnalité entre la puissance optique de pompe et l'amplitude du signal THz détecté, intègre le rendement de conversion optique / THz et le gain de détection électro-optique. Ainsi, pour des conditions expérimentales inchangées au niveau de l'émission (même optique de focalisation, même alignement optique, même cristal doubleur, ...) le rendement de conversion optique / THz reste constant et les différentes valeurs du paramètre A présentées dans le tableau 2.1 ne sont dues qu'à une modulation du gain de détection. Par conséquent, en l'absence de saturation de détection induite par un signal THz trop intense, le rapport des paramètres A obtenus respectivement avec et sans wafer (à puissance sonde constante) doit logiquement correspondre au coefficient de transmission du signal THz au travers de ce dernier. Si l'on considère un indice de réfraction du silicium d'environ 3,4 dans le domaine THz [110], le calcul nous donne un coefficient de transmission de 70% correspondant au pourcent près aux résultats obtenus à partir des mesures et ce indépendamment de la puissance sonde. Cette correspondance démontre qu'il n'y a pas de saturation du détecteur. Cette conclusion est confirmée par les valeurs du paramètre B données dans le tableau 2.2. En effet, les valeurs de ce paramètre obtenues pour les quatre configurations sont relativement égales. Comme ce paramètre d'ajustement traduit le

comportement asymptotique des courbes, la saturation observée est par conséquent indépendante de la détection et ne trouve son origine qu'au niveau de l'émission, comme cela avait déjà été observé [96, 98, 111].
Au travers du modèle proposé, on comprend que le rendement de génération THz présente un maximum pour une certaine puissance optique. Cette puissance optique permet d'assurer un bon compromis entre génération THz par processus FWM dans les plasmas et l'absorption par les particules chargées de ces derniers. La valeur de cette puissance dépend directement de la pression et de la composition du gaz soumis à la filamentation. Ainsi, générer plus de puissance THz par claquage nécessite plus de puissance optique, mais aussi de baisser la pression du gaz, comme le propose Nazarov *et al.* [112].

2.3 Profil transverse du rayonnement THz

Il est important de connaître les dimensions et la forme du faisceau THz pour voir si l'alignement est correct et de comprendre les phénomènes mis en jeu. La génération d'un rayonnement THz par claquage dans l'air a une forme de cône, on parle aussi de forme de "donut". Ce profil est induit par la dispersion entre les impulsions ω et 2ω le long du filament plasma. L'absence de rayonnement THz au niveau de l'axe de propagation est due à des interférences destructives provenant du changement de phase de l'onde THz produite à l'intérieur du filament plasma. L'angle d'émission conique diminue avec la baisse de la densité de charge dans le plasma ou avec l'augmentation de la longueur du filament. Le rendement total THz augmente presque linéairement avec la longueur du filament, ainsi le signal THz peut être efficacement augmenté en allongeant la longueur du filament avec une densité de plasma constante. De plus, les fréquences THz les plus basses se trouvent à des angles de cône plus grands, ce qui permet d'utiliser cet effet pour un filtrage spectral spatialement accordé au rayonnement THz généré par le filament de plasma [109, 113].

Afin de mesurer le faisceau THz, on utilise une méthode que l'on a appelée *diaphragme-edge* et qui consiste à placer différents diaphragmes de différentes tailles en travers du faisceau de manière à ce qu'il écrante partiellement le faisceau. Cette méthode fait référence à la méthode plus connue appelée *knife-edge* consistant à faire passer petit à petit une lame en travers du faisceau THz [114, 115]. Une autre méthode pour déterminer le profil du rayonnement THz est d'utiliser une fente de quelques mm d'ouverture. Elle est utilisée dans le cas de la génération THz par claquage dans l'air [108, 116]. Une méthode se rapprochant du diaphragme-edge est utilisée pour mesurer la partie responsable du rayonnement THz en plaçant un diaphragme de 2 mm de diamètre le long du filament plasma [113].

Pour la méthode du *diaphragme-edge*, on a développé une formule permettant de remonter à l'amplitude du champ à travers différentes tailles de diaphragmes de rayon R pour un profil de forme "donut" :

$$E_{THz} = \frac{\left(erfc\left(\frac{-r_d}{\sigma_d}\right) - erfc\left(\frac{R-r_d}{\sigma_d}\right)\right)}{2}, \tag{2.3}$$

où $erfc$ est la fonction erreur complémentaire, r_d et σ_d sont respectivement le rayon et la demi-largeur à $1/e$ du profil. Cette formule est démontrée dans le paragraphe 3.4.1 et les paramètres sont visibles sur le profil de la figure 3.14. Les points de mesures sont pris avec différentes tailles de diaphragmes. Les centres des diaphragmes sont placés précisément grâce à un support de diaphragme aligné au préalable sur le centre du faisceau THz. On utilise cette méthode en plaçant les

diaphragmes derrière le miroir parabolique lui-même situé après le plasma. Dans cette région, le faisceau THz est collimaté. La figure 2.14 montre les points de mesures avec la courbe d'ajustement. Le bon accord entre les points de mesures et la courbe permet de déduire que le rayonnement est également de forme "donut", on peut s'en convaincre également par la quasi-absence de signal avec un diaphragme de 3 mm de diamètre. Ce profil a été reconstruit dans la littérature [117, 118]. Ainsi, grâce à l'ajustement de la courbe on obtient les valeurs des paramètres du profil du rayonnement THz : r_d = 10,62 mm et σ_d = 4,56 mm qui seront utilisés pour connaître la distribution linéique de sources THz (paragraphe 3.4.1).

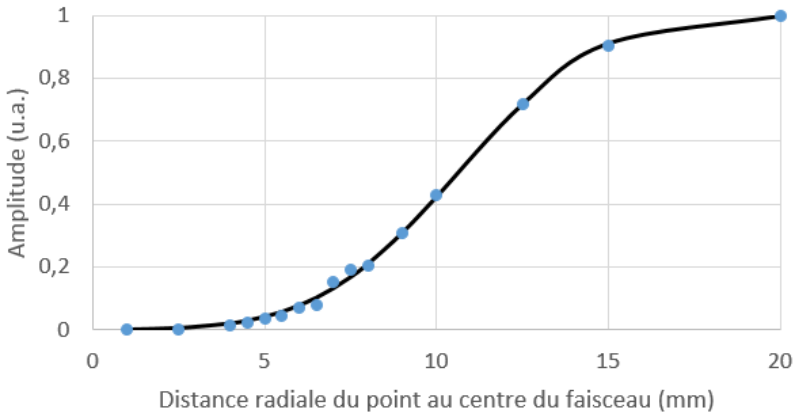


FIGURE 2.14 – Amplitude spectrale pour différents diaphragmes à 0,625 THz avec les points de mesures en bleu et le modèle en trait plein noir.

2.4 Conclusion

Ce chapitre décrit le développement du banc optique réalisé autour d'une chaîne laser amplifiée. Le banc optique est construit pour générer des impulsions THz par claquage dans l'air et pour les détecter par effet électro-optique.

A la suite des premiers signaux THz, le signal THz et son spectre associé ne montrent pas les caractéristiques de large bande et de fort champ THz généré que l'on souhaitait (figure 2.2) et qui étaient prédites (30 THz [103]). Pour améliorer ces premiers signaux THz, nous avons étudié l'impact de différents éléments de la génération THz par claquage dans l'air.

L'enregistrement des premiers signaux a montré un problème de reproductibilité. Une étude sur le bruit de l'expérience expose le besoin de moyenner le signal, afin de réduire les variations induites par gigue et en amplitude, mais aussi de protéger l'expérience de flux d'air pour diminuer les dérives lentes. Une fois le bruit de l'expérience minimisé, nous avons réalisé des études pour optimiser le signal THz.

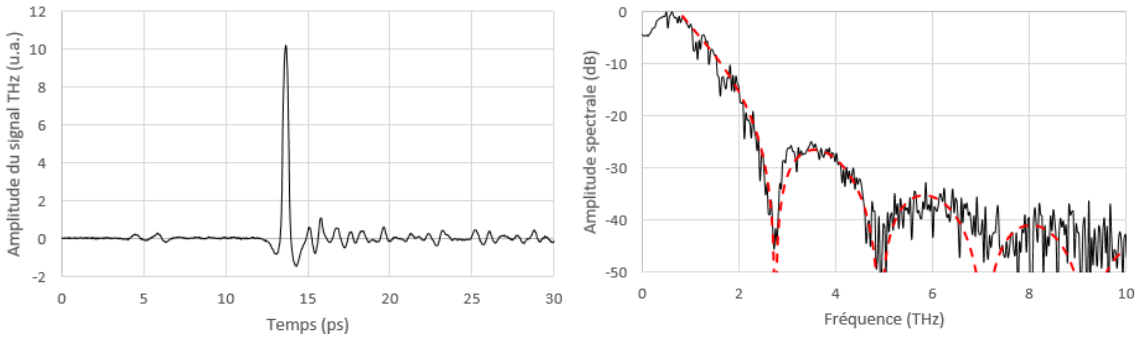
L'étude de l'influence de l'optique de focalisation sur la génération THz illustre le rôle joué par cette optique. Elle est la première optique dédiée à la génération THz que le faisceau pompe rencontre. Cette optique définit les conditions expérimentales requises pour la filamentation. Elle accroît également le rendement de conversion ω / 2ω en augmentant la densité de puissance optique pompe sur le cristal doubleur. Il est à noter que l'utilisation d'une focale plus longue permet de générer un filament plasma plus long mais moins dense. Cela donne naissance à un rayonnement

THz avec une amplitude de champ élevé mais au détriment des hautes fréquences, alors qu'une focale petite va fournir une densité de puissance très élevée pour créer un plasma très dense, permettant la génération d'un rayonnement THz large bande.

L'étude de la génération du second harmonique montre la finesse de réglage du cristal doubleur. Son tilt mais aussi son orientation sont des réglages essentiels au bon rendement de génération du second harmonique.

L'étude du champ THz rayonné en fonction de la puissance optique pompe a montré un comportement quadratique à puissance optique faible, qui tend à saturer à plus forte puissance, dû à l'absorption par les charges photo-créées. Cette étude a montré qu'il existe une puissance optique optimale donnant une amplitude de signal THz maximum.

Après l'ajustement fin des différents paramètres étudiés dans ce chapitre, nous avons obtenu l'impulsion THz présentée dans la figure 2.15. Ces études ont finalement permis de comprendre et



(a) (b)

FIGURE 2.15 – (a) le signal temporel du banc de spectroscopie avec pour émetteur un filament plasma bicolore et pour détection électro-optique un cristal ZnTe <110> de 0,2 mm d'épaisseur avec (b) son spectre associé.

d'optimiser le système pour générer de meilleures impulsions THz. La comparaison des signaux avant (figure 2.2) et après (figure 2.15) optimisation est éloquente. En quelques chiffres, après optimisation nous avons atteint une dynamique de plus de 40 dB à 1 THz lorsque les premiers signaux atteignaient à peine 20 dB de dynamique à 0,6 THz. Quand ces signaux n'excédaient pas les 1,5 THz de bande spectrale, la largeur spectrale après optimisation s'étend de 0,1 à 7 THz. La largeur de bande reste, néanmoins, faible en comparaison de la valeur de 30 THz trouvée dans la littérature pour une chaîne laser amplifiée comme la nôtre [103]. Toutefois, cette valeur limite est à nuancer car elle correspond à la valeur théorique attendue au point source. Dans le cas de notre signal optimisé, l'impulsion THz se propage dans l'air ambiant (taux d'humidité typique de 50%) sur une longueur de 70 cm. Les raies d'absorption de l'eau sont visibles sur le spectre et nous empêchent clairement de détecter de plus hautes fréquences. A cela s'ajoute une absence périodique de signal tous les 2,8 THz environ, expliquée par un désaccord de phase entre les impulsions THz et la sonde optique dans le cristal ZnTe de détection. Cette hypothèse est confirmée par le modèle physique en pointillés rouges sur la figure 2.15 [119]. Un cristal nettement plus fin permettrait de repousser à beaucoup plus haute fréquence ces "trous" dans le spectre, mais au détriment de la dynamique et sans pour autant s'affranchir des raies d'absorption phononiques du cristal dans le THz. Améliorer encore le système actuel nécessiterait l'utilisation d'une détection ABCD [120] et la mise sous air sec du faisceau THz.

Bien que les signaux THz soient perfectibles en investissant beaucoup de temps, les impulsions THz actuelles sont entièrement satisfaisantes pour la suite de mes travaux de thèse portant sur

l'étude des interactions entre un plasma externe et le filament à l'origine de la génération THz par claquage dans l'air. Ces travaux sont détaillés dans le chapitre suivant.

3

Etude de l'interaction entre un plasma photo-induit et un plasma externe

Sommaire

3.1 Contexte 52
3.2 Analyse polarimétrique du rayonnement THz 53
3.2.1 Analyse théorique 53
3.2.2 Mise en place expérimentale 56
3.2.3 Utilisation de la détection 57
3.3 Banc expérimental et protocole de mesure 57
3.3.1 Résultats et analyse 59
3.4 Modélisation 64
3.4.1 Description du modèle 64
3.4.2 Étude de l'efficacité de génération THz 69
3.4.3 Etude de l'orientation de la polarisation THz 78
3.4.4 Résultats et interprétations 79
3.5 Conclusion 82

3.1 Contexte

Dans ce chapitre, des études sont menées sur l'interaction entre un filament plasma (plasma photo-généré) et un plasma externe créé par un dispositif appelé plasma jet. Le plasma jet est réalisé en collaboration avec une doctorante (Farah Aljammal) qui a travaillé sur son fonctionnement et sa caractérisation.

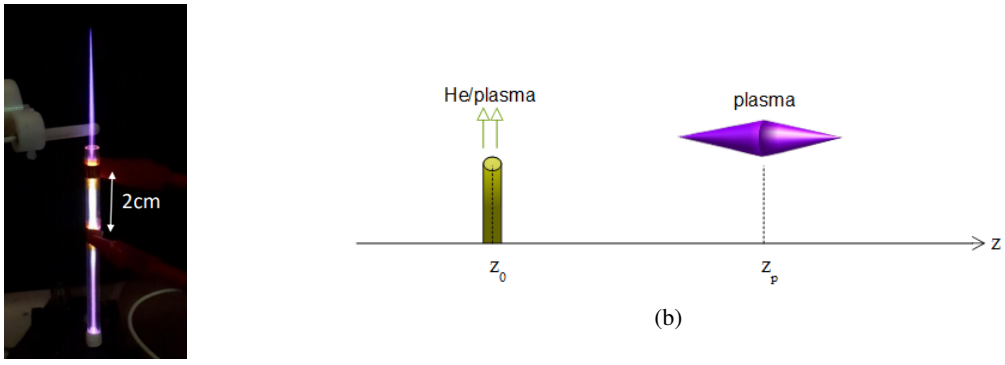
Le plasma jet forme un plasma par l'ionisation d'un filet de gaz (ici de l'hélium) par un champ électrique très intense appliqué aux électrodes (tension d'une dizaine de volts et quelques ampères). La figure 3.1a est une photo du plasma jet. Ce plasma jet est la meilleure solution pour obtenir une source plasma permettant d'avoir une densité de charge stable et uniforme nécessaire à nos études sans l'apparition de décharge totale.

Les études de ce chapitre portent sur deux questions : existe-t-il des interactions entre ces deux plasmas, permettant d'augmenter le rendement de génération du rayonnement THz par l'ajout d'espèces ionisées via le plasma jet ? Est-il possible de contrôler la génération THz en utilisant ce plasma jet ?

Le but principal est de voir si l'ajout de porteurs de charge via un plasma jet peut favoriser le rayonnement THz issu du filament plasma. En effet, pour qu'il y ait un rayonnement THz, la formation d'un filament plasma est une condition nécessaire, comme expliqué dans le chapitre 1. Le plasma photo-généré peut se former à plus basse énergie optique si des porteurs de charge sont déjà présents et ainsi permettre un rayonnement THz à plus basse puissance optique. Cela pourrait permettre à terme de ne plus utiliser un système laser aussi complexe, couteux et potentiellement dangereux qu'un laser amplifié femtoseconde.

En parallèle, des études seront réalisées sur l'influence de la présence du plasma jet sur l'état de polarisation du rayonnement THz, ce qui pourrait permettre soit de contrôler la polarisation du signal THz, soit de mesurer/scanner le champ électrique du plasma jet via le comportement du rayonnement THz mesuré.

Cette étude nécessite une détection capable de mesurer l'état de polarisation du champ THz, c'est pourquoi une détection sensible en polarisation a été montée. Elle est détaillée dans le paragraphe suivant.



(a) (b)

FIGURE 3.1 – (a) Photo du plasma jet. (b) Schéma du filament plasma bicolore formé par le laser et qui génère un rayonnement THz. En violet, le plasma jet qui se trouve sous le filament plasma et pouvant se déplacer suivant l'axe optique (axe z).

3.2 Analyse polarimétrique du rayonnement THz

Afin d'analyser l'évolution temporelle du vecteur champ électrique, on réalise une étude polarimétrique du rayonnement THz. Une détection électro-optique sensible en polarisation est mise en place selon le schéma décrit sur la figure 3.2.

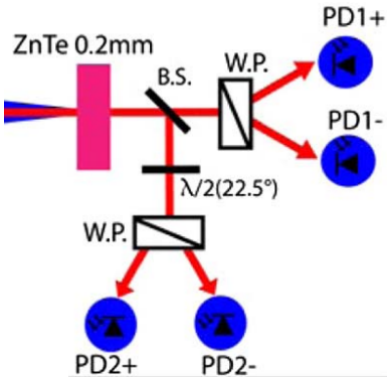


FIGURE 3.2 – Schéma de la détection électro-optique sensible en polarisation. Elle comprend un cristal non linéaire, ZnTe <111> de 0,2 mm d'épaisseur, un séparateur de faisceau (BS : beamsplitter, une demi-onde, un prisme de Wollastone (WP) sur chaque voie et deux systèmes de photodiodes (PD) balancées [121].

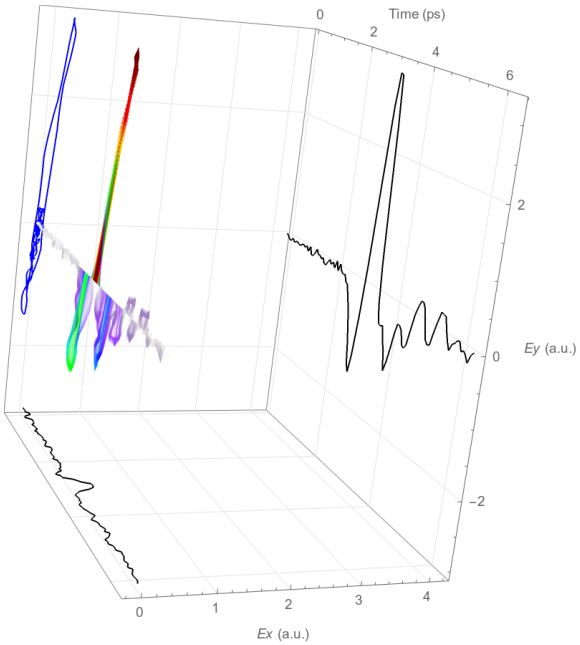


FIGURE 3.3 – Champ électrique du rayonnement THz en fonction du temps mesuré par la détection électro-optique sensible en polarisation.

3.2.1 Analyse théorique

L'effet d'optique non linéaire électro-optique (ou effet de Pockels) a été développé au paragraphe 1.6.3. On rappelle qu'il est lié à la modification de l'indice de réfraction propre n_i du cristal non-centrosymétrique induit par le vecteur de champ électrique $\vec{E_\Omega} = E_X, E_Y, E_Z$. L'ellipsoïde des indices est alors déformée et s'écrit :

$$\delta\left(\frac{X}{n_1}\right)^2+\delta\left(\frac{Y}{n_2}\right)^2+\delta\left(\frac{Z}{n_3}\right)^2+2\delta\left(\frac{1}{n_4}\right)^2 YZ+2\delta\left(\frac{1}{n_5}\right)^2 XZ+2\delta\left(\frac{1}{n_6}\right)^2 XY=1 \quad (3.1)$$

avec X,Y,Z définissant le référentiel propre diélectrique du cristal EO et les variations de n_i induites par le champ électrique qui sont définies par :

$$\delta\left(\frac{1}{n_i}\right)^2=\sum r_{ij}E_j \quad (3.2)$$

où r_{ij} sont les coefficients EO du cristal. Dans le cas d'un cristal cubique, $n_1 = n_2 = n_3$, et les coefficients EO non nuls sont $r_{41}(= r_{52} = r_{63})$, qui conduisent au tenseur EO suivant :

$$\overleftrightarrow{r}_{ijk} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix} \tag{3.3}$$

Ainsi, l'ellipsoïde 3.2.1 s'écrit

$$\left(\frac{X}{n_0}\right)^2 + \left(\frac{Y}{n_0}\right)^2 + \left(\frac{Z}{n_0}\right)^2 + 2r_{41}E_Y XZ + 2r_{41}E_Z XY = 1. \tag{3.4}$$

On considère une onde optique plane qui sonde le cristal selon la direction <111>. Dans ce cas, l'ellipsoïde des indices peut être déduite après deux rotations sphériques successives de l'ellipsoïde. La particularité des valeurs $\varphi = (\pi/4)$ et $\theta = arccos(1/\sqrt{3})$ pour le vecteur d'onde optique de la sonde donne la forme de la matrice suivante de l'ellipse des indices :

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{n_0^2} + \frac{1}{3}r_{41}(-2(E_X + E_Y) + E_Z) & \frac{1}{\sqrt{3}}r_{41}(-E_X + E_Y) \\ \frac{1}{\sqrt{3}}r_{41}(-E_X + E_Y) & \frac{1}{n_0^2} - r_{41}E_Z \end{pmatrix}. \tag{3.5}$$

Dans ce référentiel <111> le vecteur de champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}_{\Omega,\,<111>} = |\vec{E_\Omega}| \begin{bmatrix} sin\Psi cos\rho \\ sin\Psi sin\rho \\ cos\Psi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{\Omega\perp} cos\rho \\ E_{\Omega\perp} sin\rho \\ E_{\Omega\parallel} \end{bmatrix} \tag{3.6}$$

avec $\vec{E}_{\Omega\perp}$, le champ électrique du vecteur transverse à la sonde optique, et $E_{\Omega\parallel}$ le champ colinéaire au vecteur d'onde optique comme le montre la figure 3.4. Le lien entre les coordonnées de l'équation 3.6 et E_X, E_Y et E_Z considérés dans 3.5 est simplement obtenu par deux rotations consécutives de $\vec{E}_{\Omega,\,<111>}$ avec $\varphi = -(\pi/4)$ et $\theta = -arccos((1/\sqrt{3}))$, donnant :

$$\begin{cases} E_X = |\vec{E_\Omega}| \left(\frac{cos\Psi}{\sqrt{3}} + \frac{cos\rho\ sin\Psi}{\sqrt{6}} - \frac{sin\rho\ sin\Psi}{\sqrt{2}} \right) \\ E_Y = |\vec{E_\Omega}| \left(\frac{cos\Psi}{\sqrt{3}} + \frac{cos\rho\ sin\Psi}{\sqrt{6}} + \frac{sin\rho\ sin\Psi}{\sqrt{2}} \right) \\ E_Y = |\vec{E_\Omega}| \frac{cos\Psi - \sqrt{2}cos\rho\ sin\Psi}{\sqrt{3}}. \end{cases} \tag{3.7}$$

Puis, il est possible de saisir les composantes du champ électrique $E(E_X,\ E_Y,\ E_Z)$ dans la matrice de l'ellipse 3.5, et d'extraire les valeurs propres de la matrice obtenues pour trouver les indices de réfractions propres, n_+ et n_-, vus par la sonde optique. Le champ électrique qui induit cette modification est très faible (r_{41} est de l'ordre de 10^{-12} m/V), ces indices propres peuvent être étendus aux séries entières, donnant les expressions canoniques suivantes :

$$\begin{cases} n_+ = n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} |\vec{E_\Omega}|}{2\sqrt{3}} (cos\Psi + \sqrt{2}sin\Psi) \\ n_- = n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} |\vec{E_\Omega}|}{2\sqrt{3}} (cos\Psi - \sqrt{2}sin\Psi). \end{cases} \tag{3.8}$$

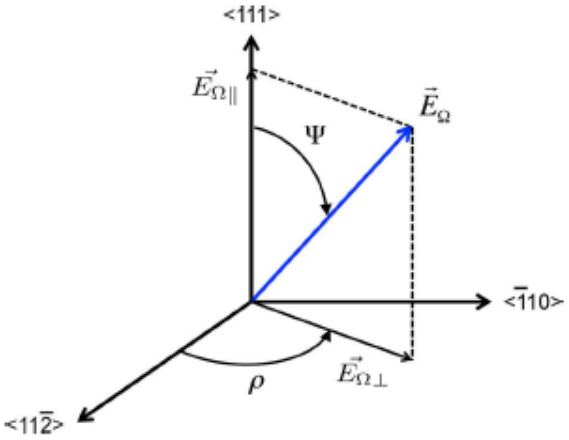


FIGURE 3.4 – Représentation du champ électrique THz $\vec{E_\Omega}$ en coordonnée sphérique dans la direction <111> correspondant au vecteur d'onde du faisceau sonde optique [122]

Les valeurs des indices propres dépendent linéairement de $|\vec{E_\Omega}|$, indépendamment de l'orientation ρ. La modulation d'indice induite par le champ électrique THz est sondée en utilisant la modulation de l'état de polarisation du faisceau laser. Cet état de polarisation est dépendant de la grandeur $\delta n(\vec{E_{\Omega\perp}}) = n_+ - n_-$:

$$\delta n(\vec{E_{\Omega\perp}}) = \sqrt{\frac{2}{3}} n_0^3 r_{41} |\vec{E_\Omega}| sin\Psi = \sqrt{\frac{2}{3}} n_0^3 r_{41} |\vec{E_{\Omega\perp}}|. \tag{3.9}$$

Cette dernière équation démontre que l'état de polarisation ne dépend que de la composante transverse du champ électrique THz à mesurer. De plus, l'anisotropie induite est reliée uniquement à $|\vec{E_{\Omega\perp}}|$. Cela entraîne une modulation quelle que soit l'orientation ρ du champ transverse.

D'autre part, les vecteurs propres $\hat{e_x}$ et $\hat{e_y}$ de la matrice de l'ellipse des indices 3.5, calculés en remplaçant E_X, E_Y et E_Z par leurs expressions 3.7, dépendent de l'angle ρ du champ THz transverse dans le référentiel du cristal, comme le montre la figure 3.5.

$$\begin{cases} \Lambda_{\hat{e_x}/<11\bar{2}>} = -\frac{\rho}{2} \\ \Lambda_{\hat{e_y}/<11\bar{2}>} = \frac{\pi}{2} - \frac{\rho}{2}. \end{cases} \tag{3.10}$$

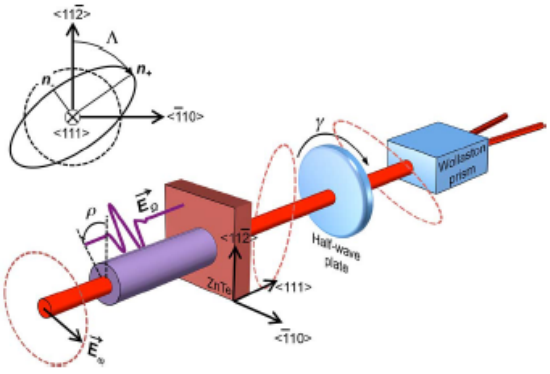


FIGURE 3.5 – Montage de la détection électro-optique permettant l'analyse vectorielle du champ THz. La polarisation circulaire du faisceau sonde est colinéaire avec le vecteur d'onde THz et permet une mesure EO quelle que soit l'orientation du champ THz $\vec{E_\Omega}$. Représentation de l'ellipsoïde des indices, en haut à gauche, induit par le champ électrique $\vec{E_{\Omega\perp}}$, à mesurer [122].

A noter que l'amplitude du champ n'influence pas l'orientation du référentiel. Une représentation graphique de $\hat{e_x}, \hat{e_y} = f(p)$ est donnée par la figure 3.6. On constate clairement que $\hat{e_x}$ et $\hat{e_y}$ sont séparés de 90°.

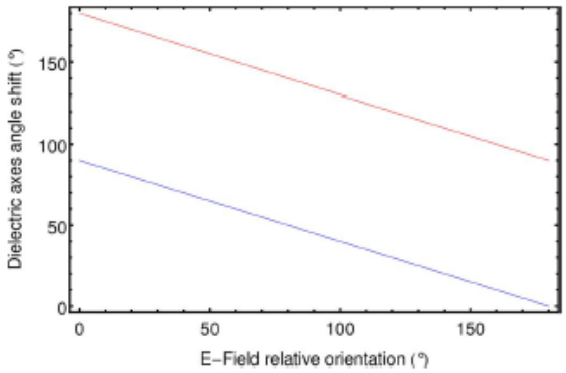


FIGURE 3.6 – Orientation des vecteurs propres de l'ellipse des indices vue par l'onde optique en fonction du champ électrique transverse. Les lignes bleue et rouge correspondent à l'orientation du champ électrique induit par les vecteurs propres dans le référentiel du diélectrique. [122]

D'une manière pratique, un cristal cubique de coupe <111> permet d'accéder au champ électrique indépendamment de l'orientation azimutale de ρ relativement à l'angle du champ transverse. De plus, le champ électrique induit une anisotropie alors que l'efficacité EO est la même pour toute orientation du champ électrique THz transverse. Ainsi, l'orientation relative du champ électrique est directement et linéairement déduite de l'orientation de l'axe diélectrique du cristal, ce qui peut être analysé en utilisant l'état de polarisation du faisceau laser sonde.

3.2.2 Mise en place expérimentale

Une expérience comme celle montrée sur la figure 3.2 peut être réalisée pour mesurer l'état de polarisation du champ THz. Une lame quart d'onde permet d'imposer une polarisation circulaire au faisceau optique, ce qui permet d'assurer la balance en sondant n_+ et n_-. Cet état de polarisation est modulé par le champ THz. L'état de polarisation induit par la présence d'un champ électrique THz devient elliptique, et modifie $\delta n(\vec{E_\Omega})$. Tandis que l'orientation de l'axe principal est linéairement proportionnelle à Λ (figure 3.5), et donc proportionnelle à l'orientation ρ du champ THz transverse, a modulation de l'état de polarisation est convertie en modulation de puissance optique à l'aide d'une lame demi-onde et d'un prisme de Wollaston [123–125]. Un couple de photodiodes balancées est connecté à une détection synchrone pour récupérer, in fine, un signal électrique utile, proportionnel à la composante du vecteur champ électrique mesurée. La fonction de transfert de ce montage peut être exprimée comme la modulation d'intensité $i = (\tilde{P}/\overline{P})$ du signal enregistré, avec $\tilde{P}$ l'intensité du signal modulé et $\overline{P}$ l'intensité du signal moyen. En utilisant le formalisme des matrices de Jones, l'intensité i du signal est déterminée comme une fonction des propriétés du cristal et de ses orientations Θ_0, γ et ρ respectivement associés à l'angle de décalage du cristal ZnTe <111>, à la lame demi-onde et au champ THz dans le référentiel du laboratoire $\Re$. L'intensité $\tilde{I}$ du signal mesuré peut être donnée par :

$$\tilde{I} = \frac{2\pi}{\lambda}\delta n L_{cristal} sin(-\rho - 3\Theta_0 + 4\gamma) \propto E_{\Omega\perp} sin(-\rho - 3\Theta_0 + 4\gamma) \tag{3.11}$$

La relation 3.11 démontre que pour tout angle ρ du champ THz transverse et pour toute orientation Θ_0 du cristal, il est possible de trouver une orientation propre γ pour la demi-onde, tel que : $\gamma = (1/8)(\pi + 6\Theta_0 + 2\rho)$. Cet angle permet la mesure de l'amplitude du champ THz $|E_{\Omega\perp}|$. D'un

point de vue expérimental, ce montage permet d'obtenir un signal optimal en orientant uniquement une lame d'onde. La figure 3.7 montre un signal THz mesuré à l'aide de ce montage.

L'évaluation du champ transverse est réalisée à l'aide de l'équation (3.11). Ainsi, la mesure des coordonnées polaires $(|\vec{E_{\Omega\perp}}|, \rho)$ peut être déduite pour chaque point temporel $\tilde{I}$. La caractérisation du vecteur champ requiert au moins 4 valeurs de i_i de différentes orientations de γ afin de résoudre de manière exhaustive l'ellipse modulée par l'ellipticité et l'orientation, c'est-à-dire $\vec{E_{\Omega\perp}}$ et les paramètres inconnus tels que l'amplitude du champ, son signe et son angle azimutal. Cela peut être fait en séparant le faisceau optique après le cristal EO en 4 chemins selon 4 angles donnés par une lame d'onde, celle-ci jouant le rôle de polarimètre. Une autre méthode est de réaliser 4 mesures consécutives du signal temporel en changeant l'orientation de l'état de polarisation avec une demi-onde. Dans ce cas, la mesure doit être reproductible de manière à ce que l'amplitude du champ reste la même sans décalage temporel entre ces mesures. Pour simplifier l'extraction du vecteur champ transverse, 4 valeurs spécifiques de γ ont été identifiées. En effet, les valeurs particulières sont $d_1(\gamma_1 = 0)$, $d_2(\gamma_2 = (\pi/8))$, $d_3(\gamma_3 = (\pi/16))$ et $d_4(\gamma_4 = (3\pi/16))$ permettant d'extraire l'amplitude du champ $|\vec{E_{\Omega\perp}}|$ avec l'angle relatif ρ du champ THz mesuré. Les équations suivantes permettent de retrouver ces informations avec les données mesurées d_i :

$$\begin{cases} |\vec{E_{\Omega\perp}}| = a\sqrt{d_1^2 + d_2^2} = a\sqrt{d_3^2 + d_4^2} \\ \rho = \frac{1}{2}\arctan\left(\frac{d_4^2 - d_3^2}{d_2^2 - d_1^2}\right) - 3\Theta_0 \end{cases} \tag{3.12}$$

avec $a = \sqrt{(3/2)}(\lambda/2\pi L_{cristal} n_0^3 r_{41})$.

3.2.3 Utilisation de la détection

La détection électro-optique sensible en polarisation nécessite un cristal électro-optique isotrope de coupe <111>. Les vecteurs sensibilités $\Delta\vec{K}_a$ et $\Delta\vec{K}_b$ cristal sont orthogonaux au vecteur d'onde optique $\vec{k_\omega}$. Ainsi, le cristal est sensible aux composantes transverses du champ électrique. De plus, on a $||\Delta\vec{K}_a|| = ||\Delta\vec{K}_b||$, c'est-à-dire que le champ électrique mesuré a une sensibilité identique quelle que soit la polarisation de $\vec{k_\omega}$. Deux systèmes de photo-diodes balancées sont mis en place pour retrouver le champ électrique selon deux axes spatiaux et un axe de temps, montrés par la figure 3.7. En effet, cette figure permet de représenter le champ électrique du rayonnement THz selon les projections sur E_x et E_y en fonction du temps mais également sa projection suivant E_x et E_y (tracé en bleu sur la figure). Cela permet de résumer l'état de polarisation du champ THz. On se référera aux publications [121, 122, 126] pour plus de détails de cette détection.

3.3 Banc expérimental et protocole de mesure

Comme décrit précédemment dans ce chapitre, l'objectif de nos études est de comprendre les interactions entre un plasma externe (ici un plasma jet d'hélium) et le filament optique, et ce au travers de la mesure du champ THz généré par claquage dans l'air. Nous sommes en droit de penser que la présence d'un plasma jet sur le trajet optique de la pompe située entre le cristal doubleur de β-BBO et le filament, voire même en aval de ce dernier, engendre des modifications de l'impulsion THz générée par claquage dans l'air. Les phénomènes physiques mis en jeu dans ces interactions peuvent potentiellement modifier la composition spectrale de l'impulsion THz mais également moduler son état de polarisation, raison pour laquelle nous avons adapté le système de détection EO sensible en polarisation, détaillé dans la partie précédente, au banc optique de génération THz par claquage dans l'air schématisé sur la figure 2.1.

Ce banc optique innovant permet de mesurer simultanément les deux composantes transverses de l'impulsion THz, et ainsi d'effectuer une analyse polarimétrique de l'impulsion THz à partir d'une seule mesure. Ceci permet de limiter le temps d'acquisition, et donc les incertitudes de mesures liées au dérives lentes du système (paragraphe 2.2.2), tout en évitant les erreurs systématiques induites par la nécessité d'effectuer plusieurs mesures consécutives pour déterminer la polarisation de l'impulsion THz [121, 123].

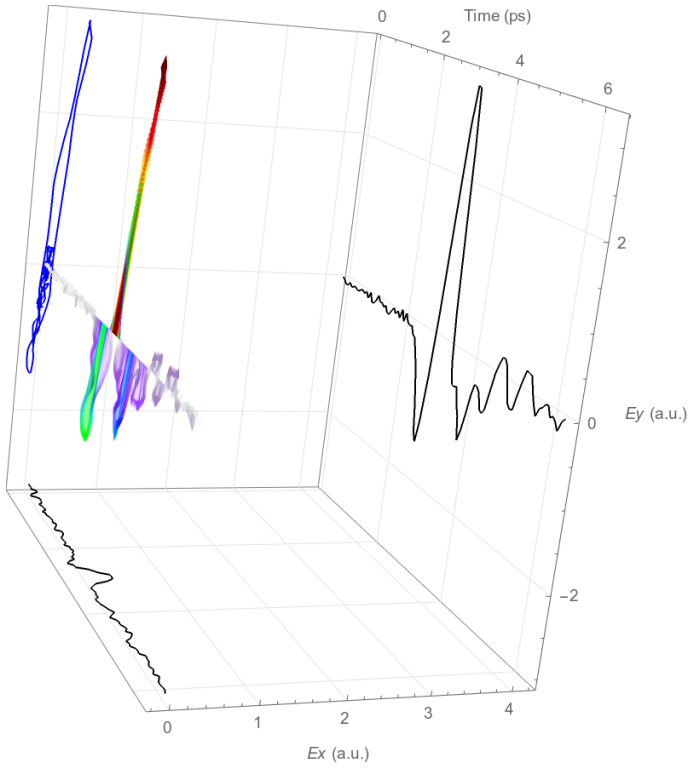


FIGURE 3.7 – Champ électrique du rayonnement THz de référence (en l'absence de plasma jet) en fonction du temps, mesuré par la détection électro-optique sensible en polarisation détaillée dans la partie 3.2 et représenté dans le référentiel propre du cristal EO (ZnTe <111>).

Protocole expérimental : Le plasma jet, aligné verticalement (selon l'axe x) pour des raisons techniques, est monté sur une platine de translation XYZ permettant de le positionner avec précision dans une zone autour du filament optique. Pour une position (x_0, y_0, z_0) du plasma jet, nous enregistrons les photo-courants délivrés par les deux photodiodes balancées de la détection EO (cf. figure 3.2), à partir desquelles nous extrayons les évolutions temporelles des composantes transverses E_x et E_y grâce aux système d'équations (3.12).

L'état de polarisation (ellipticité ζ, orientation θ) et l'amplitude $|E_{THz}|$ de l'impulsion sont alors connus :

$$|E_{THz}| = \sqrt{E_x^2 + E_y^2} \tag{3.13a}$$

$$\theta = \arctan\left(\frac{E_{0y}cos(\phi_0 + \Delta\varphi/2)}{E_{0x}cos(\phi_0 - \Delta\varphi/2)}\right) \tag{3.13b}$$

$$\zeta = \sqrt{\frac{cos(2\phi_0) - cos(\Delta\varphi)}{cos(2\phi_0) + cos(\Delta\varphi)}} \tag{3.13c}$$

où $2\phi_0 = arctan\left(tan(\Delta\varphi)\left(\frac{E_{0x}^2 - E_{0y}^2}{E_{0x}^2 + E_{0y}^2}\right)\right)$ et $\Delta\varphi$ le déphasage relatif entre les composantes du champ.

A titre d'exemple, la figure 3.7 propose une vue en 3 dimensions (x, y, t) d'une impulsion THz générée par claquage dans l'air. Celle-ci a été reconstruite à partir des composantes transverses du champ (cf. projections latérales), obtenues à partir d'une seule mesure selon le processus d'extraction décrit ci-dessus. La projection de l'impulsion THz sur le plan transverse à l'axe des temps (plan d'onde) laisse clairement apparaître l'état de polarisation de l'impulsion THz générée.

3.3.1 Résultats et analyse

Dans ce paragraphe, nous analyserons l'évolution de l'état de polarisation (module et orientation) du champ THz émis en fonction de la position z_0 du plasma jet d'hélium le long de l'axe optique ($x_0 = 0$, $y_0 = 0$). Il est à noter que nous ne nous sommes pas attardé sur l'analyse de l'ellipticité ζ car le calcul de cette valeur est trop imprécis du fait que l'impulsion THz est monocyclique.

Avant même de comprendre les interactions entre plasma externe et filament optique, et leur influence sur le signal THz rayonné, nous avons voulu dans un premier temps nous assurer que les modulations induites sont bel et bien liées au plasma jet. Pour ce faire, nous avons successivement mesuré :

1. un signal de référence en l'absence de plasma (flux d'hélium coupé et générateur de haute tension éteint),
2. avec haute tension seule (flux d'hélium coupé),
3. flux d'hélium seul (générateur de haute tension éteint),
4. avec plasma jet (flux d'hélium et haute tension)

Les mesures préliminaires n'ont montré aucun changement de la configuration *haute tension seule* sur le signal THz. Une mesure préliminaire est donnée sur la figure 3.8.

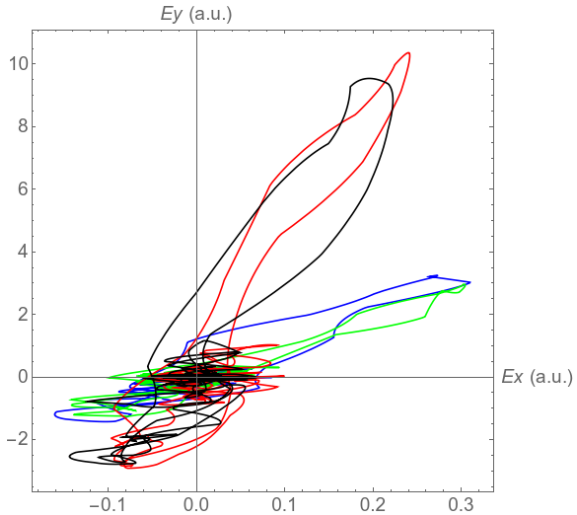


FIGURE 3.8 – Projection de l'état de polarisation sur E_x et E_y du rayonnement THz pour un signal de référence en l'absence de plasma (noir), avec haute tension seule (rouge), flux d'hélium seul (vert), et avec plasma jet (bleu).

On constate très clairement que les composantes du champ ne sont nullement impactées par le champ électrique BF (50 Hz) induit par la haute tension appliquée aux bornes des électrodes du plasma jet. En l'absence d'hélium cette haute tension ne permet pas de générer de plasma jet et n'engendre aucune modification du champ THz. Cela n'était pas intuitif si l'on considère les études de Löffler *et al.* [53]. Dans ces études, la génération d'impulsion THz par claquage dans l'air est renforcée en appliquant un champ électrostatique externe à l'aide d'une paire d'électrodes disposées de part et d'autre du filament optique. Toutefois, dans notre montage expérimental, les

électrodes dédiées à la génération du plasma jet d'hélium sont situées toutes deux en dessous de l'axe optique. Pour une telle configuration, le champ électrostatique induit par la haute tension est de l'ordre de quelques dizaines de kV/m. Il est vu par le faisceau pompe et le filament optique mais est trop faible pour assister le processus de génération THz par claquage. En effet, la figure 3.9 montre les lignes de champ électrostatique ainsi que l'amplitude du champ obtenues à l'aide du logiciel de simulation *Quickfield* pour une tension de 6 kV aux bornes des électrodes espacées de 20 mm. L'étude proprement dite ne prendra donc pas en compte la configuration avec la haute tension seule.

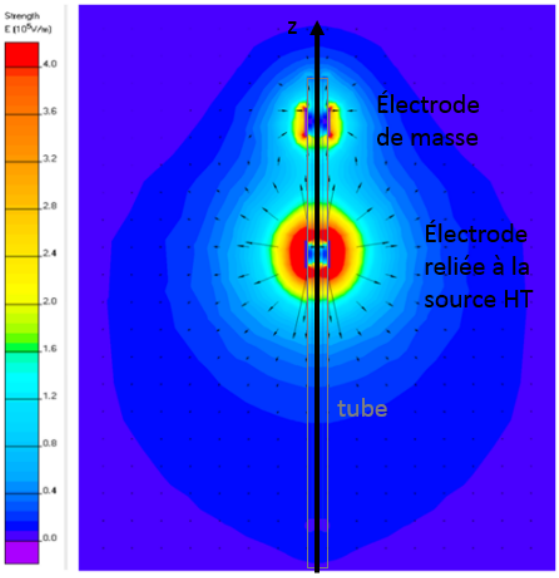


FIGURE 3.9 – Simulation des lignes de champs électrostatiques entre l'anode et l'électrode reliée à la masse donnant l'amplitude de champ (échelle du champ électrique de l'ordre de 10^5 V/m) [1].

Les mesures de l'étude sont présentées sur la figure 3.10 qui montre l'évolution de l'amplitude des composantes transverses de l'impulsion THz en fonction de z_0 et normalisées par rapport à celles obtenues à partir de l'impulsion de référence.

Le champ THz rayonné est modifié de la même façon par le plasma jet et par le flux d'hélium seul, signifiant clairement que seule la présence d'hélium gazeux interagit efficacement avec la pompe optique et le filament. Cela s'explique par un taux d'ionisation de l'hélium gazeux très faible de l'ordre du pourcent [127, 128] dans les plasmas froids tel que celui utilisé ici [129–131]. L'apport d'une faible densité de charge He^+/e^- (de l'ordre de 10^{13} cm^{-3}) introduite par le plasma jet d'hélium est finalement négligeable au regard de celle présente dans le plasma chaud que constitue le filament optique (de l'ordre de 10^{17} cm^{-3}) [132, 133].

S'il est indubitablement intéressant d'étudier la génération THz assistée par un plasma externe chaud (densité de charge > 10^{14} cm^{-3} en général), le manque de moyens techniques et surtout d'expertise dans ce type de plasma, nous en a dissuadé. Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéresserons donc uniquement aux interactions entre un flux de gaz, ici l'hélium, et la pompe optique dans le processus de génération THz par FWM dans un plasma photo-généré.

Influences de l'hélium gazeux sur le module et l'orientation de l'impulsion THz

La figure 3.11 montre l'évolution du module du champ THz induit par la présence du flux d'hélium gazeux situé à différentes positions z_0. Le module est normalisé par rapport au signal

1. Figure 3.9 extraite de la thèse de Farah Aljammal : "Non linear optics and plasmas : electric field characterisation and THz generation".

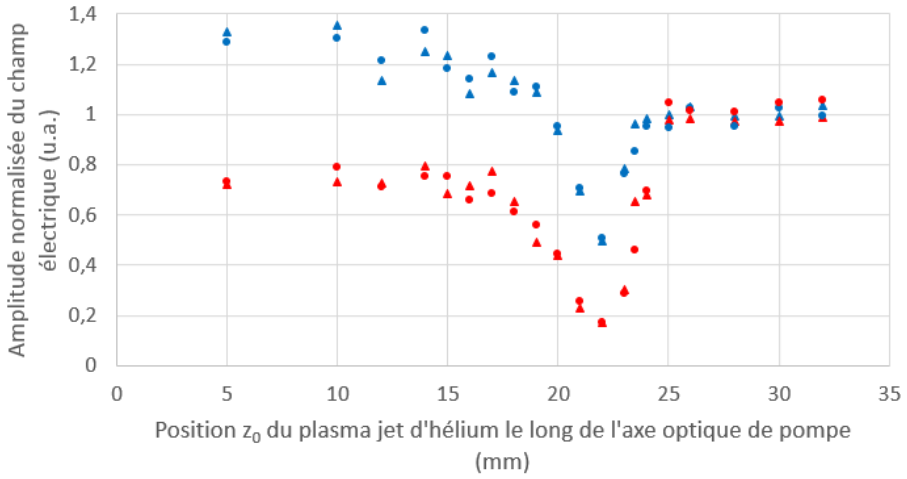


FIGURE 3.10 – Amplitudes normalisées des composantes E_x^{THz} (bleues) et E_y^{THz} (rouges) des impulsions THz en fonction de la position z_0 de la buse d'hélium, extraites des mesures avec flux d'hélium gazeux (cercles), et avec plasma jet (carrés).

de référence (en l'absence de flux d'He) et calculé à partir des composantes E_x^{THz} et E_y^{THz} selon l'équation (3.13a).

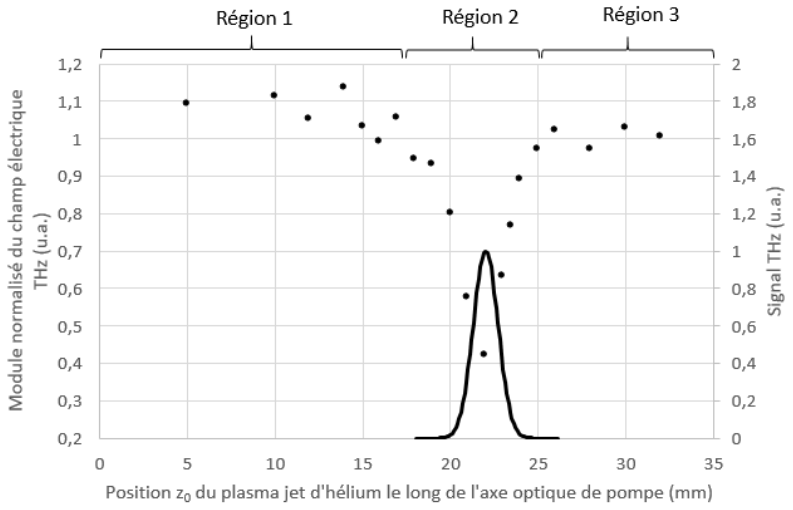


FIGURE 3.11 – Module normalisé du champ THz en fonction de la position z_0 de la buse d'hélium (cercles), et profil de la distribution linéique de sources THz (trait plein) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1.

La figure 3.12 présente quant à elle la variation d'orientation de l'impulsion THz induite par le flux d'He en fonction de sa position le long de l'axe optique de pompe. Ces variations sont obtenues en comparant les orientations de polarisations θ calculées à partir de l'équation (3.13b), avec et sans (référence) flux d'He.

On peut clairement observer sur ces deux figures trois régions distinctes dans lesquelles les effets induits par la présence du flux d'He diffèrent. Ces trois régions sont définies relativement à la position du filament optique au sein duquel sont distribuées linéiquement des sources THz. La densité linéique de sources THz le long du filament est extraite à partir d'une méthode expérimentale appelée "$z-scan$" détaillée dans le paragraphe 3.4.1, et est matérialisée par la courbe en trait

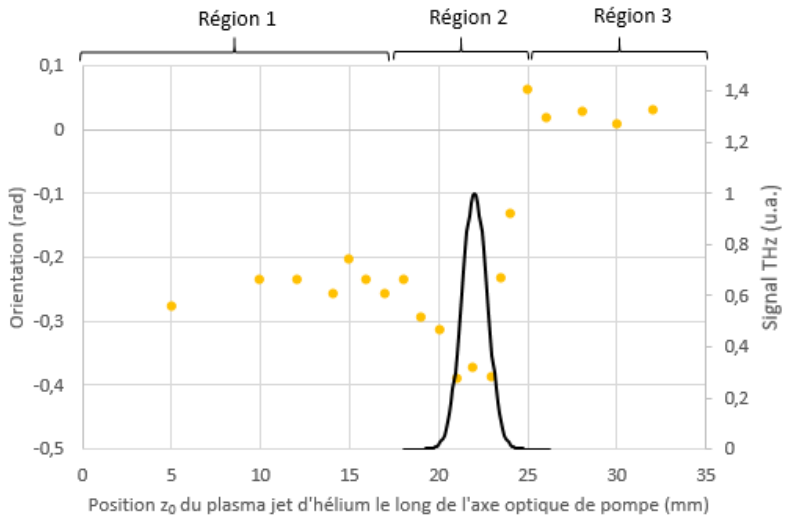


FIGURE 3.12 – Variation de l'orientation entre le champ électrique THz généré par claquage dans l'air et celui sous l'influence d'un flux d'hélium (cercles), et profil de la distribution linéique de sources THz (trait plein) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1.

plein de la figure 3.11.

Dans la région 1

Observations : Lorsque le flux d'hélium est situé en amont du plasma photo-induit (0 mm $\leq z \leq$ 18 mm), l'amplitude du champ THz est augmentée de plus de 10% et l'orientation est tournée de -0.2 rad, et ce indépendamment de la position z_0 du flux d'He.

Analyse phénoménologique : En soufflant un flux d'He au niveau du faisceau de pompe, une épaisseur de quelques millimètres d'air est remplacée par de l'He, engendrant une modification locale des indices de réfraction vus par l'impulsion pompe (800 nm) et son second harmonique (400 nm). Cette variation de dispersion chromatique induite par la présence d'He, engendre une modification du recouvrement temporel des deux impulsions qui régit en partie l'efficacité du processus de génération THz par claquage dans l'air [134]. Toujours en accord avec cette référence, la polarisation de l'impulsion THz subit une rotation égale au déphasage relatif entre les deux impulsions. En conclusion, la présence d'hélium en amont du filament engendre une modification de la dispersion chromatique qui se traduit par une modification du rendement de conversion et une rotation de la polarisation THz dont les valeurs sont indépendantes de la position du flux d'He.

Dans la région 2

Observations : Au niveau du plasma photo-généré (18 mm $\leq z \leq$ 24 mm), l'efficacité de génération ainsi que la rotation de la polarisation THz évoluent de façon continue avec la position du flux d'hélium.

Analyse phénoménologique : A l'instar de ce que nous venons de décrire pour la région 1, les sources THz situées en aval du flux d'He subissent l'effet de la modification de dispersion. En déplaçant graduellement le flux d'He le long du filament, de moins en moins de sources THz sont impactées jusqu'à atteindre la région 3, où le recouvrement temporel entre les impulsions optiques n'est plus modifié par la présence d'He. Cette simple description se manifesterait, entre autres, par une transition adiabatique de l'efficacité de génération THz entre les trois régions, ce qui ne correspond pas au comportement observé (cf. figure 3.11). La modification de dispersion

n'est donc pas le seul effet induit par la présence d'He.

A cela, il faut également considérer l'impact de l'He sur les caractéristiques du filament optique, qui constitue le milieu non linéaire dans lequel le rayonnement THz est généré par mélange à quatre ondes. En effet, le phénomène de filamentation dans les gaz naît de la compétition entre les phénomènes de diffraction et les effets d'optique non linéaires (lentille Kerr) qui tendent à faire converger le faisceau optique jusqu'à atteindre des intensités optiques suffisamment grandes pour ioniser les gaz présents au point focal. Le "claquage" ainsi obtenu, défocalise le faisceau optique qui, en divergeant, permet aux effets non linéaires de redevenir prépondérants pour faire converger de nouveau le faisceau optique. Cette succession de focalisation/défocalisation du faisceau optique est à l'origine de la formation du filament optique (plasma photo-induit) dont la géométrie dépend entre autres de la composition moléculaire du milieu de propagation (comme expliqué dans le paragraphe 1.2.1). Outre sa forme géométrique, la densité de porteurs au sein du filament varie également avec la composition et la pression du gaz ionisé. Dans notre étude, l'He est injecté à pression atmosphérique et par conséquent seule la nature du gaz joue un rôle sur cette densité de porteurs dont la valeur régit le rendement de conversion optique/THz [96, 98, 111]. En remplaçant localement de l'air par de l'hélium plus difficile à ioniser (énergie d'ionisation plus élevée), nous réduisons la densité de porteurs photo-créés et donc le rendement de conversion optique/THz : l'amplitude de l'impulsion THz chute brutalement jusqu'à atteindre un minimum quand le flux d'He recouvre au mieux le filament, avant de remonter tout aussi brutalement jusqu'à sa valeur nominale en atteignant la région 3.

Si les effets cumulés de la dispersion linéaire et de la composition gazeuse du filament décrits ci-dessus, suffisent à expliquer phénoménologiquement la figure 3.11, il n'en est rien concernant l'orientation de polarisation (cf. figure 3.12). En effet, selon Daï *et al.* [134], l'orientation de la polarisation ne dépend que du déphasage relatif entre les deux impulsions de pompe (fondamentale et second harmonique), et n'est donc a priori pas liée à l'énergie d'ionisation du gaz ; tout du moins pas directement… Nous devrions donc retrouver une transition adiabatique de la rotation de polarisation entre les 3 régions sondées, même en considérant la composition gazeuse du filament. Ceci n'est pas le cas, indiquant la présence d'un phénomène complémentaire qu'il est nécessaire de prendre en considération. Ledit phénomène se traduit par une variation du déphasage relatif des deux impulsions pompes, et dépend de la position du flux d'He dans le filament. Tout indique donc que l'effet recherché est une variation du coefficient non linéaire d'ordre 2 (effet Kerr) induite par l'introduction d'He en lieu et place de l'air au niveau du filament.

Dans la région 3

Observations : Lorsque le flux d'hélium est placé en aval, le plasma photo-induit ($z \geq 24$ mm), le signal THz n'est plus modifié relativement au signal de référence ($|E_{THz}| = 1$ et $\theta = 0$).

Analyse phénoménologique : Les observations corroborent les analyses phénoménologiques décrites dans les régions 1 et 2. En effet, la présence d'He engendre systématiquement un déphasage relatif entre les deux impulsions optiques par effet linéaire et non linéaire, auquel s'ajoute une modification de la densité de porteurs au niveau du filament d'où est générée l'impulsion THz. Si l'He se situe en aval des points sources, les modifications induites sont toujours présentes mais n'impactent plus la génération. En revanche, le signal THz généré rencontre, quant à lui, le flux d'He susceptible de modifier la réponse spectrale de l'impulsion (module et phase). Comme le montre la figure 3.13, les spectres en amplitude et en phase d'une mesure de référence et d'une mesure avec le flux d'hélium dans la région 3 se superposent. Ainsi, la réponse spectrale n'est pas modifiée, nous permettant de conclure qu'il n'y a en première approximation aucune interaction forte entre le rayonnement THz et l'He.

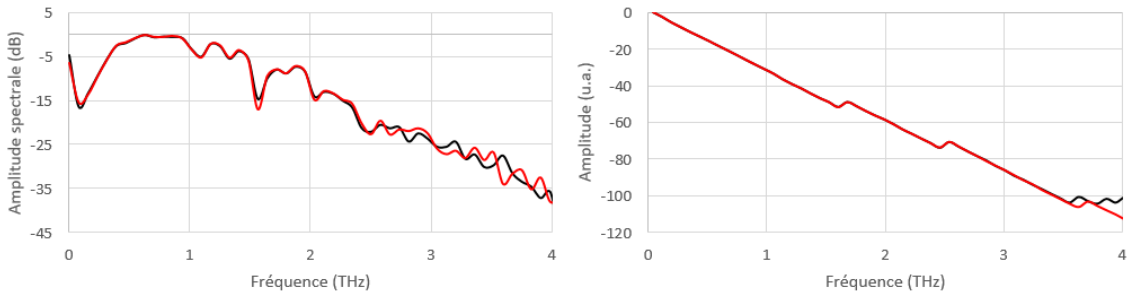


FIGURE 3.13 – Spectre en amplitude et en phase d'une mesure de référence (noir) et d'une mesure avec le flux d'hélium (rouge) positionné dans la région 3.

3.4 Modélisation

Les hypothèses émises dans le cadre des analyses phénoménologiques ci-dessus doivent être validées par un modèle physique qui prend en compte :

— l'indice de réfraction,

— le coefficient non linéaire d'ordre 2,

— et l'énergie d'ionisation

de l'air et de l'hélium, et qui puisse indifféremment expliquer les modifications de polarisation (amplitude et orientation) observées dans les 3 régions.

Ce modèle physique qui a été développé dans le cadre de ma thèse, est détaillé et validé dans la partie suivante.

3.4.1 Description du modèle

Nous considérons une distribution linéique N de sources THz le long de l'axe optique z. Chacune des sources infinitésimales rayonne avec une efficacité ρ, un champ THz polarisé linéairement et orienté avec un angle θ dans le référentiel propre du cristal EO de ZnTe <111> utilisé. Comme N, ρ et θ varient le long de l'axe optique, le signal THz total généré par claquage résulte de la somme intégrale de ces champs THz infinitésimaux. Les composantes transverses du champ THz total sont donc :

$$E_x \propto \int_{-\infty}^{+\infty} N(z) \times \rho(z) \times \cos(\theta(z))\ dz \tag{3.14a}$$

$$E_y \propto \int_{-\infty}^{+\infty} N(z) \times \rho(z) \times \sin(\theta(z))\ dz \tag{3.14b}$$

Le module $|E_{THz}|$ et l'orientation θ_{THz} du champ THz sont alors définis comme suit :

$$|E_{THz}| = \sqrt{E_x^2 + E_y^2} \tag{3.15}$$

$$\theta_{THz} = \arctan\left(\frac{E_y}{E_x}\right) \tag{3.16}$$

Notons que nous n'avons pas considéré d'éventuel retard/avance de phase entre les composantes du champ THz émis par chacune des sources infinitésimales. Ceci a pour conséquence heureuse de simplifier l'expression (3.13b) pour obtenir la relation (3.16).

Les approximations du modèle :

— **Le régime impulsionnel n'est pas pris en considération** : chaque point source émet une onde THz continue (CW). Cette approximation est justifiée tant que le décalage temporel induit par l'He entre les impulsions pompe est bien inférieur à la durée d'impulsion, ce qui est le cas comme nous le montrerons ultérieurement. En revanche, cette approximation ne nous permet pas de reconstruire la forme temporelle de l'impulsion THz, ce qui, là encore, n'est pas impactant dans la mesure où nous nous intéressons au module et à l'orientation du champ THz.

— **Les conditions d'accord de phase ne dépendent pas du plasma**. Cette approximation est valide tant que les fréquences plasma des gaz ionisés sont suffisamment éloignées de la fréquence optique de pompe d'une part, et de celles dont est composée l'impulsion THz d'autre part (typiquement de 0.1 à 3 THz dans notre étude). Pour une densité de porteurs photo-créés à pression atmosphérique typiquement de l'ordre de 10^{18} cm^{-3} [135], la fréquence plasma avoisine les 10 THz et varie très peu avec la composition du gaz ionisé, justifiant notre approximation.

— **La distribution linéique de sources $N(z)$ est indépendante de la composition du gaz**. Cette approximation revient à considérer que la forme du filament ainsi que la densité de porteurs ne dépendent pas des espèces ionisées. De prime abord cette approximation s'oppose littéralement aux hypothèses émises. En réalité, nous avons pris le parti dans ce modèle d'intégrer cette dépendance dans le rendement de conversion optique/THz ρ, comme décrit dans la section 3.4.2. Cette approximation, qui n'en est pas vraiment une, nous permet de déterminer expérimentalement la distribution linéique de sources THz $N(z)$ à l'aide d'une mesure de type $z-scan$ effectuée en l'absence de flux d'He et décrite dans la partie suivante.

Distribution linéique de sources THz : $z-scan$

Le principe

La technique $z-scan$ consiste à obstruer partiellement le signal THz émis par le filament à l'aide d'un diaphragme centré sur l'axe optique et dont on connaît le diamètre ϕ. Comme le montre le schéma de l'expérience (figure 3.14a), le signal THz émis par les sources situées en amont du diaphragme est partiellement écranté par ce dernier. En déplaçant le diaphragme le long du filament, on obstrue donc plus ou moins le signal THz que l'on mesure à l'aide de notre détection EO. Si l'on connaît le profil transverse du rayonnement THz émis par chacune des sources, on peut corréler la variation de puissance THz mesurée à la distribution linéique de sources THz.

Cette technique, aussi simple soit-elle à mettre en place expérimentalement, nécessite le développement d'un modèle sophistiqué qui puisse expliquer la variation de puissance détectée en fonction de la position du diaphragme. C'est en ajustant les paramètres du modèle que l'on extrait le profil de la distribution linéique de sources.

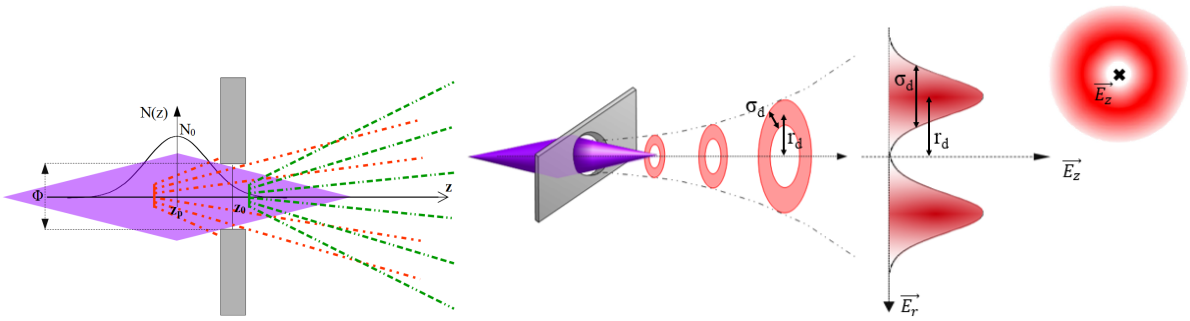
Le modèle

On considère que le filament plasma génère une distribution linéique gaussienne de sources THz :

$$N(z) = N_0 \, e^{-\left(\frac{z-z_p}{\sigma_p}\right)^2} \tag{3.17}$$

où z_p est la position du centre de la distribution et σ_p sa demi-largeur à $1/e$ (figure 3.14a).

En accord avec le paragraphe 2.3, chacune des sources émet un signal THz dont le profil transverse en champ est de forme "donut" (cf. figure 3.14b), que l'on modélise par une gaussienne



(a) (b)

FIGURE 3.14 – Schéma du z-scan. Figure a) : le rayonnement THz en rouge se situe en amont du trou (en gris), il n'est obstrué qu'en partie. Le rayonnement THz en vert, en aval du trou, est totalement détecté. La figure b) schématise le profil transverse en champ de type "donut" du signal THz émis par claquage dans l'air tel que décrit dans le paragraphe 2.3

excentrée de l'axe optique :

$$E_{THz}(r,z) = A(z)\exp\left(-\left(\frac{r-r_d(z)}{\sigma_d(z)}\right)^2\right) \tag{3.18}$$

où $A(z)$, $r_d(z)$, et $\sigma_d(z)$ sont respectivement l'amplitude, le rayon et la demi-largeur à $1/e$ du "donut", défini à une distance z du point source. Ces trois valeurs dépendent logiquement de la distance z, traduisant l'évolution du profil transverse tout au long de sa propagation. Dans la suite des calculs nous supposerons que :

1. le milieu de propagation est non absorbant dans le domaine THz,
2. le facteur de forme du "donut" (rapport entre rayon et largeur) est constant,
3. son rayon suit la loi de propagation des faisceaux gaussiens.

Ces trois hypothèses se traduisent respectivement par les relations suivantes :

$$A^2(z)\,\sigma_d(z) = A_0\,\sigma_{d_0} \quad \forall\, z \tag{3.19a}$$

$$\frac{r_d(z)}{\sigma_d(z)} = B(f) \quad \forall\, z \tag{3.19b}$$

$$r_d(z) = r_{d_0}\sqrt{1+\left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \tag{3.19c}$$

avec A_0, r_{d_0}, et σ_{d_0} respectivement l'amplitude, le rayon, et la demi-largeur à $1/e$ du "donut" au point source. Notons que comme la longueur de Rayleigh $z_R(=\frac{\pi r_{d_0}}{c}\,f)$ dépend de la fréquence f du signal THz, il en est de même pour le facteur $B(f)$. Ceci explique pourquoi la validation expérimentale de notre modèle s'est effectuée à une fréquence bien définie, comme nous le détaillons un peu plus loin dans cette section.

En considérant maintenant que seul le signal émis par les sources situées en amont du diaphragme de diamètre ϕ est partiellement obturé, la puissance THz totale mesurée dépend de la

position z_0 de ce dernier :

$$P_{THz}(z_0) \propto \overbrace{\begin{aligned}&\int_{z_0}^{+\infty} N(z)\left[\int_0^{+\infty} A^2(z)\,\exp\left(-\left(\sqrt{2}\,\frac{r-r_d(z)}{\sigma_d(z)}\right)^2\right)\,dr\right]dz \\ &+\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\left[\int_0^{\frac{\phi}{2}} A^2(z_0-z)\,\exp\left(-\left(\sqrt{2}\,\frac{r-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)^2\right)\,dr\right]dz\end{aligned}}^{\begin{array}{c}\text{Contribution des sources situées en aval du diaphragme}\\ \text{Contribution des sources situées en amont du diaphragme}\end{array}} \tag{3.20}$$

D'après la relation (3.19a), on obtient :

$$\begin{aligned}P_{THz}(z_0) \propto &\int_{z_0}^{+\infty} N(z)\left[\int_0^{+\infty} \frac{A_0^2\,\sigma_{d_0}}{\sigma_d(z)}\,\exp\left(-\left(\sqrt{2}\,\frac{r-r_d(z)}{\sigma_d(z)}\right)^2\right)dr\right]dz \\ &+\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\left[\int_0^{\frac{\phi}{2}} \frac{A_0^2\,\sigma_{d_0}}{\sigma_d(z_0-z)}\,\exp\left(-\left(\sqrt{2}\,\frac{r-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)^2\right)dr\right]dz\end{aligned} \tag{3.21}$$

En procédant aux changements de variables suivants : $\begin{cases} r_1 = \sqrt{2}\left(\dfrac{r-r_d(z)}{\sigma_d(z)}\right) \\ r_2 = \sqrt{2}\left(\dfrac{r-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)\end{cases}$, on obtient :

$$\begin{aligned}P_{THz}(z_0) \propto \frac{A_0^2\,\sigma_{d_0}}{\sqrt{2}} &\left[\int_{z_0}^{+\infty} N(z)\left[\int_{-\frac{\sqrt{2}\,r_d(z)}{\sigma_d(z)}}^{+\infty} \exp\left(-r_1^2\right)\,dr_1\right]dz\right. \\ &\left.+\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\left[\int_{-\frac{\sqrt{2}\,r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}}^{-\sqrt{2}\frac{\phi/2-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}} \exp\left(-r_2^2\right)\,dr_2\right]dz\right]\end{aligned} \tag{3.22}$$

En définissant la fonction erreur complémentaire $\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_x^{+\infty}\exp\left(-r^2\right)dr$, on obtient :

$$\begin{aligned}P_{THz}(z_0) \propto \frac{\sqrt{\pi}A_0^2\,\sigma_{d_0}}{2\sqrt{2}} &\left[\int_{z_0}^{+\infty} N(z)\,\operatorname{erfc}\left(\frac{-\sqrt{2}r_d(z)}{\sigma_d(z)}\right)dz\right. \\ &\left.+\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\left(\operatorname{erfc}\left(\frac{-\sqrt{2}\,r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)-\operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\,\frac{\frac{\phi}{2}-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)\right)dz\right]\end{aligned} \tag{3.23}$$

En accord avec le principe de conservation du facteur de forme donné par l'équation (3.19b), la puissance THz se réécrit :

$$\begin{aligned}P_{THz}(z_0) \propto &\frac{\sqrt{\pi}A_0^2\,\sigma_{d_0}}{2\sqrt{2}}\,\operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\,B(f)\right) \\ &\times\left[\int_{z_0}^{+\infty} N(z)\,dz+\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\left(1-\frac{\operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\,\frac{\phi/2-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)}{\operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\,B(f)\right)}\right)dz\right]\end{aligned} \tag{3.24}$$

Puis :

$$\begin{aligned}P_{THz}(z_0) \propto &\frac{\sqrt{\pi}A_0^2\,\sigma_{d_0}}{2\sqrt{2}}\,\operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\,B(f)\right)\times\left[\int_{-\infty}^{+\infty} N(z)\,dz\right. \\ &\left.-\frac{1}{\operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\,B(f)\right)}\int_{-\infty}^{z_0} N(z)\,\operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\,\frac{\phi/2-r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right)dz\right]\end{aligned} \tag{3.25}$$

En prenant en considération le profil gaussien de la distribution linéique de sources définie par l'équation (3.17), on obtient :

$$P_{THz}(z_0) \propto \frac{\sqrt{\pi} A_0^2 \sigma_{d_0} N_0}{2\sqrt{2}} \operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\, B(f)\right) \times \left[\sqrt{\pi}\sigma_p - \frac{1}{erfc\left(-\sqrt{2}\, B(f)\right)} \times \int_{-\infty}^{z_0} \exp\left(-\left(\frac{z-z_p}{\sigma p}\right)^2\right) \times \operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\, \frac{\phi/2 - r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right) dz\right] \tag{3.26}$$

$$\Rightarrow P_{THz}(z_0) = P_0 \times \left[1 - \frac{1}{X} \times \int_{-\infty}^{z_0} \exp\left(-\left(\frac{z-z_p}{\sigma p}\right)^2\right) \times \operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\, \frac{\phi/2 - r_d(z_0-z)}{\sigma_d(z_0-z)}\right) dz\right] \tag{3.27}$$

où $P_0 \propto \dfrac{\pi A_0^2 \sigma_{d_0} \sigma_p N_0}{2\sqrt{2}}$ est la puissance THz rayonnée et collectée en l'absence de diaphragme (ou pour $\phi \to +\infty$) et $X = \sqrt{\pi}\sigma_p \operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2} B(f)\right)$.
On effectue un second changement de variable : $Z = z_0 - z$.
D'où :

$$P_{THz}(z_0) = P_0 \left[1 + \frac{1}{X} \int_{+\infty}^{0} \exp\left(-\left(\frac{z_0 - Z - z_p}{\sigma_p}\right)^2\right) \operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\, \frac{\phi/2 - r_d(Z)}{\sigma_d(Z)}\right) dZ\right] \tag{3.28}$$

Ainsi, la puissance THz normalisée $\tilde{P}_{THz}$ émise par une distribution linéique de sources rayonnant selon un profil de type "donut", et transmise au travers d'un diaphragme de diamètre ϕ centré sur l'axe optique et situé en $z = z_0$ vaut finalement :

$$\tilde{P}_{THz}(z_0) = 1 - \frac{1}{X} \int_{0}^{+\infty} \exp\left(-\left(\frac{z_0 - Z - z_p}{\sigma_p}\right)^2\right) \operatorname{erfc}\left(\sqrt{2}\, \frac{\phi/2 - r_d(Z)}{\sigma_d(Z)}\right) dZ \tag{3.29}$$

D'après les relations (3.19b) et (3.19c),

$$\tilde{P}_{THz}(z_0) = 1 - \frac{1}{X} \int_{0}^{+\infty} \exp\left(-\left(\frac{z_0 - Z - z_p}{\sigma_p}\right)^2\right) \operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\, B\left(1 - \frac{\phi}{2\, r_d(Z)}\right)\right) dZ \tag{3.30}$$

avec :

$$r_d(Z) = r_{d_0} \sqrt{1 + \frac{Z^2 c^2}{\pi^2 r_{d_0}^4 f^4}} \tag{3.31}$$

En prenant en considération les conditions aux limites :

$$\lim_{z_0 \to +\infty} \tilde{P}_{THz}(z_0) = 0 \tag{3.32}$$

le coefficient X est défini comme suit :

$$X = \lim_{z_0 \to +\infty} \left[\int_{0}^{+\infty} \exp\left(-\left(\frac{z_0 - z - z_p}{\sigma_p}\right)^2\right) \operatorname{erfc}\left(-\sqrt{2}\, B\left(1 - \frac{\phi}{2\, r_d(z)}\right)\right) dz\right] \tag{3.33}$$

Finalement, le modèle proposé se résume par les équations (3.30), (3.31), et (3.33) faisant intervenir les paramètres d'ajustement liés à la densité linéique de sources THz (z_p et σ_p) d'une part, et au profil transverse rayonné par chacune des sources (r_{d_0}) d'autre part.

Les résultats

Chacun des points de la figure 3.15 correspond à la puissance normalisée obtenue expérimentalement pour un diaphragme positionné en z_0 selon le protocole suivant :

1. acquisition de l'impulsion temporelle avec le banc optique de génération THz par claquage dans l'air et sa détection EO sensible en polarisation comme décrit précédemment (cf. partie 3.3),
2. calcul des spectres en module de chacune des composantes E_x et E_y par FFT,
3. calcul du module au carré du champ THz à une fréquence f donnée : $P_{THz} \propto |E_{THz}|^2 = |E_x|^2 + |E_y|^2$,
4. calcul du facteur de forme à cette même fréquence f à partir du profil transverse extrait par "diaphragme edge" (cf. paragraphe 2.3).

La valeur ainsi calculée est ensuite divisée par la puissance P_0 obtenue de la même manière et à la même fréquence, mais en l'absence de diaphragme.

Les puissances normalisées extraites expérimentalement selon ce protocole sont ensuite comparées aux valeurs calculées numériquement à l'aide du modèle physique résumé par l'équation (3.30). Le calcul intégral ne pouvant numériquement pas s'effectuer sur un espace semi infini, le programme spécialement développé à cet effet optimise le temps de calcul, en opérant une somme discrète entre $z = 0$ et $z = 2\sigma_p$ avec un pas de discrétisation $\Delta z = \sigma_p/100$. Cette approximation est justifiée du fait que la distribution linéique de sources est spatialement limitée (profil gaussien). L'erreur relative engendrée par cette approximation est inférieure à $\mathrm{erfc}(2) = 0,5\%$. De plus, cette manière d'opérer ajuste automatiquement les critères de discrétisation aux caractéristiques z_p et σ_p de la distribution linéique de sources. Ainsi, l'extraction des paramètres d'ajustement (σ_p, z_p, et r_{d_0}), obtenus en minimisant l'erreur quadratique moyenne entre les points de mesure et le modèle, n'est plus impactée par l'erreur numérique induite par la discrétisation du modèle.

On observe ainsi, sur la figure 3.15, les courbes des modèles pour deux diaphragmes de tailles différentes (ϕ = 1 mm et 2,5 mm). L'évolution de ces courbes suit les points de mesures. De plus, les paramètres d'ajustement de celles-ci, σ_p, z_p, et r_{d_0} valent respectivement 1 mm, 22 mm et 0,6 mm. La demi-largeur de la distribution linéique gaussienne de sources THz, σ_p, doit être inférieure à la longueur du filament qui est d'environ 1 cm. Enfin, la valeur du rayon du "donut" au point source r_{d_0} peut être approximée en utilisant les équations de propagation d'un faisceau gaussien en connaissant le waist du faisceau THz grâce au *diaphragme-edge* décrit dans le paragraphe 2.3. On trouve au point source, un waist de 1,05 mm qui est proche de la valeur r_{d_0}. Ces valeurs sont donc dans des ordres de grandeur attendus. On peut en conclure que les sources THz du filament plasma peuvent être assimilées à une distribution linéique de profil gaussien, celle-ci est dessinée sur la figure 3.15. On peut voir qu'à partir de la position du profil, la puissance THz transmise diminue, et ce avec un décalage du fait de la taille du trou qui laisse toujours passer une partie du rayonnement THz. Dans l'idéal, il faudrait avoir un trou de taille variable mesurant exactement le diamètre du filament plasma et le centrer à la perfection afin de ne plus laisser passer de rayonnement THz une fois que le trou s'est décalé vers les z grands. Ainsi, selon notre modèle la distribution de sources THz s'écrit :

$$N(z) = N_0\, e^{-(z-22)^2} \tag{3.34}$$

3.4.2 Étude de l'efficacité de génération THz

L'efficacité de génération ou rendement de conversion optique/THz est lié aux caractéristiques du plasma jouant le rôle de milieu non linéaire, nécessaire au processus FWM, et au recouvrement

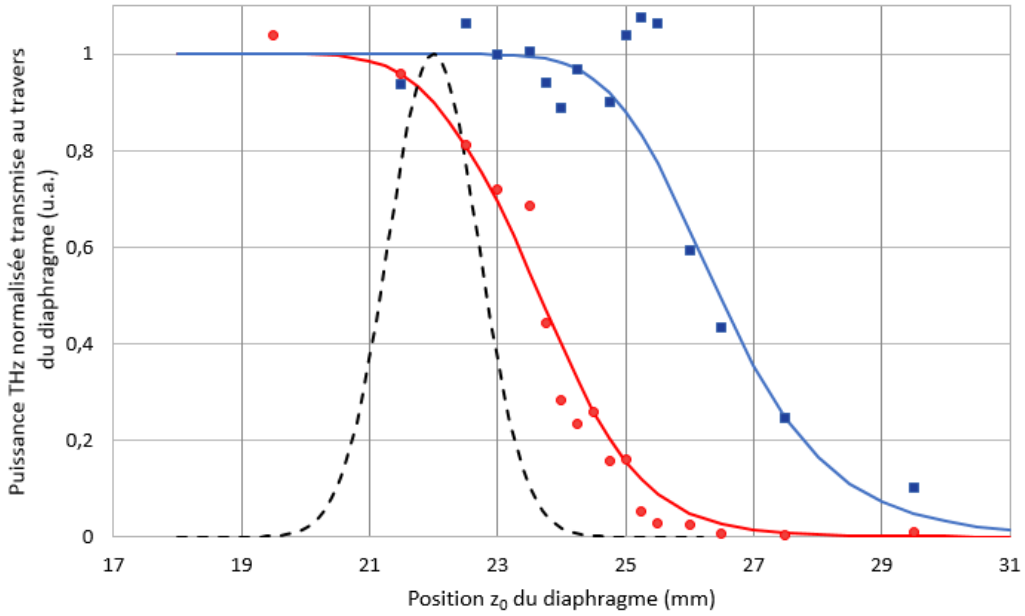


FIGURE 3.15 – Puissance normalisée à $f = 0.625$ THz, transmise à travers deux diaphragmes en fonction de leur position z_0. Les points rouges et les carrés bleus sont respectivement les points de mesures obtenus respectivement pour un diaphragme d'1 mm et de 2,5 mm de diamètre. Les courbes rouge et bleue sont respectivement les courbes d'ajustement associées selon le modèle proposé et pour un facteur de forme à 0,625 THz, $B = 2,3$; et le profil de la distribution linéique de sources THz (pointillés) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1.

spatio-temporel des impulsions pompes (fondamentale et harmonique) au niveau de ce plasma. En remplaçant localement l'air par l'He, on modifie les caractéristiques optiques du milieu de propagation d'une part, et la composition atomique du gaz ionisé lorsque le flux d'He est positionné au niveau du filament d'autre part. Le rendement de conversion ρ doit prendre en compte ces deux effets qui coexistent quand le flux d'He est placé au niveau du filament (région 2). Afin de bien comprendre ces deux processus liés aux caractéristiques atomiques et optiques des gaz mis en jeu (ici He et air), nous avons découplé les études présentées dans les deux parties suivantes.

Influence des caractéristiques atomiques du gaz

Comme expliqué dans le chapitre 2 (cf paragraphe 2.2.5), l'impulsion THz est générée par mélange à quatre ondes tout au long du plasma que constitue le filament optique. L'efficacité de génération ρ dépend de la densité de porteurs au sein du filament dont la présence engendre également une absorption du signal THz généré. Ces deux effets dépendant de la densité de porteurs photo-générés, et donc de la puissance optique de pompe, s'opposent et se traduisent par le modèle présenté par l'équation (2.2). Dans cette partie nous nous intéressons non pas à la dépendance de ρ en fonction de la puissance de pompe, mais plutôt de sa dépendance à la composition du gaz ionisé.

Sans aller jusqu'à considérer les équations différentielles qui modélisent la dynamique des porteurs photo-créés au sein du plasma (approximation justifiée si la durée de vie des porteurs est grande devant la durée d'impulsion), l'efficacité de génération ne dépendra, pour une puissance optique et une pression de gaz données, que du rendement d'ionisation.

Nous définissons ici le rendement d'ionisation comme étant le nombre de molécules ionisées par photon incident. Ce rendement est proportionnel au rapport de l'énergie des photons par l'énergie d'ionisation E_i^g nécessaire pour arracher l'électron primaire aux molécules de gaz. Il dépend également de la "probabilité de collision" entre photons et molécules non-ionisées dont la valeur est proportionnelle à leur section efficace S_{eff}^g, et leur densité volumique, que l'on considère ho-

mogène dans le volume du filament de longueur l.

En négligeant les phénomènes d'ionisations multiples des molécules (très peu probable au vu des énergies d'ionisation nettement plus élevées qu'elles requièrent), on s'attend donc à ce que l'efficacité de génération THz dépende de la composition du gaz g considéré et de ses caractéristiques physiques, comme suit :

$$\rho_g \propto \frac{S_{eff}^g \mathcal{N}_a \, l \, h\nu}{V_{mol}^g \, E_i^g} \tag{3.35}$$

où $\mathcal{N}_a$ est le nombre d'Avogadro, V_{mol}^g le volume molaire du gaz. Notons que la section efficace est directement liée au rayon de Van der Waals r_w des atomes constituant le gaz. Si le gaz est monoatomique (ex. He), on modélise chaque particule par une sphère de rayon r_w dont la section efficace vue par un photon incident vaut :

$$S_{eff} = \pi \, r_w^2 \tag{3.36}$$

Si le gaz est diatomique (ex. O_2 et N_2), on modélise la molécule par un "bâtonnet" couronné à chaque extrémité par un hémisphère de rayon r_w et dont la longueur d correspond à la distance interatomique. Selon ce modèle simple des molécules diatomiques, la section efficace vue par un photon dépendra de l'orientation aléatoire de la molécule relativement à l'axe optique. Ainsi, la section efficace moyenne des molécules diatomiques vaut :

$$S_{eff} = \pi \, r_w^2 + r_w \, d \tag{3.37}$$

Selon ce modèle volontairement "simpliste", qui ne prend en considération :

— ni la dynamique des porteurs,

— ni le profil temporel de l'impulsion optique,

— ni la distribution spatio-temporelle de la densité volumique de molécules non-ionisées le long du filament,

le rapport en amplitude du champ THz rayonné par claquage dans l'hélium relativement à celui rayonné par un filament de diazote vaut :

$$\frac{E_{THz}^{He}}{E_{THz}^{N_2}} = \frac{\rho_{He}}{\rho_{N_2}} = \frac{V_{mol}^{N_2} \, E_i^{N_2} \, S_{eff}^{He}}{V_{mol}^{He} \, E_i^{He} \, S_{eff}^{N_2}} \tag{3.38}$$

D'après les valeurs de la littérature reportées dans le tableau 3.1, l'équation (3.38) prédit un signal THz généré dans l'He deux fois moins intense que dans le diazote. Ce rapport est en parfait accord avec les résultats expérimentaux présentés par la figure 3.16.

	O_2	**N_2**	**Air**	**He**
r_w (Å)	2,06	2,25	2,12	2,11
d (Å)	1,21	1,10	1,12	X
S_{eff} (Å^2)	15,82	18,40	17,88	14,00
E_i (eV)	12,07	15,58	14,88	24,59
V_{mol} (mm^3/mol)	2,36 . 10^7	2,35 . 10^7	2,364 . 10^7	2,241 . 10^7

TABLEAU 3.1 – Caractéristiques physiques du dioxygène, du diazote et de l'hélium extraites de la littérature [136].

La figure 3.16 présente l'amplitude du champ THz généré par claquage dans différents gaz en fonction de la puissance optique de pompe. Ces courbes ont été obtenues en plaçant la buse de

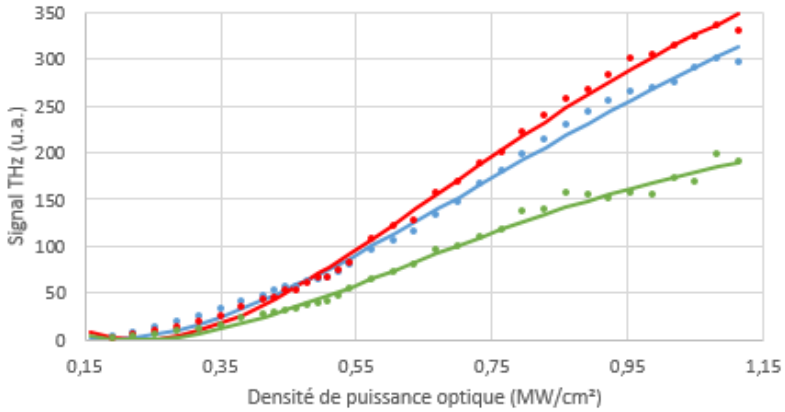


FIGURE 3.16 – Amplitude du champ électrique THz généré par claquage dans l'air (bleu), dans l'hélium (vert), et dans le diazote (rouge), en fonction de la densité de puissance optique de pompe.

gaz au niveau du filament. Cette buse de gaz n'a pas été déplacée tout au long de la campagne de mesures, seul le gaz soufflé a été modifié.

Comme décrit dans la partie 2.2.5 du chapitre 2, la compétition entre génération et absorption du signal THz par les porteurs se traduit par un comportement asymptotique en fonction de la puissance de pompe, et ce indépendamment de la composition du gaz, que l'on retrouve clairement ici.

Pour conclure quant à la dépendance du rendement de conversion optique/THz en fonction des caractéristiques atomiques du gaz ionisé dans le filament, malgré un modèle simple, la validation expérimentale de la relation (3.35) nous permet d'affirmer que ce rendement est proportionnel à la section efficace du gaz ionisé et inversement proportionnel à son énergie d'ionisation :

$$\rho_g \propto \frac{S^g_{eff}}{E^g_i} \tag{3.39}$$

Cette approximation reste vraie tant que les gaz ionisés suivent la loi des gaz parfaits, se traduisant par un volume molaire constant à pression et température données, et ce indépendamment de la nature du gaz, comme le confirment les valeurs renseignées par le tableau 3.1.

Influence des caractéristiques optiques du gaz

Si l'efficacité de génération THz par filamentation dépend, comme nous venons de le voir, de la densité de porteurs photo-créés dont la valeur est régie par les caractéristiques atomiques du gaz ionisé (cf. partie 3.4.2), elle dépend également du recouvrement temporel de l'impulsion pompe avec son second harmonique au niveau du filament. Pour un décalage temporel δt entre ces deux impulsions de durée σ_t, le module du champ THz rayonné vaut :

$$|E_{THz}|(\delta t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \underbrace{\exp\left(-\left(\frac{2t}{\sigma_t}\right)^2\right) \sin(\omega t)}_{\text{Impulsion pompe}} \times \underbrace{\exp\left(-\left(2\frac{t-\delta t}{\sigma_t}\right)^2\right) \sin(2\omega(t-\delta t))}_{\text{Second harmonique}} \, dt \tag{3.40}$$

avec ω la pulsation laser. Ainsi, comme l'ont montré expérimentalement Dai *et al.* [134, 137], l'évolution du signal THz généré en fonction du décalage temporel est décrite par le produit de convolution des deux impulsions.

En considérant le décalage temporel induit par l'ajout d'He bien inférieur à la durée des impulsions, le rendement de conversion se résume au produit de convolution des porteuses optiques de chacune des deux impulsions, pour donner :

$$\rho \propto |\cos(2\omega\ \delta t + \varphi_0)| \tag{3.41}$$

φ_0 correspond au déphasage relatif entre les impulsions ω et 2ω en l'absence d'hélium (mesure de référence) lié à la dispersion chromatique de l'air le long du chemin optique situé entre le cristal de β-BBO et le filament. $\delta\varphi$ ($= 2\omega\ \delta t$) quant à lui correspond au déphasage relatif induit par l'ajout d'hélium à la place de l'air et peut s'écrire :

$$\delta\varphi = \frac{2\omega\ l\ \Delta D}{c} \tag{3.42}$$

où l correspond à l'épaisseur de la "tranche" d'air qui a été remplacée par l'He en amont du point source considéré, et ΔD la variation de dispersion chromatique. Si la buse d'He est intégralement en amont du filament (région 1), l est égal en première approximation au diamètre intérieur ϕ_{tube} de la buse qui souffle le flux d'He. En s'approchant du filament (région 2), la buse chevauche les sources THz qui ne voient par conséquent pas toutes la même épaisseur amont d'He. Ceci est pris en compte un peu plus loin dans le développement théorique.

Dans une expérience du type génération THz par claquage, les intensités optiques crêtes au niveau du filament sont énormes (de l'ordre de 10^{16} W/cm^2). Il convient donc indubitablement de considérer la réponse non linéaire des gaz, qui est prise en compte dans la variation de dispersion chromatique ΔD. Comme le faisceau est focalisé, l'intensité optique I_{opt} évolue le long de l'axe optique et nous obtenons :

$$\Delta D(z) = \Delta D_0 + \Delta D_2 \times I_{opt}(z) \tag{3.43}$$

$$\text{avec : } \Delta D_0 = \underbrace{\left[n_0^{He}(@800\ nm) - n_0^{He}(@400\ nm)\right]}_{\text{Dispersion chromatique dans l'He}} - \underbrace{\left[n_0^{air}(@800\ nm) - n_0^{air}(@400\ nm)\right]}_{\text{Dispersion chromatique dans l'air}}$$

la variation de dispersion chromatique faisant intervenir les valeurs des indices de réfraction n_0 de l'air et de l'hélium aux fréquences optiques de pompe et de son second harmonique, et :

$$\Delta D_2 = \underbrace{\left[n_2^{He}(@800\ nm) - n_2^{He}(@400\ nm)\right]}_{\text{Dispersion chromatique non linéaire dans l'He}} - \underbrace{\left[n_2^{air}(@800\ nm) - n_2^{air}(@400\ nm)\right]}_{\text{Dispersion chromatique non linéaire dans l'air}}$$

la variation de dispersion non linéaire faisant intervenir les coefficients non linéaires d'ordre 2 de l'air et de l'hélium.

Notons que les non linéarités d'ordre 1 n'apparaissent pas dans la relation (3.43). Ceci est dû au fait que les gaz sont des milieux centro-symétriques dans lesquels les non linéarités d'ordre impair sont nulles.

En régime linéaire

En amont du filament (région 1) et en aval (région 3), le profil transverse du faisceau pompe est étendu et la densité de puissance est par conséquent suffisamment faible pour négliger la réponse non linéaire des gaz : le rendement de conversion est impacté par la présence de l'hélium mais indépendamment de sa position.

Selon l'article [138], la formule de Sellmeier donne :

$$\begin{cases} n_{He}(@800\ nm) = 1,00003235 \\ n_{He}(@400\ nm) = 1,00003269 \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} n_{air}(@800\ nm) = 1,00026989 \\ n_{air}(@400\ nm) = 1,00027718 \end{cases}$$

A partir de ces valeurs et en accord avec la relation (3.42), l'ajout du flux d'hélium injecté au niveau de l'axe optique en amont du filament par une buse de 2 mm engendre un décalage temporel $\delta t \approx -0,046\ fs$. Cette valeur négative, du fait que l'hélium est moins dispersif que l'air, est de deux ordres de grandeur inférieure à la durée des impulsions ($\sigma_t = 45$ fs), validant l'approximation faite pour obtenir la relation (3.41). L'avance de phase associée est $\delta\varphi \approx -0,217$ radian, et peut expliquer à elle seule la variation relative du module du champ THz de 10% observée dans la région 1 de la figure 3.11. En effet, à partir de la relation (3.41), on montre que la variation de module de champs normalisée par la mesure de référence, dépend du déphasage induit par l'ajout d'He, mais également du déphasage φ_0 entre les deux impulsions en l'absence du flux d'hélium (mesure de référence) :

$$\frac{\Delta|E_{THz}|}{|E_{THz}|} = \left|\frac{\cos(\delta\varphi + \varphi_0)}{\cos(\varphi_0)}\right| - 1 \tag{3.44}$$

L'ajustement du modèle aux mesures obtenues avec un flux d'He dans la région 1 (en amont du filament), permet ainsi de déterminer la valeur de φ_0.

En régime non linéaire

Au vu des développements théoriques précédents, il s'avère donc que le rendement de génération THz est lié aux caractéristiques atomiques et optiques du gaz ionisé :

$$\rho(z, z_0) = \frac{S_{eff}(z, z_0)}{E_i(z, z_0)} \left|\cos(\delta\varphi(z, z_0) + \varphi_0)\right| \tag{3.45}$$

Ainsi, analyser la modulation de polarisation nécessite au préalable de modéliser les distributions longitudinales d'énergie d'ionisation, de section efficace, et celles régissant le déphasage induit par modulation des dispersions chromatiques linéaires et non linéaires. Ces distributions le long de l'axe optique z dépendent directement de la position z_0 de la buse d'He.

Pour ce faire, on considère un flux laminaire d'He (on néglige les phénomènes de turbulences) remplaçant l'air qu'il chasse intégralement (pas de mélange gazeux). S_{eff}, E_i, et $\delta\varphi$ sont alors modélisées par des fonctions "porte" Π de largeur ϕ_{tube}, centrées en $z = z_0$ et dont les amplitudes respectives sont égales à la différence des valeurs nominales entre l'He et l'air. Ainsi, l'énergie d'ionisation en z s'exprime :

$$E_i(z, z_0) = E_i^{air} + \Delta E_i \times \Pi\left(\frac{z - z_0}{\phi_{tube}}\right) \tag{3.46}$$

où $\Delta E_i = E^{He} - E^{air}$.
De même, la distribution linéique de section efficace s'exprime :

$$S_{eff}(z, z_0) = S_{eff}^{air} + \Delta S_{eff} \times \Pi\left(\frac{z - z_0}{\phi_{tube}}\right) \tag{3.47}$$

avec $\Delta S_{eff} = S_{eff}^{He} - S_{eff}^{air}$.

Si l'énergie d'ionisation et la section efficace sont des valeurs dépendant de la composition locale du gaz, le déphasage en z est quant à lui lié au cumul de retard pris par une impulsion relativement

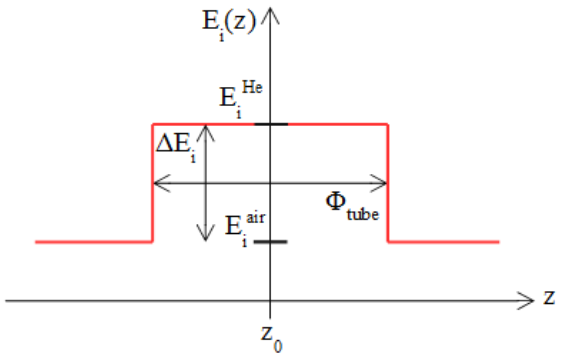


FIGURE 3.17 – Distribution linéique des énergies d'ionisation le long de l'axe optique pour un flux d'hélium centré en $z = z_0$ et soufflé par une buse dont le diamètre intérieur est de ϕ_{tube}.

à l'autre tout au long de leur copropagation du cristal de β-BBO jusqu'en z. Le déphasage induit par le flux d'He en $z = z_0$ s'écrit donc :

$$\delta\varphi\,(z, z_0) = \frac{4\pi}{\lambda} \int_{-\infty}^{z} \Pi\left(\frac{z - z_0}{\phi_{tube}}\right) \times \left[\Delta D_0 + \Delta D_2\, I_{opt}\,(z)\right]\, dz \tag{3.48}$$

avec I_{opt} l'intensité optique crête dépendant de la puissance optique moyenne de pompe $\langle P_{opt} \rangle$ (à $\lambda = 800$ nm), du taux t_x de répétition de la chaîne laser amplifiée, de la durée à $1/e$ de l'impulsion gaussienne σ_t, et du waist ω à $1/e$ du faisceau gaussien :

$$I_{opt}\,(z) = \frac{4 < P_{opt} >}{t_x\ \sigma_t\ \pi^{3/2}\,\omega^2\,(z)} = \frac{\gamma}{\omega^2\,(z)} \tag{3.49}$$

Au vu de cette dernière expression, l'évolution de l'intensité optique de pompe le long de l'axe de propagation z est inversement proportionnelle au carré du waist en puissance du faisceau dont le profil est supposément gaussien. Modéliser le déphasage induit par l'ajout d'un flux d'He (cf. équation (3.58)), nécessite donc de modéliser l'évolution du waist de la pompe optique le long de l'axe optique.

Pour ce faire, utilisons le formalisme matriciel de l'optique géométrique (matrice ABCD) généralisé aux rayons complexes des faisceaux gaussiens, aussi appelé transformation de Kogelnik [139] :

$$\frac{1}{q_2(z)} = \frac{1}{R_2} - \frac{i\lambda}{\pi\omega_2^2} = \frac{C + D/q1}{A + B/q1} \tag{3.50}$$

où $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$ est la matrice du système optique au travers duquel se propage un faisceau gaussien dont le rayon complexe en entrée est q_1 (tel que $\frac{1}{q_1} = \frac{1}{R_1} - \frac{i\lambda}{\pi\omega_1^2}$). Ainsi, connaissant A, B, C, D et les caractéristiques du faisceau gaussien en entrée du système optique, nous pouvons connaître le rayon de courbure des plans d'onde (R_2) et le waist du faisceau (ω_2) en sortie du système optique.

Dans notre cas (cf. figure 3.18), nous cherchons à définir le waist du faisceau pompe à une distance z de la lentille convergente de focale f'. Le système optique considéré est donc constitué de cette lentille en entrée, suivie d'un milieu de propagation homogène dont l'indice de réfraction est approximativement égal à 1 qu'il s'agisse d'He ou d'air, et de longueur z.

La matrice associée à un tel système optique est alors :

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & z \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f' & 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 - z/f' & z \\ -1/f' & 1 \end{pmatrix} \tag{3.51}$$

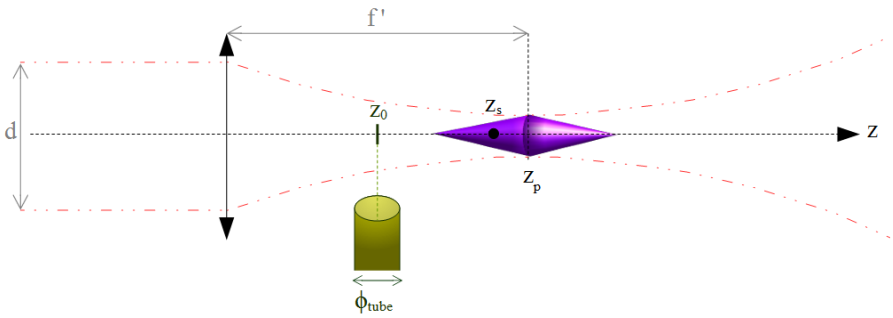


FIGURE 3.18 – Schéma du dispositif avec les paramètres z_s et z_0, respectivement la position de la source THz et la position du plasma jet correspondant à l'origine du repère pour les calculs du modèle non linéaire.

Pour des raisons de simplicité d'écriture, nous posons :

$$\frac{1}{q_1} = a_1 + ib_1 \text{ et } \frac{1}{q_2} = a_2 + ib_2$$

où a_2 est lié au rayon de courbure des plans d'onde et b_2 est lié au waist.

$$a_2 + ib_2 = \frac{-\frac{1}{f'} + a_1 + ib1}{\left(1 - \frac{z}{f'}\right) + z(a_1 + ib_1)} \tag{3.52}$$

Or, le faisceau laser délivré par la chaîne laser amplifiée est collimaté en entrée de lentille ($R_1(z) \to \infty$). Par conséquent $a_1 = \frac{1}{R_1(z)} = 0$. Ainsi :

$$a_2 + ib_2 = \frac{-1/f' + ib1}{(1 - z/f') + izb_1} \tag{3.53}$$

où $b_1 = -\frac{4\lambda}{\pi d^2}$, avec d le diamètre du faisceau optique en entrée de lentille.

$$a_2 + ib_2 = \frac{\left(-\frac{1}{f'} - i\frac{4\lambda}{\pi d^2}\right)\left(\left(1 - \frac{z}{f'}\right) + i\frac{4\lambda}{\pi d^2}\right)}{\left(1 - \frac{z}{f'}\right)^2 + \frac{16z^2\lambda^2}{\pi^2 d^4}} \tag{3.54}$$

Comme nous nous intéressons uniquement à l'évolution du waist du faisceau ($\propto b_2$) le long de l'axe optique, nous ne nous occupons, dans la suite du développement théorique, que de l'équation qui lie les parties imaginaires dans (3.54) :

$$b_2 = \frac{-\left(1 - \frac{z}{f'}\right)\frac{4\lambda}{\pi d^2} - \frac{4\lambda z}{\pi d^2 f'}}{\left(1 - \frac{z}{f'}\right)^2 + \frac{16z^2\lambda^2}{\pi^2 d^4}} \equiv \frac{\lambda}{\pi\omega^2} \tag{3.55}$$

Ainsi, en accord avec la théorie de Kogelnik, le waist de la pompe optique de longueur d'onde λ, calculé à une distance z en aval de la lentille convergente de focale f' focalisant le faisceau collimaté de diamètre d délivré par la chaîne laser amplifiée, vaut :

$$\omega^2(z) = \left(\frac{d}{2}\right)^2 \left(1 - \frac{z}{f'}\right)^2 + \left(\frac{2z\lambda}{\pi d}\right)^2 \tag{3.56}$$

En écrivant le waist sous la forme :

$$\omega^2(z) = az^2 + bz + c \text{ avec } \begin{cases} a = \dfrac{d^2}{4f'^2} + \left(\dfrac{2\lambda}{\pi d}\right)^2 \\ b = -\dfrac{d^2}{2f'} \\ c = \left(\dfrac{d}{2}\right)^2 \end{cases} \tag{3.57}$$

et d'après l'équation (3.58), on montre que le déphasage relatif entre les impulsions optiques, induit par l'He situé en $z = z_0$, au niveau d'une source THz située en z dans le référentiel centré au niveau du filament (soit à une distance $f' + z_s$ de la lentille), vaut :

$$\delta\varphi\,(z_s, z_0) = \underbrace{\frac{4\pi\ \Delta D_0\ (\chi_2 - \chi_1)}{\lambda}}_{\text{Contribution linéaire}} + \underbrace{\frac{4\pi\ \Delta D_2\ \gamma}{\lambda} \int_{\chi_1}^{\chi_2} \frac{dz}{a\,(z+f')^2 + b\,(z+f') + c}}_{\text{Contribution non linéaire } \delta\varphi_{NL}} \tag{3.58}$$

avec $\chi_1 = \min(z_s, z_0 - \phi_{tube}/2)$ et $\chi_2 = \min(z_s, z_0 + \phi_{tube}/2)$ qui sont les bornes d'intégration imposées par les positions respectives du flux d'He (z_0), de la source THz considérée (z_s), et ce au travers de la fonction porte.

Concernant la contribution non linéaire du déphasage $\delta\varphi_{NL}$, en posant $Z = z + f'$, on obtient :

$$\delta\varphi_{NL}\,(z_s, z_0) = \frac{4\pi\ \Delta D_2\ \gamma}{\lambda} \int_{\chi_1'}^{\chi_2'} \frac{dZ}{aZ^2 + bZ + c} \tag{3.59}$$

avec $\chi_1' = \min(z_s + f', z_0 + f' - \phi_{tube}/2)$ et $\chi_2' = \min(z_s + f', z_0 + f'\phi_{tube}/2)$.

Après une décomposition en éléments simples de $\dfrac{1}{aZ^2 + bZ + c}$, on obtient :

$$\delta\varphi_{NL}\,(z_s, z_0) = \frac{4\pi\ \Delta D_2\ \gamma}{\lambda\ (Z_1 - Z_2)} \left[\ln\left(\frac{Z - Z_1}{Z - Z_2}\right)\right]_{\chi_1'}^{\chi_2'} \tag{3.60}$$

où Z_1 et $Z_2 = Z_1^*$ sont les solutions complexes conjuguées de l'équation binomiale $aZ^2 + bZ + c = 0$, avec a, b, et c les coefficients définis en (3.57) :

$$\begin{cases} Z_1 = f'\ \dfrac{1 + ix}{1 + x^2} \\ x = \dfrac{4\lambda\ f'}{\pi\ d^2} \end{cases} \tag{3.61}$$

Comme $Z_2 = Z_1^*$ et que $Z \in \Re$, on montre que :

$$\begin{cases} Z_1 - Z_2 = 2i\,\mathscr{I}m\,(Z_1) \\ \ln\left(\dfrac{Z - Z_1}{Z - Z_2}\right) = 2i\arg\,(Z - Z_1) \end{cases} \tag{3.62}$$

où la partie imaginaire $\mathscr{I}m\,(Z_1) = \dfrac{f'\,x}{1 + x^2}$ et l'argument $\arg\,(Z - Z_1) = \arctan\left(\dfrac{f'\,x}{f' - Z\,(1 + x^2)}\right)$.

D'après les relations (3.62), et en se rappelant que $Z = z + f'$, l'équation (3.60) devient après simplification :

$$\delta\varphi_{_{NL}}(z_s, z_0) = \frac{4\sqrt{\pi}\,\langle P_{opt}\rangle\,\left(1+x^2\right)\,d^2\,\Delta D_2}{t_x\,\sigma_t\,\lambda^2\,f'^2}\left[\arctan\left(\frac{f'\,x}{f'x^2 + z\,(1+x^2)}\right)\right]_{\chi_1}^{\chi_2} \tag{3.63}$$

3.4.3 Etude de l'orientation de la polarisation THz

Comme prédit par le modèle (cf. 64), la présence du flux d'He s'accompagne également d'un changement d'orientation de l'état de polarisation de l'impulsion THz. En accord avec Dai *et al.* [134], une source infinitésimale située en z rayonne une impulsion THz dont l'orientation θ est égale au déphasage absolu entre l'impulsion pompe et l'impulsion harmonique au niveau de cette source. Il en découle que la rotation du champ THz rayonné par l'ensemble des sources disposées le long du filament, s'écrit :

$$\Delta\theta_{THz}(z_0) = \arctan\left[\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} N(z)\;\rho(z,z_0)\;\sin(\delta\varphi + \varphi_0)\;dz}{\int_{-\infty}^{+\infty} N(z)\;\rho(z,z_0)\;\cos(\delta\varphi + \varphi_0)\;dz}\right] - \theta_0 \tag{3.64}$$

avec θ_0 l'orientation de la polarisation THz en l'absence d'He.

Pour résumer

L'amplitude des composantes transverses E_x et E_y du champ THz rayonné par un filament centré en $z = z_p$, est altérée par un flux d'He situé en $z = z_0$, selon le modèle proposé :

$$\begin{cases} E_x(z_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} N(z)\;\rho(z,z_0)\;\cos(\theta(z,z_0))\;dz \\ \\ E_y(z_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} N(z)\;\rho(z,z_0)\;\sin(\theta(z,z_0))\;dz \end{cases} \tag{3.14}$$

N, ρ, et θ sont respectivement la distribution linéique de sources THz le long du filament optique, le rendement de génération THz de ces sources, et l'orientation du signal THz généré, définis comme suit :

$$\begin{cases} N(z) = N_0\;e^{-\left(\frac{z-z_p}{\sigma_p}\right)^2} & (3.17) \\ \\ \rho(z,z_0) = \dfrac{S_{eff}(z,z_0)}{E_i(z,z_0)}\;\left|\cos(\delta\varphi(z,z_0) + \varphi_0)\right| & (3.45) \\ \\ \theta(z,z_0) = \delta\varphi(z,z_0) + \varphi_0 \end{cases}$$

La section effective S_{eff}, et l'énergie d'ionisation E_i apparaissant dans l'expression du rendement de conversion sont propres aux molécules qui constituent le gaz ionisé :

$$\begin{cases} E_i(z,z_0) = E_i^{air} + \Delta E_i \times \Pi\left(\dfrac{z-z_0}{\phi_{tube}}\right) & (3.46) \\ \\ S_{eff}(z,z_0) = S_{eff}^{air} + \Delta S_{eff} \times \Pi\left(\dfrac{z-z_0}{\phi_{tube}}\right) & (3.47) \end{cases}$$

et le déphasage relatif $\delta\varphi$ induit par la présence d'He, est lié aux caractéristiques d'optique linéaire et non linéaire d'ordre 2 :

$$\delta\varphi\left(z_s,z_0\right)=\underbrace{\frac{4\pi\ \Delta D_0\ \left(\chi_2-\chi_1\right)}{\lambda}}_{\text{Contribution linéaire}}+\underbrace{\frac{4\sqrt{\pi}\ \langle P_{opt}\rangle\ \left(1+x^2\right)\ d^2\ \Delta D_2}{t_x\ \sigma_t\ \lambda^2\ f'^2}\ \left[\arctan\left(\frac{f'\,x}{f'x^2+z\,(1+x^2)}\right)\right]_{\chi_1}^{\chi_2}}_{\text{Contribution non linéaire }\delta\varphi_{NL}} \tag{3.58}$$

L'ensemble de ces équations permet de calculer le module du champ THz ainsi que son orientation dans toutes les régions :

$$|E_{THz}|=\sqrt{E_x^2+E_y^2}$$

$$\theta_{THz}=\arctan\left(\frac{E_y}{E_x}\right)$$

Ce modèle est confronté à nos mesures dans le paragraphe suivant.

3.4.4 Résultats et interprétations

Le système de détection EO sensible en polarisation détaillé dans la partie 3.2, a permis de mesurer simultanément les deux composantes transverses de l'impulsion THz. La figure 3.19 montre qu'en fonction de la position du flux d'He, l'impulsion THz est modulée en amplitude et/ou en orientation.

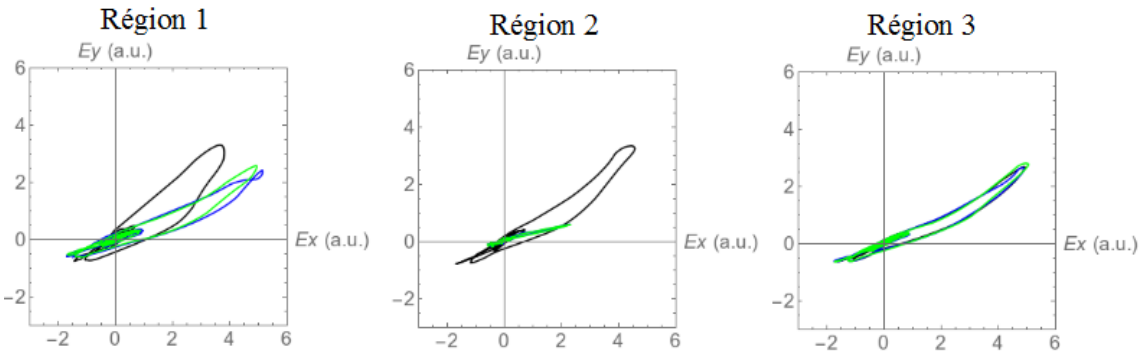


FIGURE 3.19 – Projection de l'état de polarisation sur E_x et E_y du rayonnement THz avec le flux d'hélium en vert, avec le plasma jet en bleu et sans ajout en noir (mesure de référence), en fonction de la région du flux d'hélium.

Concernant le module du champ THz

L'amplitude de l'impulsion THz a été calculée à l'aide de l'équation (3.13a) à partir des composantes E_x et E_y mesurées pour chacun des points temporels de l'impulsion. Le module du champ THz correspond alors à la valeur maximale de l'amplitude du champ. La figure 3.20 présente les modules ainsi calculés (points bleus) pour les différentes positions du flux d'He.
La courbe en trait plein correspond au modèle proposé (cf. résumé en page 78) pour les paramètres expérimentaux mesurés suivants :

— une puissance optique moyenne $\langle P_{opt}\rangle = 1$W,

— une lentille convergente de focale $f' = 200$mm,

— un faisceau pompe collimaté de diamètre $d = 7$mm (waist à $1/e$ en champ),

— une longueur d'onde optique $\lambda = 800$nm,

— un taux de répétition $t_x = 1000$ Hz,

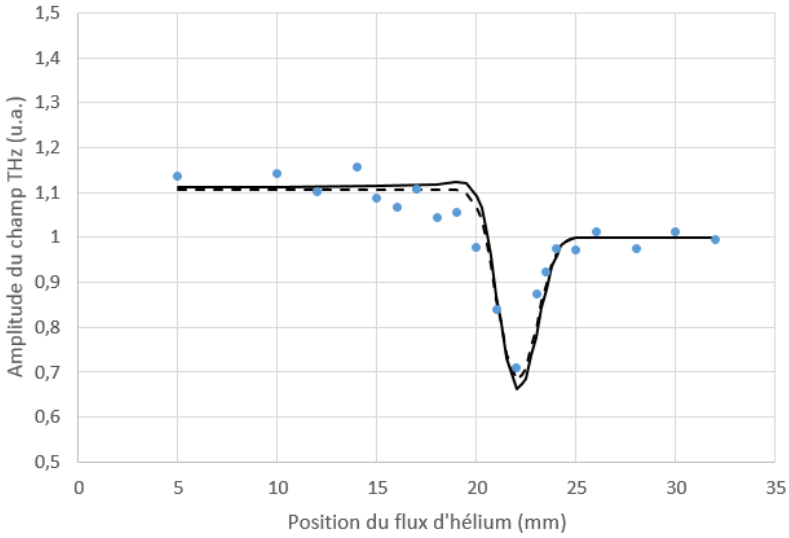


FIGURE 3.20 – L'amplitude du champ THz mesurée (points bleus) en fonction de la position du flux d'hélium. Les courbes correspondent au modèle physique résumé en page 78 avec contribution non linéaire d'ordre 2 (trait plein), et sans (pointillés).

— une durée d'impulsion $\sigma_t = 45$fs,
— et une différence de dispersion chromatique issue de la littérature $\Delta D_0 = -6,95.10^{-6}$ [138].

Le très bon accord entre mesures et modèle a été obtenu en ajustant l'épaisseur d'He ϕ_{tube}, le déphasage à l'origine φ_0 induit par dispersion chromatique linéaire de l'air entre le cristal de β-BBO et le filament, et la variation de dispersion non linéaire du second ordre ΔD_2. L'erreur quadratique entre mesures et modèle a été minimisée pour les paramètres d'ajustements suivants :

— $\phi_{tube} = 2$ mm,
— $\varphi_0 = 0{,}56$ radian modulo π,
— $-10^{-17} \leq \Delta D_2 \leq 10^{-18}$ cm^2/W.

L'épaisseur d'He ϕ_{tube} correspond en première approximation au diamètre intérieur du tube, qui a été mesuré au pied à coulisse. D'autre part, la valeur de φ_0 ajustée a été comparée à la valeur calculée à partir de la dispersion chromatique de l'air [138], et ce pour une distance de 6 cm entre le cristal de β-BBO et le filament. Cette valeur calculée est de 6,87 radians, correspondant à 0,03 radian près à 0,56+2π. En revanche, le module prédit par le modèle est trop peu sensible à la variation de dispersion chromatique non linéaire du second ordre ΔD_2. Ce résultat était prévisible car, comme nous le verrons dans la suite de ce chapitre, le déphasage relatif induit par la présence du flux d'He engendre majoritairement une rotation de l'état de polarisation, qui, par conséquent, impacte à moindre mesure l'amplitude du champ THz rayonné. Ce dernier est en revanche sensible à la nature du gaz ionisé, qui, au travers de la section efficace des molécules qui le composent et de leur énergie d'ionisation, change la densité de porteurs nécessaire à la génération THz. Finalement, l'extraction précise ΔD_2 ne peut se faire qu'au travers de l'étude de la rotation $\Delta\theta_{THz}$ du champ THz induite par le flux d'He, ce qui est fait dans la section suivante.

Concernant l'orientation de la polarisation THz

L'orientation de l'impulsion THz a été calculée à l'aide de l'équation (3.13b) à partir des composantes E_x et E_y mesurées au point temporel pour laquelle l'amplitude du champ THz est maximum. La figure 3.21 présente les orientations ainsi calculées (points bleus) pour les différentes positions du flux d'He.

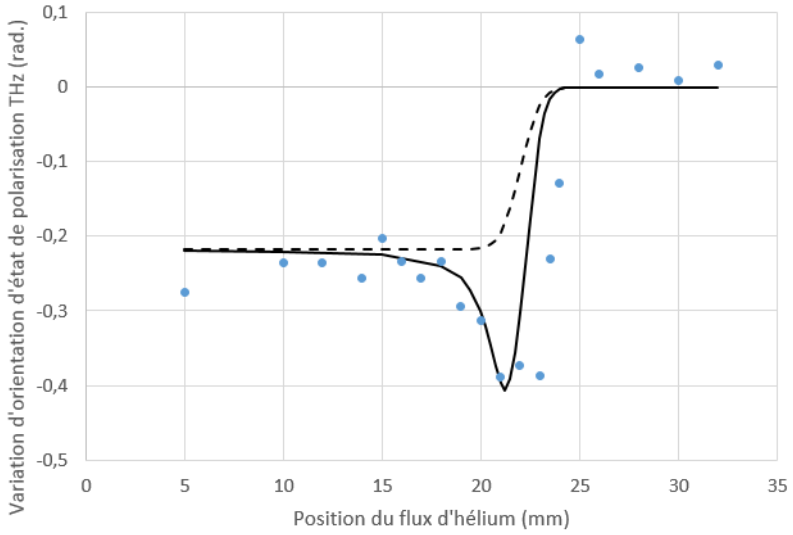


FIGURE 3.21 – La variation de l'orientation du champ THz mesurée entre les mesures avec l'hélium et les mesures de référence, en fonction de la position du flux d'hélium. Les points bleus sont les points de mesures, la courbe en pointillés représente la modélisation linéaire et la courbe en trait plein est issue du modèle non linéaire.

Sur la figure 3.21, le modèle (trait plein) est en accord avec les mesures, et ce indépendamment de la région considérée. Ceci n'est plus vrai si l'on néglige la réponse non linéaire des gaz en fixant $\Delta D_2 = 0$. En effet, si cette approximation impacte peu le module du champ, il en est tout autrement pour l'orientation du champ rayonné. Ce constat est d'autant plus vrai que l'on approche le flux d'He du filament optique (région 2). Logiquement, l'intensité optique crête est la plus forte dans cette région et les effets non linéaires ne peuvent décemment pas être omis dans cette région.

Comme attendu, l'orientation de l'impulsion THz est beaucoup plus sensible à la réponse non linéaire des gaz qu'au module. En effet, le module est, lui, sensible à la composition des gaz au travers de S_{eff} et E_i. Ainsi, l'ajustement du modèle aux mesures a permis d'extraire avec beaucoup plus de précision la différence d'indice non linéaire entre l'air et l'He :

$$\Delta D_2 = -6.10^{-18}\ \mathrm{cm}^2/\mathrm{W}.$$

Cette valeur est logiquement négative car l'hélium est moins dispersif que l'air. En effet, la valeur du coefficient non linéaire d'ordre 2 de l'indice de réfraction de l'hélium est D_2^{He} = 0,048 $.10^{-19}$ cm^2/W [140] et celui de l'air $D_2^{air} = 5,7 \pm 2,5\ .10^{-19}$ cm^2/W [141]. La différence de dispersion non linéaire attendue est donc de l'ordre de -5.10^{-19} cm^2/W, soit un ordre de grandeur plus petit que celui extrait de notre modèle.

La surestimation de ΔD_2 est probablement due aux approximations du modèle. En premier lieu, le modèle ne prend pas en considération le phénomène d'autofocalisation. Ce phénomène non linéaire induit par l'effet Kerr engendre une focalisation plus forte du faisceau pompe, dont le waist au niveau du filament est logiquement plus petit dans la réalité que celui calculé à l'aide de la transformée de Kogelnik (cf. page 76). Ainsi notre modèle sous-estime l'intensité optique dans la région 2, dont l'effet est compensé dans l'équation (3.58) par la surestimation de la dispersion non linéaire ΔD_2. D'autre part, notons que les références [140] et [141] donnent les valeurs de l'indice non linéaire d'ordre 2 des gaz moléculaires d'He et d'air. Dans notre cas, les indices à considérer sont ceux des gaz partiellement ionisés dont les fréquences plasma sont de l'ordre de 10 THz (densité de porteurs $\approx 10^{18}$cm^{-3}) : le coefficient de dispersion non linéaire ΔD_2 intègre la dispersion du plasma qui s'en voit surestimé.

D'autre part, on constate que le modèle ne prédit pas parfaitement les rotations de polarisation induites par un flux d'He situé en fin de région 2 (22 mm $\leq z \leq$ 25 mm). Ceci s'explique par le fait

que nous avons considéré une distribution linéique de sources THz de forme gaussienne (cf. relation (3.17)). Cette forme simple nous a permis d'exploiter les mesures de z-scan (cf. paragraphe 3.4.1) mais ne reflète pas parfaitement la distribution par filamentation régie par des phénomènes connus mais beaucoup plus compliqués. L'ajustement du modèle dans cette région permettrait toutefois de déduire la forme de la distribution linéique.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé un modèle physique permettant d'expliquer les modulations d'état de polarisation (module et orientation) de l'impulsion THz générée par mélange à quatre ondes dans un filament optique, induites par la présence d'un gaz d'hélium. Ce modèle a pu être validé expérimentalement à l'aide d'une étude polarimétrique de l'impulsion THz utilisant une détection EO innovante. Nous avons pu extraire la variation de dispersion chromatique induite par le remplacement d'une tranche d'air par de l'hélium. De même, en prenant en compte la réponse non linéaire de l'air et de l'hélium, nous avons pu extraire la différence d'indice non linéaire d'ordre 2 entre ces deux gaz. La valeur extraite est d'un ordre de grandeur plus élevée que celle trouvée dans la littérature, probablement à cause des approximations du modèle qui ne prend pas en compte le phénomène d'autofocalisation, ni les caractéristiques optiques des plasmas photogénérés. Un tel modèle, jumelé avec un système de détection EO sensible en polarisation, ouvre les portes d'un nouveau type de spectroscopie non linéaire des gaz. En modifiant la longueur d'onde de l'impulsion optique de pompe, il est envisageable de remonter à la courbe de dispersion linéaire et non linéaire d'un gaz.

4

Génération d'un rayonnement térahertz sur de l'or

Le terme plasma peut être étendu aux milieux dans lesquels il existe des charges libres telles que les métaux [142]. La génération d'un rayonnement térahertz à la surface d'un métal utilise le rayonnement laser pour accélérer les électrons libres présents dans le métal, comme dans le cas de la génération plasma avec les électrons libres produits par le plasma.

Sommaire

4.1 Effets non linéaires à la surface du métal 85
4.2 Modélisation de la génération d'un rayonnement THz à la surface de métaux 85
4.3 Etat de l'art de la génération THz à la surface de métaux : redressement optique 89
4.4 Démonstration de la génération THz à la surface d'or par non linéarité d'ordre 3 91
4.4.1 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 2 93
4.4.2 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 3 94
4.4.3 Expérience réalisée avec la détection EO sensible en polarisation 99
4.5 Conclusion 100

4.1 Effets non linéaires à la surface du métal

Les premiers effets d'optique non linéaires observés à la surface des métaux datent des années 60. En 1965, Brown *et al.* [143] ont publié la première observation de la génération de second harmonique à la surface d'un échantillon d'argent excité par un laser impulsionnel. Puis d'autres publications ont rapporté la génération de second harmonique avec d'autres métaux : Au, Cu, Al, alliage Ag-Au, Si et Ge excités par des lasers impulsionnels Q-switch à base de rubis ou de verre dopé néodyme [144].

La non linéarité dans les métaux provient principalement du comportement des électrons libres qui se comportent comme ceux des plasmas. Puisque les métaux amorphes sont des milieux centro-symétriques, ils ne devraient pas générer de faisceau optique par processus non linéaire du second ordre. Or, des processus d'ordre 2 ont été observés comme la génération de second harmonique [143, 144], la génération de fréquences issue de la somme et différence de fréquences [145, 146], le redressement optique [57, 147] ou l'effet Pockels [148].

Ces effets sont expliqués par des termes de surface [144]. En effet, la surface constitue une brisure de symétrie : par exemple la densité de charge est nulle en-dehors du métal et très importante à l'intérieur. Dans la zone de transition à la surface, on ne peut plus parler de milieu centro-symétrique : les effets non linéaires d'ordre 2 peuvent donc être présents.

On observe également des effets non linéaires d'ordre 3 tels que la génération du troisième harmonique [149, 150], l'effet optique Kerr [151], l'effet magnéto-optique Kerr dans les métaux magnétiques [152], et la génération THz en transmission à travers le métal [153].

On démontrera dans la suite la génération d'un rayonnement THz par un phénomène non linéaire d'ordre 3 du métal en réflexion.

4.2 Modélisation de la génération d'un rayonnement THz à la surface de métaux

La génération d'un signal THz implique la longueur d'onde de pompe du laser, de 800 nm, et celle du rayonnement THz, de l'ordre de 300 μm. Ces deux longueurs d'ondes se situent bien en dessous de la fréquence plasma, ainsi le métal a un comportement métallique pour les deux longueurs d'onde. Le signal THz est généré par le déplacement des électrons sous l'action du champ laser. Ce courant d'électrons génère une polarisation.

En effet, d'un point de vue classique, la réponse de la matière à une excitation électromagnétique se fait par l'intermédiaire du déplacement de charge électrique élémentaire (noyau des atomes, nuage électronique des atomes, électrons libres, atomes ionisés, etc.), principalement sous l'effet de l'interaction électrostatique (force de Coulomb). Les déplacements opposés des charges de signes différents créent un dipôle électrique. Avec des charges libres, par exemple dans un métal où un gaz électronique diffus baigne dans une structure formée d'atomes ionisés immobiles, le dipôle se forme par le déplacement des électrons par rapport aux ions immobiles. La densité volumique de ces dipôles définit la polarisation de la matière. Puisque l'onde électromagnétique excitatrice est périodique dans le temps, le déplacement des charges est aussi périodique. A faible intensité d'excitation, le mouvement des charges varie temporellement comme le champ excitateur, et donc la

polarisation induite est proportionnelle au champ excitateur. A haute intensité, le déplacement des électrons devient important et est gêné par les électrons voisins. Ainsi dans un cristal diélectrique, la déformation des nuages électroniques est bloquée par celle des autres nuages électroniques voisins. Dans un métal, c'est à la fois le mouvement des électrons libres dans un environnement où les autres charges se déplacent aussi et l'influence de la force de Laplace, qui conduisent à une saturation du déplacement, et donc à une non linéarité.

Ainsi, les métaux, les plasmas et généralement les conducteurs se distinguent par une mise en mouvement des électrons libres sous l'effet d'une excitation électromagnétique. On parle de gaz d'électrons libres. Les noyaux sont quasiment immobiles car trop massifs.

Pour modéliser le mouvement du gaz d'électrons des métaux, le modèle classique de Drude est assez performant. Ce modèle régit les mêmes équations que le modèle de Lorentz (électron attaché à son atome par un ressort) qui est le modèle pour un matériau diélectrique, sans la force de rappel (les électrons ne sont pas liés), mais avec une force de frottement due aux chocs aléatoires des électrons libres contre les impuretés (à basse température) et les phonons (à température ambiante).

Le modèle de Drude met en évidence la fréquence plasma des métaux. Ainsi, quand la longueur d'onde diminue vers l'UV, la fréquence optique augmente et les électrons libres n'arrivent plus à suivre le mouvement imposé. Leur déplacement devient de plus en plus faible, et donc la polarisation du métal diminue. L'indice de réfraction diminue aussi, ce qui veut dire que la célérité de l'onde optique dans le métal est de plus en plus grande. Au voisinage et en dessous de la fréquence plasma, la réponse des électrons libres est négligeable et les propriétés du métal sont dictées par les électrons liés : le métal dans l'UV se comporte donc comme un diélectrique. Les fréquences plasma de plusieurs métaux sont données dans le tableau de la figure 4.1. Une description plus rigoureuse, basée sur la mécanique quantique, fait intervenir les bandes d'énergie du métal, du moins celles qui peuvent accueillir des électrons libres.

Métal	Al	Co	Cu	Au	Fe	Pb	Mo	Ni	Pd	Pt
$10^{-4}\ \omega_p$ (cm^{-1})	11,9	3,20	5,96	7,28	3,30	5,94	6,02	3,94	4,40	4,15
Métal	Ag	Ti	V	W						
$10^{-4}\ \omega_p$ (cm^{-1})	7,27	2,03	4,16	5,17						

TABLEAU 4.1 – Fréquence plasma ω_p de plusieurs métaux dont l'or (Au) qui est utilisé dans les expériences [154].

Lorsque le faisceau laser est puissant, le champ optique devient intense, ainsi la réponse optique du matériau devient non linéaire. Il faut alors trouver les termes non linéaires dans l'équation de la dynamique écrite par Drude. Au second ordre, il y en a deux :

— le terme dit d'Euler : $(\vec{v}\cdot\vec{\nabla})\cdot\vec{v}$, qui tient compte du fait que l'électron se déplace au milieu d'électrons eux-mêmes en mouvement

— la force de Laplace : $q\vec{v}\times\vec{B}$, $\vec{B}$ étant le champ magnétique de l'onde optique, qui oscille à la fréquence optique.

A cette réponse non linéaire du gaz d'électrons libres, peut se rajouter la réponse non linéaire des électrons liés qui est le plus souvent négligeable. Bloembergen montre que la polarisation non linéaire limitée au second ordre, dans le cas de la génération du second harmonique, a pour forme [144] :

$$\vec{P}^{NL}(2\omega) = \beta(\vec{E}(\omega)\vec{\nabla})\vec{E}(\omega) + \gamma\vec{\nabla}(\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)). \tag{4.1}$$

Le deuxième terme de cette polarisation non linéaire est souvent appelé pondéromoteur, car toute charge qui subit l'action d'un champ électrique variant fortement dans l'espace subit une force

non linéaire appelée pondéromotrice et de forme $\vec{F}_{pond} = -\frac{e^2}{4m\omega^2}\vec{\nabla}(\vec{E}(\omega)\cdot\vec{E}(\omega))$. C'est aussi une des forces qui permettent la génération THz dans les plasmas.

Pour générer dans un matériau, il faut déterminer comment cette polarisation donnée plus haut peut conduire à un champ qui se propage et puis rayonne. Pour tout type de matériau, l'équation de propagation non linéaire s'écrit :

$$\Delta\vec{E} + k^2\vec{E} = -\mu_0\omega^2\vec{P}^{NL} \tag{4.2}$$

Il s'agit d'une équation différentielle avec un terme source (partie de droite de l'égalité), dont la solution est la somme de celle générale sans ce second terme et d'une solution particulière avec second terme.

Dans un cas simple avec un matériau diélectrique, et en s'intéressant à la génération THz du type redressement optique, $(\omega+\Omega)-\omega=\Omega$, l'équation précédente de propagation non linéaire à 1 dimension devient :

$$\frac{\partial^2\vec{E}_\Omega}{\partial x^2} + k_\Omega^2\vec{E}_\Omega = -\mu_0\Omega^2\vec{P}^{NL} = -\mu_0\Omega^2\overleftrightarrow{\chi}^{(2)} : \vec{E}_{\omega+\Omega}\cdot\vec{E}^*_\omega \tag{4.3}$$

La solution sans second terme est de la forme :

$$\vec{E}_{\Omega,sst}(x,t) = \vec{A}e^{-j(\Omega t - k_\Omega x)} \tag{4.4}$$

Et la solution avec second terme :

$$\vec{E}_{\Omega,ast}(x,t) = \frac{-\mu_0\Omega^2\overleftrightarrow{\chi}^{(2)} : \vec{E}_{\omega+\Omega}\cdot\vec{E}^*_\omega e^{-j\Omega t}e^{j(k_{\Omega+\omega}-k_\omega)x}}{k_\Omega^2 - (k_{\Omega+\omega}-k_\omega)^2} \tag{4.5}$$

La somme des deux solutions conduit au phénomène d'accord de phase.

Dans le cas d'un métal, qui est généralement amorphe, car obtenu par des procédés d'évaporation, de pulvérisation ou à partir de liquide fondu, les phénomènes d'ordre pair sont interdits. De plus, le métal est opaque de la fréquence du visible aux fréquences des micro-ondes, donc le faisceau laser ne se propage pas dans le métal. Or, l'expression (4.1) donnée plus haut pour la polarisation non linéaire n'est non nulle qu'en surface du métal (pour quelques dizaines de nm). Le premier terme donne la contribution dans la zone où la densité du gaz d'électrons libres varie de sa valeur volumique à zéro en dehors du métal. Cela se produit dans une épaisseur de $0,2$ à $0,5$ nm, appelée épaisseur d'écrantage de Thomas-Fermi, et calculée pour les métaux par Lang et Kohn [155]. Le calcul de l'expression du champ généré est assez difficile. Néanmoins, on peut déjà estimer les polarisations (TE, TM) générées :

$$\vec{P}^{NL}(2\omega) = \beta(\vec{E}(\omega)\vec{\nabla})\vec{E}(\omega) + \gamma\vec{\nabla}(\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)) \tag{4.6}$$

En prenant pour repère z comme la normale à la surface et xOy le plan d'incidence, on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial y} = 0 \Rightarrow \begin{cases} P_i^{NL} = \beta\left(E_x\frac{\partial}{\partial x} + E_z\frac{\partial}{\partial z}\right)E_i + \gamma\frac{\partial E^2}{\partial i} \quad i = x,z \\ P_y^{NL} = \beta\left(E_x\frac{\partial}{\partial x} + E_z\frac{\partial}{\partial z}\right)E_y \end{cases} \tag{4.7}$$

En détaillant les polarisations :

$$\begin{aligned} TE : E_x = E_z = 0 \; et \; E_y = E \rightarrow & \begin{cases} P_i^{NL} = \gamma\frac{\partial E^2}{\partial i} \\ P_y^{NL} = 0 \end{cases} \\ TM : E_x, E_z \neq 0 \; et \; E_y = 0 \rightarrow & \begin{cases} P_i^{NL} = \beta\left(E_x\frac{\partial}{\partial x} + E_z\frac{\partial}{\partial z}\right)E_i + \gamma\frac{\partial\left(E_x^2+E_z^2\right)}{\partial i} \\ P_y^{NL} = 0 \end{cases} \end{aligned} \tag{4.8}$$

Dans les expressions (4.8), les termes en $\frac{\partial E^2}{\partial i}$ décrivent la contribution à la génération THz de la décroissance du champ laser dans le métal. A la longueur d'onde 800 nm pour l'argent, $n + j\kappa \approx 0,3 + j9$ et la profondeur de pénétration du champ laser est de l'ordre de 10 nm. Les termes en $\frac{\partial}{\partial z}$ sont très intenses dans la région d'écrantage de Thomas-Fermi ($\approx 0,5\ mm$). On appelle termes de "surface" ces contributions en $\frac{\partial}{\partial z}$, tandis que les autres contributions sont nommées "volumiques", même si elles ne mettent en jeu que les quelques nm à la surface du métal.

Pour éviter les difficultés théoriques liées aux termes distributifs de surface, T. Heinz a introduit une polarisation non linéaire de surface [156]. Ce modèle phénoménologique rend compte de tous les effets de surface et de leurs symétries, sans chercher à en connaître l'origine physique détaillée. On écrira simplement :

$$\vec{P}^{NL} = \vec{P}_S^{NL} + \vec{P}_B^{NL} = \overleftrightarrow{X}_S^{NL} \ : \ \vec{E} \cdot \vec{E} + \gamma \vec{\nabla} \left(\vec{E}^2 \right) \tag{4.9}$$

En raison de la discontinuité de la surface, les dérivées $\partial / \partial z$ font apparaître des termes distributifs. Il faut alors employer la théorie des distributions pour résoudre le problème [157].

Il existe également d'autres types de courant qui mènent à la génération d'un rayonnement THz à la surface d'un métal :

— Lorsque les électrons sont excités par le laser, ils acquièrent beaucoup d'énergie cinétique et donc leur température augmente [158]. Comme le métal est excité uniquement sur une zone de taille limitée, la température est élevée au moment et à l'endroit où l'impulsion laser éclaire le métal. Les électrons ont tendance à migrer depuis les zones chaudes vers les zones froides. Il y existe donc un courant parallèle à la surface qui participe à la génération THz comme le montre la figure 4.1.

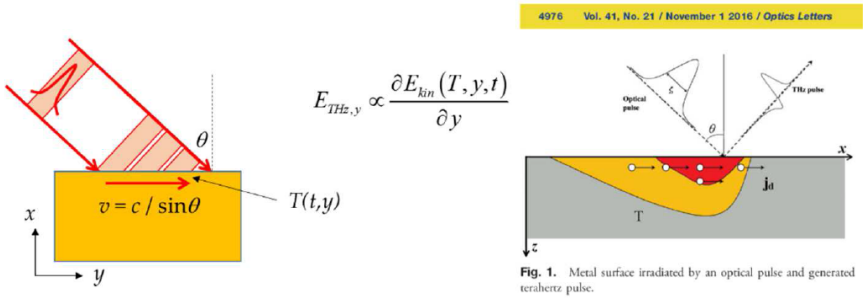


FIGURE 4.1 – Illustration du courant créé par l'éclairement du laser sur la surface métallique permettant la génération d'un rayonnement THz [159].

— L'effet *photon drag* [159, 160] : transfert de quantité de mouvement du photon à l'électron, comme lors d'un choc élastique entre particules [161]. Si les photons arrivent sous incidence oblique, ils peuvent ainsi accélérer les électrons parallèlement à la surface.

Mais, il reste difficile de savoir quelle est la source exacte du rayonnement THz. Bezhanov et Uryupin [159] ont essayé de faire correspondre leurs calculs avec les résultats expérimentaux qui ont été obtenus à la surface de l'or en 2004 par redressement optique [147]. Sur la figure 4.2, les courbes de gauche montrent la contribution de tous les effets cités plus haut, qui peuvent expliquer la génération THz à la surface du métal. La courbe noire est le total de ces effets. Cette courbe est

remise sur le graphique de droite avec les points de mesure. On peut voir que la courbe du total des effets de génération THz ne rend pas bien compte des points de mesure. Il manque un ordre de grandeur pour la dépendance en fonction du temps en convoluant la courbe noire avec la courbe en tirets bleus représentant la même réponse impulsionnelle de la détection EO.

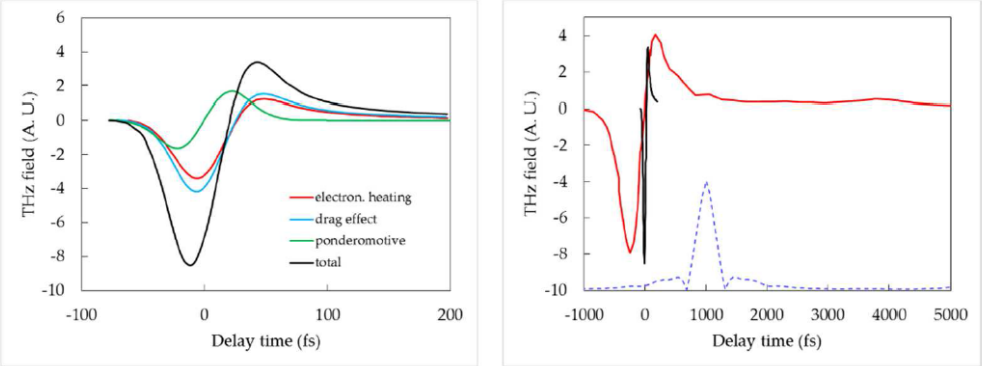


FIGURE 4.2 – Le graphique de gauche montre les différents processus expliqués théoriquement de génération THz à la surface du métal ainsi que le total en noir. Le graphique de droite reprend la courbe noire du graphique de gauche du total des effets de génération THz à la surface du métal et une courbe de mesure en rouge tirée des travaux de redresssement optique à la surface de l'or de 2004 [57]. Cette courbe noire théorique doit encore être convoluée par la réponse temporelle de la détection EO (en tirets bleus). Il manque toutefois encore un ordre de grandeur pour faire coïncider les deux courbes [159].

Lorsqu'on s'intéresse à l'excitation du métal par les deux fréquences ω et 2ω, c'est encore plus compliqué car il s'agit d'un phénomène non linéaire d'ordre 3, et la fréquence 2ω est proche de la fréquence plasma, pour laquelle le métal se comporte comme un diélectrique. Le paragraphe 4.4 proposera une démonstration expérimentale de la génération THz à la surface du métal par un processus non linéaire d'ordre 3.

4.3 Etat de l'art de la génération THz à la surface de métaux : redressement optique

La génération du second harmonique (SHG) à la surface d'un métal, tout comme le redressement optique, est un effet faisant intervenir le tenseur non linéaire de susceptibilité d'ordre 2. Il a été rapporté dès 1965 [143], bien avant le redressement optique [57]. D'un point de vue corpusculaire le processus de SHG est l'addition de la fréquence de deux photons incidents alors que le redressement optique est une différence de fréquence entre deux photons incidents. Le processus de SHG est expliqué par une brisure de symétrie à la surface du métal et par la décroissance du champ électrique du faisceau pompe dans le milieu [144]. Ces deux processus sont des effets de surface et sont donc très sensibles aux changements qui ont lieu en surface comme un changement de la configuration de la surface, par contamination chimique par exemple. Ces effets non linéaires dans les métaux sont donc l'addition d'un terme non linéaire volumique et d'un terme non linéaire de surface [162] comme expliqué plus haut. Le rendement de la génération du second harmonique peut être une source d'information sur la structure électronique à la surface et à l'interface métal/air [163].

En 2004, Kadlec *et al.* [57] ont rapporté l'observation du redressement optique à la surface d'un

métal. Cette étude a porté sur deux échantillons de métaux différents. Le premier échantillon est une couche mince d'or de l'ordre d'une centaine de nanomètres d'épaisseur déposée à l'aide d'une technique de pulvérisation cathodique (plasma sputtering) sur un substrat de verre et le deuxième échantillon est de l'argent massif. Les échantillons de métal sont excités par un faisceau laser qui est issu soit directement du laser incident (λ = 810 nm, Δt = 50 fs, fréquence de répétition = 1 kHz, E = 1 mJ) soit d'un cristal de LiB_3O_5 permettant par SHG d'obtenir une longueur d'onde de 405 nm. Le faisceau pompe est ensuite légèrement focalisé sur l'échantillon pour que la taille du faisceau sur l'échantillon fasse 4 mm de diamètre. L'angle d'incidence du faisceau est de 45°. Le rayonnement THz est détecté à l'aide d'une détection EO avec un cristal ZnTe <110> et d'épaisseur 1 mm. Même si la détection est sensible à la polarisation du champ électrique THz généré, un polariseur THz est rajouté pour détecter uniquement le champ THz selon la composante de polarisation TM. Le rayonnement THz généré étant majoritairement polarisé TM pour n'importe quelle polarisation de l'onde optique de pompe. La composante de polarisation TE est de 3 ordres de grandeur plus faible.

Comme dans le cas du processus de SHG, la non linéarité du processus de redressement optique à la surface du métal est reliée à trois composantes du tenseur susceptibilité non linéaire de surface d'ordre 2. En comparant avec les expressions (4.8), on peut écrire, $\chi^s_{xzx} >> \chi^s_{zxz}; \chi^s_{xzz}$. On peut conclure que les effets électroniques se font de manière normale à la surface.

Le signal THz le plus intense est mesuré sur un échantillon d'or pompé avec un faisceau à 810 nm polarisé TM. Le signal THz rayonné est plus faible sur l'échantillon d'argent que sur celui d'or, environ 15 fois pour la plus forte fluence de pompe comme le montre la figure 4.3.

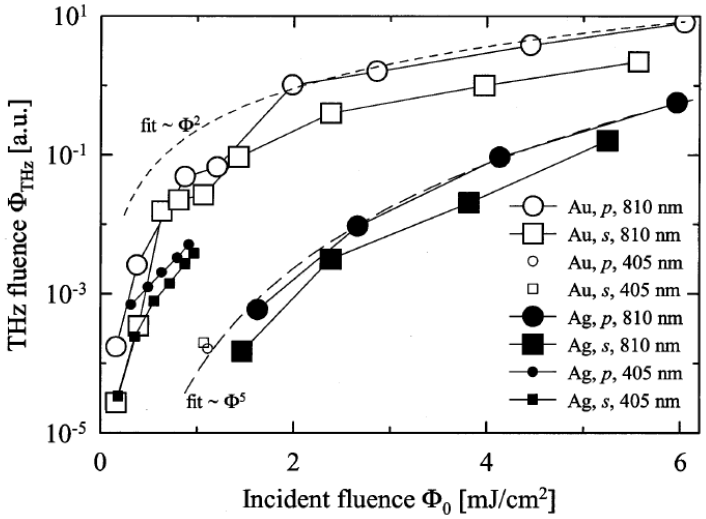


FIGURE 4.3 – Fluence du champ électrique THz en fonction de la fluence du champ électrique optique de pompe sur l'échantillon d'or et d'argent selon différentes polarisations et longueurs d'onde de pompe [57].

4.4 Démonstration de la génération THz à la surface d'or par non linéarité d'ordre 3

Pour étudier la génération THz à la surface d'un métal, on réalise le schéma de la figure 4.4. L'expérience est basée sur un schéma classique de spectromètre THz dans le domaine temporel. Deux configurations sont possibles :

— avec le cristal de $\beta - BBO$, il est possible d'analyser la génération THz par effet non linéaire d'ordre 3 $(\omega + \Omega) + \omega - 2\omega = \Omega$ (effet Kerr)

— sans le cristal de $\beta - BBO$, il est possible d'observer la génération THz par effet non linéaire d'ordre 2 $(\omega + \Omega) - \omega = \Omega$ (redressement optique)

L'échantillon de métal utilisé est une fine couche d'or de 200 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de verre par pulvérisation. L'expérience repose sur le même laser amplifié Ti :Sapphire que pour les expériences de claquage dans l'air. Il délivre des impulsions ultra courtes d'environ 45 fs centrées autour de 800 nm. Le taux de répétition est de 1 kHz. La puissance optique est ajustable de manière continue jusqu'à 3,5 W. Le second harmonique est produit à l'aide d'un cristal de $\beta - BBO$. Les faisceaux laser (ω ou 2ω) sont colinéaires et focalisés sur la surface métallique (la surface éclairée a un diamètre d'environ 4 mm, l'angle d'incidence est de 45°). La polarisation du faisceau à la fréquence ω est orientée TM et celle du faisceau à la fréquence 2ω est orientée TE sur l'échantillon métallique.

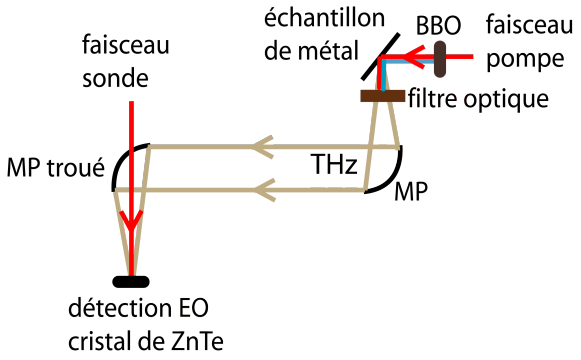


FIGURE 4.4 – Schéma de la génération THz à la surface des métaux (sans cristal de $\beta - BBO$ pour la génération par redressement optique, avec le cristal de $\beta - BBO$ pour la génération THz par effet non linéaire d'ordre 3)

La figure 4.5 montre l'amplitude maximale du signal temporel THz détecté en fonction de la fluence sur l'échantillon d'or. Les cercles bleus correspondent aux mesures avec excitation de la surface métallique par ω et 2ω. Les cercles rouges correspondent aux mesures réalisées par redressement optique qui varient linéairement avec la fluence laser comme attendu. Cette expérience a été réalisée sans le cristal de $\beta - BBO$ pour s'assurer que seul le redressement optique à la fréquence fondamentale génère un rayonnement THz.

Dans le cas de la génération d'ondes THz par effet Kerr, on pompe le métal avec un faisceau laser composé des deux fréquences ω et 2ω. Le processus de génération du second harmonique est donné par l'équation suivante qui fait intervenir le tenseur non linéaire de susceptibilité d'ordre 2, $\chi^{(2)}_{BBO}$, du $\beta - BBO$:

$$E_{2\omega} \propto \chi^{(2)}_{BBO} E_\omega E_\omega \propto \chi^{(2)}_{BBO} P_\omega, \tag{4.10}$$

où P_ω est la puissance optique de laser incidente. Le signal THz observé a plusieurs origines :

— l'effet Kerr dans le métal :
$E_{THz_Kerr} \propto \chi^{(3)}_{metal} E_\omega E_\omega E^*_{2\omega}$

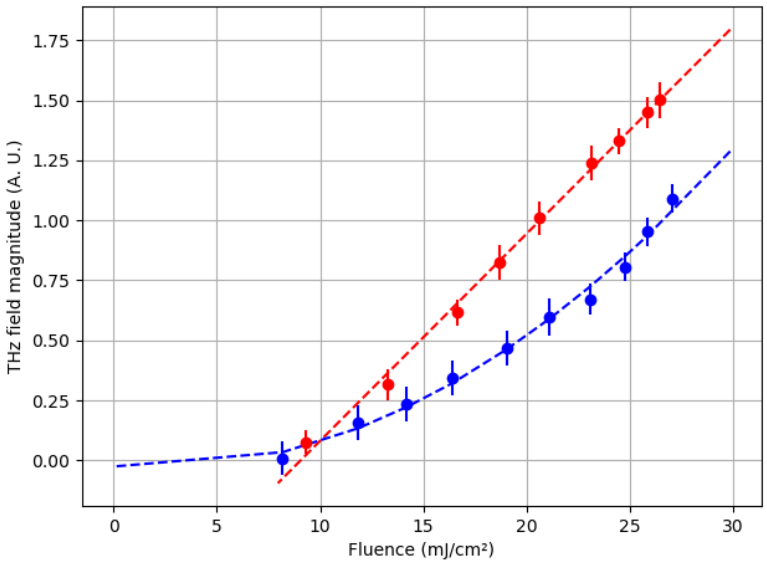


FIGURE 4.5 – Amplitude maximale du signal THz en fonction de la fluence du faisceau laser sur l'échantillon (faisceau composé de ω polarisé TM et 2ω polarisé TE). Cercles rouges : signal THz obtenu par redressement optique ; cercles bleus : signal THz obtenu par effet Kerr et redressement optique. Les courbes sont des courbes de tendances linéaire (en rouge) et parabolique (en bleu).

— le redressement optique de E_ω à la surface du métal et dans le BBO :
$E_{THz_BBO} \propto \chi^{(2)}_{metal} E_\omega E^*_\omega + \chi^{(2)}_{BBO} E_\omega E^*_\omega$

— le redressement optique de $E_{2\omega}$ à la surface du métal :
$E_{THz_OR-2\omega} \propto \chi^{(2)}_{metal} E_{2\omega} E^*_{2\omega}$

Pour résumer, on peut écrire une équation qui inclut tous les phénomènes de génération THz :

$$E_{THz} \propto E_{THz-Kerr} + E_{THz-OR-metal}(\omega) + E_{THz-OR-BBO}(\omega) + E_{THz-OR-metal}(2\omega) \tag{4.11}$$

L'expression de la génération THz par effet Kerr peut être développée avec l'équation (4.10) :

$$E_{THz-Kerr} \propto \chi^{(3)}_{metal} E_{2\omega} P_\omega \propto \chi^{(3)}_{metal} \chi^{(2)}_{BBO} P^2_\omega \tag{4.12}$$

De même, on peut utiliser l'expression (4.10) pour détailler l'équation de redressement optique de $E_{2\omega}$:

$$E_{THz-OR}(2\omega) \propto \chi^{(2)}_{metal} E_{2\omega} E_{2\omega} \propto \chi^{(2)}_{metal} [\chi^{(2)}_{BBO} P_\omega]^2 \propto \chi^{(2)}_{metal} \chi^{(2)^2}_{BBO} P^2_\omega \tag{4.13}$$

Pour l'expression globale (4.11), on parvient à :

$$E_{THz} \propto \chi^{(3)}_{metal} \chi^{(2)}_{BBO} P^2_\omega + \chi^{(2)}_{metal} P_\omega + \chi^{(2)}_{BBO} P_\omega + \chi^{(2)}_{metal} \chi^{(2)^2}_{BBO} P^2_\omega \tag{4.14}$$

Donc la génération d'un rayonnement térahertz avec un faisceau pompe composé de ω et 2ω varie avec la puissance laser incidente P_ω de manière linéaire pour le processus de redressement optique à la pulsation ω dans le métal et dans le BBO, et de manière quadratique pour les processus de génération par effet Kerr et de redressement optique à la pulsation 2ω. Pour dissocier les deux phénomènes conduisant à un comportement quadratique, on modélise les polarisations mises en jeu afin de prédire la polarisation THz résultante de ces phénomènes. De plus, la détection électro-optique sensible en polarisation (détaillée au chapitre 3) nous montrera la polarisation du rayonnement THz rayonnée.

4.4.1 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 2

En adaptant le modèle de Lorentz pour les métaux au cas non linéaire, et en tenant compte de la génération surfacique, Bloembergen *et al.* ont montré que la polarisation non linéaire dans le cas de la SHG prend la forme suivante :

$$\vec{P}^{NL}(2\omega) = \beta(\vec{E}(\omega)\vec{\nabla})\vec{E}(\omega) + \gamma\vec{\nabla}(\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)) \tag{4.15}$$

Plus tard, ce modèle a été repris par Maytorena *et al.* [164] dans le cas de la somme et de la différence de fréquences. Appliqué à la génération THz, le modèle de Bloembergen donne :

$$\vec{P}^{NL}(\Omega) = \frac{\varepsilon_0 e}{m}\frac{\omega_p^2}{\omega\Omega(\omega - j\Gamma)(\omega \pm j\Gamma)(\Omega - j\Gamma)}\begin{bmatrix} -\omega\vec{\nabla}(\vec{E}_\omega\vec{E}^*_\omega) \\ -j\Gamma\left(\vec{E}_\omega \times (\vec{\nabla}\times\vec{E}^*_\omega) - \vec{E}^*_\omega \times (\vec{\nabla}\times\vec{E}_\omega)\right) \\ +(\Omega - j\Gamma)\left((\vec{\nabla}\cdot\vec{E}^*_\omega)\vec{E}_\omega - (\vec{\nabla}\cdot\vec{E}_\omega)\vec{E}^*_\omega\right) \end{bmatrix} \tag{4.16}$$

Posons :

$$\vec{p}^{NL}(\Omega) = \frac{m\omega\Omega(\omega - j\Gamma)(\omega \pm j\Gamma)(\Omega - j\Gamma)}{\omega_p^2\varepsilon_0 e}\vec{P}^{NL}(\Omega) \tag{4.17}$$

Ainsi :

$$\vec{p}^{NL}(\Omega) = \begin{bmatrix} -\omega\vec{\nabla}(\vec{E}_\omega\vec{E}^*_\omega) \\ -j\Gamma\left(\vec{E}_\omega \times (\vec{\nabla}\times\vec{E}^*_\omega) - \vec{E}^*_\omega \times (\vec{\nabla}\times\vec{E}_\omega)\right) \\ +(\Omega - j\Gamma)\left((\vec{\nabla}\cdot\vec{E}^*_\omega)\vec{E}_\omega - (\vec{\nabla}\cdot\vec{E}_\omega)\vec{E}^*_\omega\right) \end{bmatrix} \tag{4.18}$$

En prenant l'axe y comme la normale à la surface et xOz étant le plan d'incidence, donc avec $\frac{\partial}{\partial y} = 0$, on obtient :

$$\begin{aligned}
p_x^{NL}(\Omega) &= \begin{bmatrix} -\omega\frac{\partial}{\partial x}(\vec{E}_\omega\vec{E}^*_\omega) - j\Gamma\left(E_{\omega y}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial x} + E_{\omega z}\left(\frac{\partial E^*_{\omega z}}{\partial x} - \frac{\partial E^*_{\omega x}}{\partial z}\right) - E^*_{\omega y}\frac{\partial E_{\omega y}}{\partial x} - E^*_{\omega z}\left(\frac{\partial E_{\omega z}}{\partial x} - \frac{\partial E_{\omega x}}{\partial z}\right)\right) \\ +(\Omega - j\Gamma)\left((\vec{\nabla}\cdot\vec{E}^*_\omega)E_{\omega x} - (\vec{\nabla}\cdot\vec{E}_\omega)E^*_{\omega x}\right) \end{bmatrix} \\
p_y^{NL}(\Omega) &= \begin{bmatrix} -j\Gamma\left(-\left(E_{\omega z}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial z} + E_{\omega x}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial x}\right) + \left(E^*_{\omega z}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial z} + E^*_{\omega x}\frac{\partial E_{\omega y}}{\partial x}\right)\right) \\ +(\Omega - j\Gamma)\left((\vec{\nabla}\cdot\vec{E}^*_\omega)E_{\omega y} - (\vec{\nabla}\cdot\vec{E}_\omega)E^*_{\omega y}\right) \end{bmatrix} \\
p_z^{NL}(\Omega) &= \begin{bmatrix} -\omega\frac{\partial}{\partial z}(\vec{E}_\omega\vec{E}^*_\omega) - j\Gamma\left(E_{\omega y}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial z} + E_{\omega x}\left(\frac{\partial E^*_{\omega x}}{\partial z} - \frac{\partial E^*_{\omega z}}{\partial x}\right) - E^*_{\omega y}\frac{\partial E_{\omega y}}{\partial z} - E^*_{\omega x}\left(\frac{\partial E_{\omega x}}{\partial z} - \frac{\partial E_{\omega z}}{\partial x}\right)\right) \\ +(\Omega - j\Gamma)\left((\vec{\nabla}\cdot\vec{E}^*_\omega)E_{\omega z} - (\vec{\nabla}\cdot\vec{E}_\omega)E^*_{\omega z}\right) \end{bmatrix}
\end{aligned} \tag{4.19}$$

Cas où le champ laser est TE ($E_{\omega x} = E_{\omega z} = 0$) :

$$\begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = -\left[(\omega - j\Gamma)E^*_{\omega y}\frac{\partial E_{\omega y}}{\partial x} + (\omega + j\Gamma)E_{\omega y}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial x}\right] \\ p_y^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_z^{NL}(\Omega) = -\left[(\omega - j\Gamma)E^*_{\omega y}\frac{\partial E_{\omega y}}{\partial z} + (\omega + j\Gamma)E_{\omega y}\frac{\partial E^*_{\omega y}}{\partial z}\right] \end{cases} \tag{4.20}$$

Cas où le champ laser est TM ($E_{\omega y} = 0$) :

$$\begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = \begin{bmatrix} (-\omega + j\Gamma)E_{\omega x}^* \frac{\partial E_{\omega x}}{\partial x} + (-\omega + j\Gamma)E_{\omega z}^* \frac{\partial E_{\omega z}}{\partial x} - (\omega + j\Gamma)E_{\omega x} \frac{\partial E_{\omega x}^*}{\partial x} \\ -(\omega + j\Gamma)E_{\omega z} \frac{\partial E_{\omega z}^*}{\partial x} + j\Gamma \left(E_{\omega z} \frac{\partial E_{\omega x}^*}{\partial z} - E_{\omega z}^* \frac{\partial E_{\omega x}}{\partial z} \right) \\ +(\Omega + j\Gamma) \left(E_{\omega x} \frac{\partial E_{\omega z}^*}{\partial z} - E_{\omega x}^* \frac{\partial E_{\omega z}}{\partial z} \right) \end{bmatrix} \\ p_y^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_z^{NL}(\Omega) = \begin{bmatrix} -\omega \frac{\partial}{\partial z}(E_{\omega x}E_{\omega x}^* + E_{\omega z}E_{\omega z}^*) - j\Gamma \left(E_{\omega x} \left(\frac{\partial E_{\omega x}^*}{\partial z} - \frac{\partial E_{\omega z}^*}{\partial x} \right) - E_{\omega x}^* \left(\frac{\partial E_{\omega x}}{\partial z} - \frac{\partial E_{\omega z}}{\partial x} \right) \right) \\ +(\Omega + j\Gamma) \left(\left(\frac{\partial E_{\omega x}^*}{\partial x} + \frac{\partial E_{\omega z}^*}{\partial z} \right) E_{\omega z} - \left(\frac{\partial E_{\omega x}}{\partial x} + \frac{\partial E_{\omega z}}{\partial z} \right) E_{\omega z}^* \right) \end{bmatrix} \end{cases} \tag{4.21}$$

Dans les 2 cas (TE et TM), $p_y^{NL}(\Omega) = 0$. Le signal THz est donc polarisé TM. Qu'en est-il de la polarisation THz issue d'un effet non linéaire d'ordre 3 ?

4.4.2 Modélisation de la polarisation non linéaire rayonnée par effet non linéaire d'ordre 3

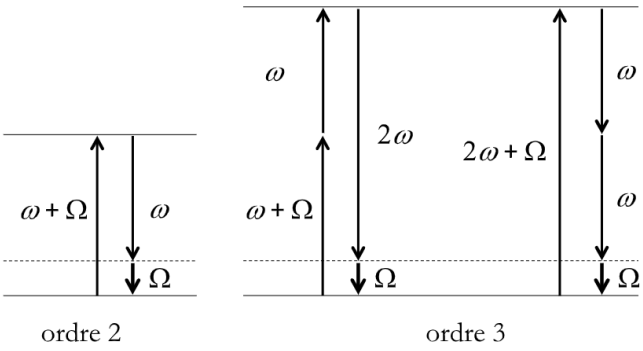


FIGURE 4.6 – Phénomènes d'optique non linéaire d'ordre 2 et 3

Lorsque le métal est excité par le faisceau laser et son second harmonique, la génération THz par mélange des fréquences ω et 2ω est possible uniquement grâce à des phénomènes d'optique non linéaire du troisième ordre (voir figure 4.6) :

$$\begin{aligned} &\textit{second ordre} : \quad (\omega + \Omega) - 2\omega \neq \Omega \\ &\textit{troisième ordre} : \begin{cases} (\omega + \Omega) + \omega - 2\omega = \Omega \\ (2\omega + \Omega) - \omega - \omega = \Omega \end{cases} \end{aligned} \tag{4.22}$$

Il est aussi possible de générer un signal THz par effets du second ordre en cascade :

$$\textit{second ordre en cascade} : \quad (\omega + \Omega) + \omega = 2\omega + \Omega \quad \rightarrow \quad (2\omega + \Omega) - 2\omega = \Omega \tag{4.23}$$

Néanmoins, la génération THz par effet cascade sera proportionnelle au tenseur du second ordre au carré, tandis que celle par troisième ordre sera proportionnelle au tenseur du troisième ordre. Dans le cas des diélectriques, on sait que $\chi^{(2)} \approx 7 \times 10^{-9} cm/V/s$ tandis que $\chi^{(3)} \approx 4 \times 10^{-16} cm^2/V^2/s$ [165]. Donc $\left(\chi^{2)}\right)^2 \approx 5 \times 10^{-17} \approx \frac{\chi^{(3)}}{10}$. Pour les métaux, de mêmes différences d'ordres de grandeur ont été publiées [166]. Dans un premier temps, on pourra donc négliger l'effet cascade. Dans ce cas expérimental, le signal THz observé sera la somme des contributions des phénomènes du second ordre $(\omega + \Omega) - \omega = \Omega$, $(2\omega + \Omega) - 2\omega = \Omega$ et de ceux du troisième ordre $(\omega + \Omega) + \omega - 2\omega = \Omega$, $(2\omega + \Omega) - \omega - \omega = \Omega$. En mesurant les signaux générés avec et en l'absence de faisceau à

2ω, on pourra séparer les 2 contributions.

La polarisation non linéaire d'ordre 3 dans les métaux provient de la réponse à la fois des électrons libres et des électrons liés. Puisque les effets d'ordre 3 sont permis dans les métaux, on peut supposer que la contribution surfacique, décrite plus haut pour les phénomènes d'ordre 2, est négligeable ici devant la contribution volumique [167]. La polarisation non linéaire s'écrit alors simplement :

$$\begin{cases} \vec{P}^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(3)}_{\Omega,\omega+\Omega,\omega,-2\omega} \vec{E}(\omega+\Omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}^*(2\omega) \\ \vec{P}^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(3)}_{\Omega,2\omega+\Omega,-\omega,-\omega} \vec{E}(2\omega+\Omega)\vec{E}^*(\omega)\vec{E}^*(\omega) \end{cases} \tag{4.24}$$

Dans le cas de la génération de troisième harmonique (THG) avec un cristal de symétrie cubique, Burns et Bloembergen [150] ont montré que :

$$P_i^{NL}(3\omega) \propto 3\chi^{(3)}_{xxyy} E_i(\omega)\left(\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxxx} - 3\chi^{(3)}_{xxyy}\right) E_i^3(\omega) \tag{4.25}$$

Pour les matériaux isotropes, cette expression se simplifie :

$$P_i^{NL}(3\omega) \propto 3\chi^{(3)}_{xxyy} E^2(\omega) E_i(\omega) \tag{4.26}$$

La polarisation non linéaire est donc toujours parallèle à celle du faisceau laser. Pour la génération par effet non linéaire du troisième ordre, il faut utiliser les propriétés de symétrie du tenseur du mélange à 4 ondes (*four-waves mixing*), $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ dans les milieux avec inversion de symétrie, décrites par exemple par Birss [168, 169], ce qui réduit le nombre d'éléments non nuls du tenseur à :

$$\chi^{(3)}_{iiii}, \chi^{(3)}_{iijj}, \chi^{(3)}_{ijij}, \chi^{(3)}_{ijji} \tag{4.27}$$

où i et j prennent chacune des valeurs x, y, z. Pour les matériaux isotropes, on a en plus :

$$\chi^{(3)}_{iiii} = \chi^{(3)}_{iijj} + \chi^{(3)}_{ijij} + \chi^{(3)}_{ijji} \tag{4.28}$$

En appliquant ces relations de symétrie, on obtient pour le cas de la non linéarité d'ordre 3, $\Omega = (\omega+\Omega)+\omega-2\omega$:

$$P_i^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{iiii} E_i(\omega+\Omega)E_i(\omega)E_i^*(2\omega) + \varepsilon_0 \sum_{j=x,y,z \text{ et } j\neq i} \begin{bmatrix} +\chi^{(3)}_{iijj} E_i(\omega+\Omega)E_j(\omega)E_j^*(2\omega) \\ +\chi^{(3)}_{ijij} E_j(\omega+\Omega)E_i(\omega)E_j^*(2\omega) \\ +\chi^{(3)}_{ijji} E_j(\omega+\Omega)E_j(\omega)E_i^*(2\omega) \end{bmatrix} \tag{4.29}$$

Excitation sous incidence normale

Si z est la direction de propagation (normale à la surface du métal), on a :

$$E_z(\omega) = E_z(2\omega) = 0 \tag{4.30}$$

Définissons alors la direction x comme celle de la polarisation du champ laser incident à pulsation ω, et posons ψ l'angle de polarisation du faisceau à 2ω par rapport à x (figure 4.7) :

$$\vec{E}(\omega) = \begin{pmatrix} E_x(\omega) \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} E(\omega), \quad \vec{E}(2\omega) = \begin{pmatrix} cos\psi \\ sin\psi \\ 0 \end{pmatrix} E(2\omega) \tag{4.31}$$

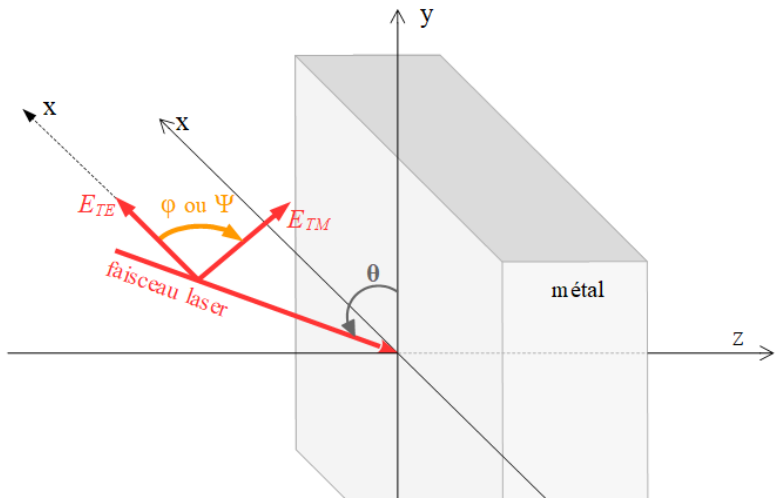


FIGURE 4.7 – Schéma du faisceau laser excitant le métal avec la définition des axes utilisés pour le développement théorique. L'axe z est la direction de propagation (normal à la surface du métal). L'angle θ est l'angle d'incidence (ici $\theta = \pi/2$ quand z est normal à la surface), et les angles φ et ψ sont les angles de polarisation (par rapport à l'axe x) des faisceaux à ω et 2ω

$$\begin{cases} P_x^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{xxxx} E_x(\omega+\Omega) E_x(\omega) E_x^*(2\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{xxxx} cos\psi E^2(\omega) E^*(2\omega) \\ P_y^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{yxxy} E_x(\omega+\Omega) E_x(\omega) E_y^*(2\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{yxxy} sin\psi E^2(\omega) E^*(2\omega) \\ P_z^{NL}(\Omega) = 0 \end{cases} \tag{4.32}$$

$$\Rightarrow P^{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 E^2(\omega) E^*(2\omega) \left({\chi^{(3)}_{xxxx}}^2 cos^2\psi + {\chi^{(3)}_{yxxy}}^2 sin^2\psi \right)^{\frac{1}{2}} \tag{4.33}$$

La polarisation non linéaire décrit donc une ellipse dont les axes, égaux à $\chi^{(3)}_{xxxx}$ et $\chi^{(3)}_{yxxy}$ sont orientés suivant les directions x et y.

Excitation oblique

Appelons θ l'angle d'incidence pour les deux faisceaux et φ et ψ les angles de polarisation (par rapport à l'axe x) des faisceaux à ω et 2ω (figure 4.7) :

$$\vec{E}(\omega) = \begin{pmatrix} cos\varphi \\ sin\varphi\ cos\theta \\ sin\varphi\ sin\theta \end{pmatrix} E(\omega), \quad \vec{E}(2\omega) = \begin{pmatrix} cos\psi \\ sin\psi\ cos\theta \\ sin\psi\ sin\theta \end{pmatrix} E(2\omega) \tag{4.34}$$

Pour simplifier les expressions, introduisons la polarisation non linéaire normalisée :

$$p_i^{NL}(\Omega) \equiv \frac{P_i^{NL}(\Omega)}{\varepsilon_0 E(\omega+\Omega) E(\omega) E^*(2\omega)} \tag{4.35}$$

Les composantes de la polarisation non linéaire normalisée deviennent :

$$\begin{aligned}
p_x^{NL}(\Omega) &= cos\psi\left(\chi^{(3)}_{xxxx}cos^2\varphi + sin^2\varphi\ sin^2\theta\left(\chi^{(3)}_{xyyx}+\chi^{(3)}_{xzzx}\right)\right)\\
&\quad + cos\varphi\ sin\varphi\ sin\psi\begin{pmatrix}\chi^{(3)}_{xxyy}\ cos^2\theta + \chi^{(3)}_{xxzz}\ sin^2\theta\\ +\chi^{(3)}_{xyxy}\ cos^2\theta + \chi^{(3)}_{xzxz}\ sin^2\theta\end{pmatrix}\\
p_y^{NL}(\Omega) &= sin\theta\begin{bmatrix}sin\psi\ sin^2\varphi\left(\chi^{(3)}_{yyyy}\ cos^2\theta + \chi^{(3)}_{yzzy}\ sin^2\theta\right) + cos\psi\ cos\varphi\ sin\varphi\left(\chi^{(3)}_{yyxx}+\chi^{(3)}_{yxyx}\right)\\ +sin\psi\left(\chi^{(3)}_{yxxy}\ cos^2\varphi + sin^2\varphi\ sin^2\theta\left(\chi^{(3)}_{yyzz}+\chi^{(3)}_{yzyz}\right)\right)\end{bmatrix}\\
p_z^{NL}(\Omega) &= sin\psi\ sin^2\varphi\ sin\theta\left(\chi^{(3)}_{zzzz}\ sin^2\theta + \chi^{(3)}_{zyyz}\ cos^2\theta\right)\\
&\quad + cos\psi\ cos\varphi\ sin\varphi\ sin\theta\left(\chi^{(3)}_{zzxx}\ sin^2\theta + \chi^{(3)}_{zxzx}\right)\\
&\quad + sin\psi\ sin\theta\left(\chi^{(3)}_{zxxz}\ cos^2\varphi + sin^2\varphi\ cos^2\theta\left(\chi^{(3)}_{zzyy}+\chi^{(3)}_{zyzy}\right)\right)
\end{aligned} \tag{4.36}$$

En prenant les cas particuliers des polarisations TE et TM, on obtient :

— polarisation non linéaire suivant x :

$$\begin{cases}
\omega - TE \qquad \varphi = 0\\
p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xxxx}\ cos\psi\\
\quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xxxx}\\
\quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_x^{NL}(\Omega) = 0
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\omega - TM \qquad \varphi = \dfrac{\pi}{2}\\
p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xyyx}cos^2\theta\ cos\psi + \chi^{(3)}_{xzzx}sin^2\theta\ cos\psi\\
\quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xyyx}cos^2\theta + \chi^{(3)}_{xzzx}sin^2\theta\\
\quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_x^{NL}(\Omega) = 0
\end{cases} \tag{4.37}$$

— polarisation non linéaire suivant y :

$$\begin{cases}
\omega - TE \qquad \varphi = 0\\
p_y^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{yxxy}\ sin\psi\ cos\theta\\
\quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_y^{NL}(\Omega) = 0\\
\quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_y^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{yxxy}\ cos\theta
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\omega - TM \qquad \varphi = \dfrac{\pi}{2}\\
p_y^{NL}(\Omega) = cos\theta\ sin\psi\ \chi^{(3)}_{yyyy}\\
\quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_y^{NL}(\Omega) = 0\\
\quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_y^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{yyyy}cos\theta
\end{cases} \tag{4.38}$$

— polarisation non linéaire suivant z :

$$\begin{cases} \omega - TE \qquad \varphi = 0 \\ p_z^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zxxz}\, sin\psi\, sin\theta \\ \quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_z^{NL}(\Omega) = 0 \\ \quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_z^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zxxz}\, sin\theta \end{cases}$$
$$\begin{cases} \omega - TM \qquad \varphi = \dfrac{\pi}{2} \\ p_z^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zzzz}\, sin\theta\, sin\psi \\ \quad 2\omega - TE \qquad \psi = 0 \qquad p_z^{NL}(\Omega) = 0 \\ \quad 2\omega - TM \qquad \psi = \dfrac{\pi}{2} \qquad p_z^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zzzz} sin\theta \end{cases} \tag{4.39}$$

En résumé :

$$\begin{cases} \omega\, TE \begin{cases} 2\omega\, TE \begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xxxx} \\ p_y^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_z^{NL}(\Omega) = 0 \end{cases} \\ 2\omega\, TM \begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{yxxy} cos(\theta) \\ p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zxxz} sin(\theta) \end{cases} \end{cases} \\ \omega\, TM \begin{cases} 2\omega\, TE \begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{xyyx} cos^2(\theta) + \chi^{(3)}_{xzzx} sin^2(\theta) \\ p_y^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_z^{NL}(\Omega) = 0 \end{cases} \\ 2\omega\, TM \begin{cases} p_x^{NL}(\Omega) = 0 \\ p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{yyyy} cos(\theta) \\ p_x^{NL}(\Omega) = \chi^{(3)}_{zzzz} sin(\theta) \end{cases} \end{cases} \end{cases} \tag{4.40}$$

On synthétise dans un tableau les résultats précédents :

	ω TE	ω TM
2ω TE	THz TE $P_x^{NL}(\Omega) \propto \chi^{(3)}_{xxxx}$	THz TE $P_x^{NL}(\Omega) \propto \chi^{(3)}_{xyyx} cos^2(\theta) + \chi^{(3)}_{xzzx} sin^2(\theta)$
2ω TM	THz TM $\begin{cases} P_y^{NL} \propto \chi^{(3)}_{yxxy}\, cos(\theta) \\ P_z^{NL} \propto \chi^{(3)}_{zxxz}\, sin(\theta) \end{cases}$	THz TM $\begin{cases} P_y^{NL} \propto \chi^{(3)}_{yyyy}\, cos(\theta) \\ P_z^{NL} \propto \chi^{(3)}_{zzzz}\, sin(\theta) \end{cases}$

TABLEAU 4.2 – Résumé de l'état de polarisation d'un rayonnement térahertz selon la polarisation du mélange des faisceaux optiques ω et 2ω

Dans les matériaux isotropes (amorphes), les $\chi^{(3)}_{ijkl}$ restent identiques quand on permute les indices x, y, z. On obtient :

$$\begin{cases} \chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{yyyy} = \chi^{(3)}_{zzzz} \equiv \chi^{(3)}_{1111} \\ \chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{xzzx} = \chi^{(3)}_{yxxy} = \chi^{(3)}_{yzzy} = \chi^{(3)}_{zxxz} = \chi^{(3)}_{zyyz} \equiv \chi^{(3)}_{1221} \end{cases} \tag{4.41}$$

Le tableau 4.2 devient alors :

	ω TE	ω TM
2ω TE	THz TE $P_x^{NL}(\Omega) \propto \chi_{1111}^{(3)}$	THz TE $P_x^{NL}(\Omega) \propto \chi_{1221}^{(3)}$
2ω TM	THz TM $\begin{cases} P_y^{NL} \propto \chi_{1221}^{(3)}\, cos(\theta) \\ P_z^{NL} \propto \chi_{1221}^{(3)}\, sin(\theta) \end{cases}$	THz TM $\begin{cases} P_y^{NL} \propto \chi_{1111}^{(3)}\, cos(\theta) \\ P_z^{NL} \propto \chi_{1111}^{(3)}\, sin(\theta) \end{cases}$

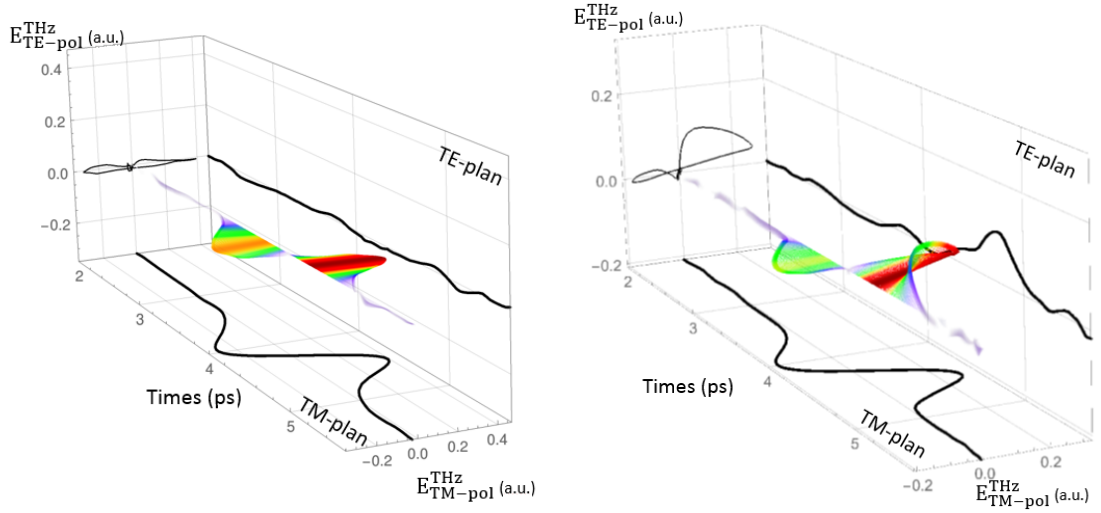
TABLEAU 4.3 – Résumé de l'état de polarisation d'un rayonnement térahertz selon la polarisation du mélange des faisceaux optiques ω et 2ω pour les matériaux isotropes (amorphes)

On remarque que la polarisation THz est la même que celle du 2ω, quelle que soit la polarisation de ω.

En conclusion, dans le cas des effets non linéaires d'ordre 2 : $(\omega+\Omega)-\omega=\Omega$, c'est-à-dire avec uniquement le laser à la fréquence ω, on génère toujours une onde polarisée TM, alors qu'avec une excitation aux fréquences ω et 2ω, on peut générer toutes les directions de polarisation, la polarisation de l'onde à 2ω déterminant la polarisation de l'onde THz.

4.4.3 Expérience réalisée avec la détection EO sensible en polarisation

On réalise l'expérience décrite par la figure 4.4, en utilisant la détection sensible en polarisation, détaillée dans le chapitre 3. On enregistre les signaux THz obtenus dans les 2 configurations (avec et sans le cristal de $\beta-BBO$) pour une puissance laser d'environ 500 mW. Les faisceaux ω et 2ω sont polarisés à l'aide de lames demi-onde. La figure 4.8 (a) montre le champ THz issu du redressement optique excité par un faisceau ω polarisé TM. L'expérience donne un champ THz polarisé TM comme attendu par le développement théorique et les expériences déjà publiées (paragraphe 4.3). La figure 4.8 (b) montre le champ THz issu de l'excitation d'un faisceau composé de ω polarisé TM et de 2ω polarisé TE. On observe que la composante TE n'est plus nulle comme dans le cas d'un redressement optique. Cette dépolarisation est due au champ THz rayonné suite à l'ajout d'un champ $E_{2\omega}$ polarisé TE. Dans cette configuration (ω-TM + 2ω-TE) la théorie prévoyait un champ THz polarisé TE (comme la polarisation du champ $E_{2\omega}$). C'est bien ce que nous observons. Ainsi ce résultat prouve que le signal THz observé provient de la génération par effet non linéaire d'ordre 3 à la surface du métal. Toutefois, le rapport signal sur bruit des signaux THz obtenus par redressement optique ou par effet non linéaire d'ordre 3 est très faible. Pour faire sortir le signal du bruit, il a fallu se placer à la limite du seuil de dommage de la couche d'or. Bien souvent, la couche d'or a été abîmée, et même ablatée par les impulsions laser. Néanmoins, nous avons vérifié que le substrat nu ne produisait pas de signal THz dans les mêmes conditions d'excitation : le signal THz observé est bien généré par le métal.



(a) (b)

FIGURE 4.8 – Comparaison de la polarisation du signal THz émis avec (a) un faisceau de champ E_ω polarisé en TM et (b) un faisceau composé des champs E_ω polarisés en TM et $E_2\omega$ polarisé en TE.

4.5 Conclusion

Ce chapitre permet de montrer le parallèle qui existe entre le gaz d'électrons des métaux et le nuage électronique des plasmas. Dans les deux cas, les déplacements opposés des charges de signes différents créent un dipôle électrique qui provoque un courant d'électrons générant une polarisation. La modélisation des dipôles électriques qui polarisent la matière que nous avons réalisée est basée sur le simple modèle de Lorentz. Pour étendre ce modèle aux effets non linéaires d'ordre 2, nous avons utilisé la formule de Bloembergen pour exprimer la polarisation non linéaire d'un effet non linéaire du second ordre, et la formule de Bloembergen et Burns pour modéliser la polarisation non linéaire d'un effet non linéaire du troisième ordre. Les modélisations développées dans ce chapitre prédisent l'orientation des polarisations du champ THz rayonné. Pour un effet non linéaire du second ordre, le champ THz est polarisé TM pour n'importe quelle orientation de la polarisation du faisceau ω. Dans le cas d'un effet non linéaire d'ordre trois, la polarisation du champ THz est la même que celle du champ 2ω, peu importe la polarisation du champ ω.

Grâce à la détection électro-optique sensible en polarisation que nous avons utilisée, nous avons pu analyser la polarisation du champ THz généré par redressement optique et par effet non linéaire d'ordre 3. Les polarisations mesurées sont en accord avec les modélisations. On peut en conclure que nous avons réussi pour la première fois à générer en réflexion une onde THz à la surface d'une couche d'or par un effet non linéaire d'ordre 3.

Toutefois, ces résultats restent préliminaires et demandent à être confirmés par d'autres mesures, par exemple en changeant les polarisations des champs excitateurs. Pour aller plus loin dans la compréhension des phénomènes, on pourrait également imaginer refaire ces expériences en changeant l'angle d'incidence.

Conclusion et perspectives

Conclusion générale

Les objectifs principalement poursuivis dans ces travaux de thèse portaient sur l'étude de deux techniques novatrices de génération d'onde térahertz dans un plasma, soit dans un filament créé dans l'air par claquage, soit à la surface d'un métal. Bien qu'un métal ne soit pas rigoureusement un gaz ionisé, c'est un milieu dans lequel il existe des porteurs libres. La génération d'onde térahertz à sa surface fait ainsi appel à des phénomènes proches de ceux rencontrés dans un plasma. Pour analyser ces mécanismes, nous avons doté notre banc expérimental d'une détection électro-optique sensible en polarisation permettant d'enregistrer au cours du temps les différentes composantes du champ THz généré. A notre connaissance, c'est la première fois qu'une telle détection est utilisée sur une expérience de génération THz par claquage dans l'air.

Le chapitre 1 était consacré aux phénomènes impliqués dans la génération par claquage dans l'air, tels que la création du filament, la force pondéromotrice, la non-linéarité de la réponse électromagnétique des atomes/molécules et l'asymétrie géométrique de l'impulsion optique.

Les différentes phases de construction et de développement du banc expérimental ont été décrites dans le chapitre 2. Les premiers signaux obtenus dans les six premiers mois de la thèse n'étaient pas satisfaisants, le rapport signal/bruit de 20 dB et la largeur de bande spectrale générée de 1,5 THz étant bien plus faibles que ce qui peut être trouvé dans la littérature [103] et la reproductibilité des mesures étant insuffisante pour les études prévues. Des flux d'air dans la salle d'expérience ont été identifiés comme source de bruit en amplitude et de gigue temporelle sur le signal mesuré. Une amélioration nette a été observée en protégeant le banc de ce flux et en choisissant judicieusement les paramètres de moyennage temporel. Différents axes d'optimisation ont ensuite été explorés, tel que, par exemple, la focalisation du faisceau laser créant le filament plasma dans l'air. A puissance optique donnée, une distance focale longue permet d'obtenir un filament plus long et moins dense, conditions plus favorables à la génération d'un rayonnement THz intense. A l'inverse, une distance focale courte entraîne un filament court et dense, conduisant à un rayonnement THz large bande. Nous avons utilisé une distance focale moyenne pour obtenir le meilleur compromis, c'est-à-dire à la fois un rayonnement THz large bande et intense. Le cristal doubleur de fréquence a également été soigneusement orienté de façon à optimiser à la fois la puissance optique du faisceau bleu et la polarisation relative entre les faisceaux bleu et rouge. Finalement, le meilleur signal THz obtenu présente une dynamique de 40 dB à 1 THz et une bande spectrale s'étendant de 0,1 à 7 THz. Cette largeur de bande reste bien en deçà des 30 THz que nous pensions pouvoir obtenir grâce à la chaîne laser amplifiée que nous avons utilisée. La dynamique quant à elle, est dans la moyenne des bancs de mesure équivalents de la littérature. D'autres améliorations sont encore possibles ; nous les détaillerons dans le paragraphe sur les perspectives. Nous avons toutefois jugé les performances de notre banc suffisantes pour les études que nous voulions mener et avons fait le choix de ne pas consacrer plus de temps à l'optimisation du signal.

Dans le chapitre 3 ont été présentés les résultats d'une étude originale sur l'influence d'un plasma

jet d'hélium sur la génération d'un rayonnement THz par claquage dans l'air. Une première piste consistait à vérifier si l'ajout de porteurs, via un plasma jet, à l'endroit où se crée le filament à l'origine de l'émission THz pouvait abaisser le seuil de claquage. Malheureusement, le plasma jet apporte une densité de charges supplémentaires trop faible pour avoir une vraie influence sur la génération THz. En revanche, nous avons noté que le flux de gaz d'hélium, lui, apportait une interaction intéressante et pouvait influer à la fois sur l'amplitude et sur l'état de polarisation du champ THz généré. La position du flux de gaz est ici déterminante. Si le flux de gaz est positionné en amont du filament, il permet une meilleure synchronisation entre les faisceaux rouge et bleu, grâce à une différence d'indice de réfraction plus favorable dans l'hélium que dans l'air. Il est ainsi possible d'obtenir une augmentation de 10 % de l'amplitude du champ THz généré. La polarisation du champ THz reste elliptique mais son orientation est tournée d'environ 14°. Si le flux de gaz est envoyé sur le filament, on observe une chute jusqu'à 50% de l'amplitude du signal. L'orientation de la polarisation du champ THz, toujours elliptique, subit alors une rotation qui peut aller jusqu'à 22°. Lorsque le flux de gaz est positionné en aval du filament, aucun changement notable n'est observé sur le signal THz. Ceci était plutôt attendu, l'hélium étant transparent aux fréquences THz. Pour expliquer ces observations, un modèle théorique a été développé pendant ces travaux de thèse. Il consiste à prendre en compte les caractéristiques suivantes des deux gaz en jeu, l'air et l'hélium : indice de réfraction, coefficient non linéaire d'ordre 2 et énergie d'ionisation. Le modèle propose de considérer une distribution linéique de sources THz le long du filament plasma, le signal THz mesuré étant la somme des contributions de chaque source. Le flux d'hélium est modélisé par le remplacement d'une épaisseur d'air par une couche uniforme d'hélium. Notre modèle est validé par son bon accord avec les mesures, quelle que soit la position du flux de gaz. Il explique à la fois la variation de l'amplitude du champ THz et son changement d'état de polarisation. Il permet également d'estimer la valeur de la dispersion chromatique non linéaire du second ordre de l'hélium. Cette valeur est un peu surestimée à cause de certaines approximations faites, comme la prise en compte d'une distribution linéique de forme simple, gaussienne, ou le fait de ne pas prendre en compte les phénomènes de filamentation dans le calcul de l'intensité optique.

Enfin, dans le dernier chapitre était décrite une étude sur la génération THz à la surface d'une couche de métal. Si une émission en réflexion par rectification optique avait déjà été observée (effet non linéaire d'ordre 3), nous avons cherché à démontrer qu'il était possible d'obtenir une émission THz par mélange à 4 ondes (effet non linéaire d'ordre 3). Un modèle théorique, que nous avons développé en nous basant sur celui de Bloembergen et Burns, démontre que les deux effets non linéaires (d'ordre 2 ou 3) peuvent être discriminés en analysant la polarisation du champ THz généré. Il est en effet possible de générer une onde THz polarisée TE par un effet non linéaire d'ordre 3, alors que ce n'est pas possible avec un effet non linéaire d'ordre 2. Expérimentalement, nous avons modifié le banc utilisé lors des études précédentes pour mesurer le champ THz émis à la surface d'une couche d'or. L'analyse en polarisation du champ THz nous a confirmé que nous avons bien observé la génération d'ondes THz, à la fois par rectification optique et par effet non linéaire d'ordre 3. Ces résultats restent toutefois préliminaires et méritent d'être confirmés par d'autres expériences, comme nous le détaillerons dans le paragraphe suivant.

Perspectives

Plusieurs pistes peuvent être envisagées pour poursuivre ces travaux. Dans un premier temps, des améliorations pourraient être apportées sur le banc expérimental lui-même afin d'améliorer le rapport signal/bruit ou sa bande passante de travail. On pourrait, en particulier, envisager d'assécher l'air pour ne pas subir l'absorption des ondes THz par la vapeur d'eau ambiante, mais aussi

d'utiliser une détection par un plasma permettant de s'affranchir de l'accord de phase du cristal électro-optique par exemple.

Il reste encore beaucoup à comprendre sur la génération THz à la surface d'un métal. Pour compléter nos travaux, il faudrait réaliser une étude polarimétrique exhaustive, analysant la polarisation du champ THz généré pour toutes les configurations de polarisation des ondes de pompe possibles. Une étude sur la génération par rectification optique a montré que l'angle d'incidence sur la surface de l'échantillon du faisceau de pompe a une influence sur l'amplitude du signal généré. Il serait intéressant de faire une étude semblable dans une configuration de mélange à 4 ondes. Il est également possible d'envisager une étude sur l'effet de l'épaisseur de la couche de métal. Cette étude a montré, dans le cas de la rectification optique, que l'épaisseur de métal en interaction avec le champ excitateur laser est bien plus important que la profondeur de pénétration du champ laser théorique ($\approx$ 12 nm pour l'or à $\lambda_0 \approx$ 800 nm) alors que l'amplitude maximale du signal THz est mesurée pour une couche d'or d'épaisseur de 160 nm [58]. On pourrait également changer le métal pour s'intéresser à des échantillons d'argent par exemple.

Dans le cas de l'influence d'un flux de gaz sur la génération THz par claquage dans l'air, des études peuvent être menées suivant deux axes. Sur l'interaction gaz/filament elle-même, il serait intéressant d'étudier l'influence d'autres gaz que l'hélium. Par exemple, il a été démontré qu'il est possible de générer des champs THz plus forts en remplaçant l'air par un gaz rare comme le Xénon. Ce serait également une opportunité pour tester la robustesse de notre modèle théorique. Un autre axe pourrait être de poursuivre l'idée d'abaisser le seuil de claquage pour pouvoir s'affranchir d'une chaîne laser amplifiée. Une idée serait de localiser l'interaction entre les impulsions rouge et bleue dans un plasma externe possédant une densité de charges plus grande que le plasma jet que nous avons utilisé.

Bibliographie

[1] J. V. Moloney, J. M. Yarborough, M. Fallahi, M. Scheller, S. W. Koch, and M. Koch, "Compact, high-power, room-temperature, narrow-line terahertz source," *SPIE Newsroom*, Mar. 2011.

[2] M. Tonouchi, "Cutting-edge terahertz technology," *Nature Photonics*, vol. 1, pp. 97–105, Feb. 2007.

[3] M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp, "Intense ultrashort terahertz pulses : Generation and applications," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 44, p. 083001, Mar. 2011.

[4] G. G. Fazio, "A review of infrared and submillimeter astronomy with balloon-borne telescopes," *Infrared Physics*, vol. 19, pp. 341–351, Aug. 1979.

[5] C. Kulesa, "Terahertz Spectroscopy for Astronomy : From Comets to Cosmology," *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, vol. 1, pp. 232–240, Sept. 2011.

[6] B. Ferguson and X.-C. Zhang, "Materials for terahertz science and technology," *Nature Materials*, vol. 1, pp. 26–33, Sept. 2002.

[7] D. Dragoman and M. Dragoman, "Terahertz fields and applications," *Progress in Quantum Electronics*, vol. 28, pp. 1–66, Jan. 2004.

[8] X.-C. Zhang and J. Xu, *Introduction to THz Wave Photonics*. Boston, MA : Springer US, 2010.

[9] Y.-S. Lee, *Principles of Terahertz Science and Technology*. Springer Science & Business Media, Mar. 2009.

[10] H. Zhong, A. Redo-Sanchez, and X.-C. Zhang, "Identification and classification of chemicals using terahertz reflective spectroscopic focal-plane imaging system," *Optics Express*, vol. 14, no. 20, p. 9130, 2006.

[11] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, "Terahertz Time-Domain Spectroscopy of Solids : A Review," *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, vol. 26, pp. 1661–1690, Dec. 2005.

[12] T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Mährlein, T. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber, "Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves," *Nature Photonics*, vol. 5, pp. 31–34, Jan. 2011.

[13] S. P. Jamison, J. Shen, D. R. Jones, R. C. Issac, B. Ersfeld, D. Clark, and D. A. Jaroszynski, "Plasma characterization with terahertz time–domain measurements," *Journal of Applied Physics*, vol. 93, pp. 4334–4336, Apr. 2003.

[14] A. J. Fitzgerald, E. Berry, N. N. Zinovev, G. C. Walker, M. A. Smith, and J. M. Chamberlain, "An introduction to medical imaging with coherent terahertz frequency radiation," *Physics in Medicine and Biology*, vol. 47, pp. R67–R84, Apr. 2002.

[15] P. Siegel, "Terahertz Technology in Biology and Medicine," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 52, pp. 2438–2447, Oct. 2004.

[16] E. Pickwell and V. P. Wallace, "Biomedical applications of terahertz technology," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 39, pp. R301–R310, Sept. 2006.

[17] C. Yu, S. Fan, Y. Sun, and E. Pickwell-MacPherson, "The potential of terahertz imaging for cancer diagnosis : A review of investigations to date," *Quantitative Imaging in Medicine and Surgery*, vol. 2, no. 1, p. 13, 2012.

[18] H.-B. Liu, H. Zhong, N. Karpowicz, Y. Chen, and X.-C. Zhang, "Terahertz Spectroscopy and Imaging for Defense and Security Applications," *Proceedings of the IEEE*, vol. 95, pp. 1514–1527, Aug. 2007.

[19] J. Federici and L. Moeller, "Review of terahertz and subterahertz wireless communications," *Journal of Applied Physics*, vol. 107, p. 111101, June 2010.

[20] S. Koenig, D. Lopez-Diaz, J. Antes, F. Boes, R. Henneberger, A. Leuther, A. Tessmann, R. Schmogrow, D. Hillerkuss, and R. Palmer, "Wireless sub-THz communication system with high data rate," *Nature photonics*, vol. 7, no. 12, pp. 977–981, 2013.

[21] J. Waters, L. Froidevaux, R. Harwood, R. Jarnot, H. Pickett, W. Read, P. Siegel, R. Cofield, M. Filipiak, D. Flower, J. Holden, G. Lau, N. Livesey, G. Manney, H. Pumphrey, M. Santee, D. Wu, D. Cuddy, R. Lay, M. Loo, V. Perun, M. Schwartz, P. Stek, R. Thurstans, M. Boyles, K. Chandra, M. Chavez, Gun-Shing Chen, B. Chudasama, R. Dodge, R. Fuller, M. Girard, J. Jiang, Yibo Jiang, B. Knosp, R. LaBelle, J. Lam, K. Lee, D. Miller, J. Oswald, N. Patel, D. Pukala, O. Quintero, D. Scaff, W. Van Snyder, M. Tope, P. Wagner, and M. Walch, "The Earth observing system microwave limb sounder (EOS MLS) on the aura Satellite," *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, vol. 44, pp. 1075–1092, May 2006.

[22] B. B. Hu and M. C. Nuss, "Imaging with terahertz waves.," *Optics letters*, vol. 20, no. 16, p. 1716, 1995.

[23] J. Jackson, M. Mourou, J. Whitaker, I. Duling, S. Williamson, M. Menu, and G. Mourou, "Terahertz imaging for non-destructive evaluation of mural paintings," *Optics Communications*, vol. 281, pp. 527–532, Feb. 2008.

[24] G. Filippidis, M. Massaouti, A. Selimis, E. J. Gualda, J.-M. Manceau, and S. Tzortzakis, "Nonlinear imaging and THz diagnostic tools in the service of Cultural Heritage," *Applied Physics A*, vol. 106, pp. 257–263, Feb. 2012.

[25] Y.-K. Lee, S.-W. Choi, S.-T. Han, D. H. Woo, and H. S. Chun, "Detection of Foreign Bodies in Foods Using Continuous Wave Terahertz Imaging," *Journal of Food Protection*, vol. 75, pp. 179–183, Jan. 2012.

[26] D. M. Slocum, E. J. Slingerland, R. H. Giles, and T. M. Goyette, "Atmospheric absorption of terahertz radiation and water vapor continuum effects," *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 127, pp. 49–63, Sept. 2013.

[27] "Terahertz Sensing and imaging Laboratory." http ://www2.riken.jp/.

[28] R. A. Lewis, "A review of terahertz sources," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 47, p. 374001, Sept. 2014.

[29] K. M. Evenson, D. A. Jennings, and F. R. Petersen, "Tunable far-infrared spectroscopy," *Applied physics letters*, vol. 44, no. 6, pp. 576–578, 1984.

[30] W. Shi, M. Leigh, J. Zong, and S. Jiang, "Single-frequency terahertz source pumped by Q-switched fiber lasers based on difference-frequency generation in GaSe crystal," *Optics letters*, vol. 32, no. 8, pp. 949–951, 2007.

[31] 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*, vol. 417, pp. 156–159, May 2002.

[32] E. R. Mueller, "Optically Pumped Terahertz (THz) Lasers," *Wiley Encyclopedia of Electrical and Electronics Engineering*, pp. 1–22, 1999.

[33] E. R. Mueller, J. Fontanella, and R. W. Henschke, "Stabilized, integrated, far-infrared laser system for NASA/Goddard Space Flight Center," in *Proc. 10th Int. Symp. Space Terahertz Technol*, 2000.

[34] H.-W. Hübers, S. G. Pavlov, and V. N. Shastin, "Terahertz lasers based on germanium and silicon," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 20, pp. S211–S221, July 2005.

[35] P. Shumyatsky and R. R. Alfano, "Terahertz sources," *Journal of Biomedical Optics*, vol. 16, no. 3, p. 033001, 2011.

[36] A. Maestrini, J. S. Ward, J. J. Gill, H. S. Javadi, E. Schlecht, C. Tripon-Canseliet, G. Chattopadhyay, and I. Mehdi, "A 540-640-GHz high-efficiency four-anode frequency tripler," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 53, no. 9, pp. 2835–2843, 2005.

[37] J. V. Siles and J. Grajal, "Physics-based design and optimization of Schottky diode frequency multipliers for terahertz applications," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 58, no. 7, pp. 1933–1942, 2010.

[38] D. H. Auston and P. R. Smith, "Generation and detection of millimeter waves by picosecond photoconductivity," *Applied Physics Letters*, vol. 43, pp. 631–633, Oct. 1983.

[39] M. van Exter, C. Fattinger, and D. Grischkowsky, "High-brightness terahertz beams characterized with an ultrafast detector," *Applied Physics Letters*, vol. 55, pp. 337–339, July 1989.

[40] S. Gupta, M. Y. Frankel, J. A. Valdmanis, J. F. Whitaker, G. A. Mourou, F. W. Smith, and A. R. Calawa, "Subpicosecond carrier lifetime in GaAs grown by molecular beam epitaxy at low temperatures," *Applied Physics Letters*, vol. 59, pp. 3276–3278, Dec. 1991.

[41] L. Duvillaret, F. Garet, J.-F. Roux, and J.-L. Coutaz, "Analytical modeling and optimization of terahertz time-domain spectroscopy experiments, using photoswitches as antennas," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 7, no. 4, pp. 615–623, July-Sept./2001.

[42] J. V. Rudd and D. M. Mittleman, "The Influence of Substrate Lens Design in Terahertz Time-Domain Spectroscopy," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, pp. 319–329, 2002.

[43] N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky, "Efficient generation of 380 fs pulses of THz radiation by ultrafast laser pulse excitation of a biased metal-semiconductor interface," *Applied Physics Letters*, vol. 58, pp. 222–224, Jan. 1991.

[44] G. Zhao, R. N. Schouten, N. van der Valk, W. T. Wenckebach, and P. C. M. Planken, "Design and performance of a THz emission and detection setup based on a semi-insulating GaAs emitter," *Review of Scientific Instruments*, vol. 73, pp. 1715–1719, Apr. 2002.

[45] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar, "Generation of high-power subsingle-cycle 500-fs electromagnetic pulses," *Optics letters*, vol. 18, no. 4, pp. 290–292, 1993.

[46] X. Ropagnol, M. Khorasaninejad, M. Raeiszadeh, S. Safavi-Naeini, M. Bouvier, C. Y. Côté, A. Laramée, M. Reid, M. A. Gauthier, and T. Ozaki, "Intense THz Pulses with large ponderomotive potential generated from large aperture photoconductive antennas," *Optics express*, vol. 24, no. 11, pp. 11299–11311, 2016.

[47] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich, "Optical Rectification," *Physical Review Letters*, vol. 9, pp. 446–448, Dec. 1962.

[48] Qi Wu and Xi-Cheng Zhang, "Design and characterization of traveling-wave electrooptic terahertz sensors," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 2, no. 3, pp. 693–700, Sept./1996.

[49] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer, "Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz," *Applied Physics Letters*, vol. 76, pp. 3191–3193, May 2000.

[50] C. A. Schmuttenmaer, "Exploring Dynamics in the Far-Infrared with Terahertz Spectroscopy," *Chemical Reviews*, vol. 104, pp. 1759–1780, Apr. 2004.

[51] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, and H. K. Haugen, "Generation of 1.5 μJ single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal," *Optics Express*, vol. 15, no. 20, pp. 13212–13220, 2007.

[52] T. Löffler, M. Kreß, M. Thomson, T. Hahn, N. Hasegawa, and H. G. Roskos, "Comparative performance of terahertz emitters in amplifier-laser-based systems," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 20, pp. S134–S141, July 2005.

[53] T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, "Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air," *Applied Physics Letters*, vol. 77, pp. 453–455, July 2000.

[54] Y. Chen, M. Yamaguchi, M. Wang, and X.-C. Zhang, "Terahertz pulse generation from noble gases," *Applied Physics Letters*, vol. 91, p. 251116, Dec. 2007.

[55] Q. Jin, Y. E, K. Williams, J. Dai, and X.-C. Zhang, "Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water," *Applied Physics Letters*, vol. 111, no. 7, p. 071103, 2017.

[56] I. Dey, K. Jana, V. Y. Fedorov, A. D. Koulouklidis, A. Mondal, M. Shaikh, D. Sarkar, A. D. Lad, S. Tzortzakis, and A. Couairon, "Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids," *Nature communications*, vol. 8, no. 1, pp. 1–7, 2017.

[57] F. Kadlec, P. Kuzel, and J.-L. Coutaz, "Optical rectification at metal surfaces," *Optics Letters*, vol. 29, pp. 2674–2676, Nov. 2004.

[58] F. Kadlec, P. Kuzel, and J.-L. Coutaz, "Study of terahertz radiation generated by optical rectification on thin gold films," *Optics letters*, vol. 30, no. 11, pp. 1402–1404, 2005.

[59] H. A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol, and T. Ozaki, "Intense terahertz radiation and their applications," *Journal of Optics*, vol. 18, no. 9, p. 093004, 2016.

[60] T. I. Oh, Y. J. Yoo, Y. S. You, and K. Y. Kim, "Generation of strong terahertz fields exceeding 8 MV/cm at 1 kHz and real-time beam profiling," *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 4, p. 041103, 2014.

[61] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, "Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction," *Physical Review Letters*, vol. 71, pp. 2725–2728, Oct. 1993.

[62] D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, "Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air," *Optics Letters*, vol. 25, pp. 1210–1212, Aug. 2000.

[63] H. Hertz, "Ueber sehr schnelle electrische Schwingungen," *Annalen der Physik*, vol. 267, no. 7, pp. 421–448, 1887.

[64] X. C. Zhang, A. Shkurinov, and Y. Zhang, "Extreme terahertz science," *Nature Photonics*, vol. 11, pp. 16–18, Jan. 2017.

[65] P. A. Cherenkov, "Visible emission of clean liquids by action of γ radiation," in *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, vol. 2, pp. 451–454, 1934.

[66] I. E. Tamm and I. M. Frank, "Coherent radiation of fast electrons in a medium," in *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, vol. 14, pp. 107–112, 1937.

[67] P. Sprangle, E. Esarey, and A. Ting, "Nonlinear theory of intense laser-plasma interactions," *Physical Review Letters*, vol. 64, pp. 2011–2014, Apr. 1990.

[68] P. B. Corkum, "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Physical Review Letters*, vol. 71, pp. 1994–1997, Sept. 1993.

[69] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone, "Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas," *Physical Review E*, vol. 49, pp. 671–677, Jan. 1994.

[70] P. Sprangle, J. R. Peñano, B. Hafizi, and C. A. Kapetanakos, "Ultrashort laser pulses and electromagnetic pulse generation in air and on dielectric surfaces," *Physical Review E*, vol. 69, p. 066415, June 2004.

[71] M. Cornet, "Développement de sources térahertz intenses et applications en optique non-linéaire," p. 210.

[72] L. V. Keldysh, "IONIZATION IN THE FIELD OF A STRONG ELECTROMAGNETIC WAVE," *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.*, vol. Vol : 47, Nov. 1964.

[73] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics : Non-Relativistic Theory*, vol. 3. Elsevier, 1965.

[74] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev, "Ionization of atoms in an alternating electric field," *Sov. Phys. JETP*, vol. 23, no. 5, pp. 924–934, 1966.

[75] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, "Tunnel Ionization Of Complex Atoms And Atomic Ions In Electromagnetic Field," in *High Intensity Laser Processes*, vol. 0664, pp. 138–141, International Society for Optics and Photonics, Oct. 1986.

[76] A. Nguyen, "Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules," p. 203.

[77] M. Kolesik, J. V. Moloney, and M. Mlejnek, "Unidirectional Optical Pulse Propagation Equation," *Physical Review Letters*, vol. 89, p. 283902, Dec. 2002.

[78] S. Mitryukovskiy, *Coherent Secondary Radiation from Femtosecond Laser Filaments*. Theses, École Polytechnique, Sept. 2014.

[79] P. Lallemand and N. Bloembergen, "Self-Focusing of Laser Beams and Stimulated Raman Gain in Liquids," *Physical Review Letters*, vol. 15, pp. 1010–1012, Dec. 1965.

[80] E. Garmire, R. Y. Chiao, and C. H. Townes, "Dynamics and Characteristics of the Self-Trapping of Intense Light Beams," *Physical Review Letters*, vol. 16, pp. 347–349, Feb. 1966.

[81] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*. 1984.

[82] M. D. Feit and J. A. Fleck, "Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown," *Applied Physics Letters*, vol. 24, pp. 169–172, Feb. 1974.

[83] A. V. Gaponov and M. A. Miller, "Use of moving high-frequency potential wells for the acceleration of charged particles," *SOVIET PHYSICS JETP-USSR*, vol. 7, no. 3, pp. 515–516, 1958.

[84] G. A. Askaryan, "Cerenkov radiation and transition radiation from electromagnetic waves," *Sov. Phys. JETP*, vol. 15, pp. 943–946, 1962.

[85] Hamster, Falcone, *Ultrafast Phenomena VII*. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg, 1990.

[86] G. J. Morales and Y. C. Lee, "Ponderomotive-Force Effects in a Nonuniform Plasma," *Physical Review Letters*, vol. 33, pp. 1016–1019, Oct. 1974.

[87] H. a. H. Boot and R. B. R.-S.-Harvie, "Charged Particles in a Non-uniform Radio-frequency Field," *Nature*, vol. 180, pp. 1187–1187, Nov. 1957.

[88] L. Kang, F. Buccheri, and Z. Xicheng, "Terahertz science and technology of micro-plasma," *Wuli*, vol. 44, no. 8, pp. 497–502, 2015.

[89] W. P. Leemans, C. G. R. Geddes, J. Faure, C. Tóth, J. Van Tilborg, C. B. Schroeder, E. Esarey, G. Fubiani, D. Auerbach, and B. Marcelis, "Observation of terahertz emission from a laser-plasma accelerated electron bunch crossing a plasma-vacuum boundary," *Physical review letters*, vol. 91, no. 7, p. 074802, 2003.

[90] H. G. Roskos, M. D. Thomson, M. Kreß, and T. Löffler, "Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses : From fundamentals to applications," *Laser & Photonics Reviews*, vol. 1, pp. 349–368, Dec. 2007.

[91] T. Löffler and H. G. Roskos, "Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma," *Journal of Applied Physics*, vol. 91, pp. 2611–2614, Feb. 2002.

[92] T. Bartel, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, and T. Elsaesser, "Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes," *Optics Letters*, vol. 30, no. 20, p. 2805, 2005.

[93] M. D. Thomson, V. Blank, and H. G. Roskos, "Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields," *Optics Express*, vol. 18, p. 23173, Oct. 2010.

[94] M. Kress, T. Löffler, S. Eden, M. Thomson, and H. G. Roskos, "Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves," *Optics Letters*, vol. 29, p. 1120, May 2004.

[95] X. Xie, J. Dai, and X.-C. Zhang, "Coherent Control of THz Wave Generation in Ambient Air," *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 075005, Feb. 2006.

[96] K.-Y. Kim, J. H. Glownia, A. J. Taylor, and G. Rodriguez, "Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields," *Optics Express*, vol. 15, no. 8, p. 4577, 2007.

[97] X. Xie, J. Xu, J. Dai, and X.-C. Zhang, "Enhancement of terahertz wave generation from laser induced plasma," *Applied Physics Letters*, vol. 90, p. 141104, Apr. 2007.

[98] K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glownia, and G. Rodriguez, "Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser–gas interactions," *Nature Photonics*, vol. 2, pp. 605–609, Oct. 2008.

[99] R. W. Boyd, "The nonlinear optical susceptibility," *Nonlinear optics*, vol. 3, pp. 1–67, 2008.

[100] J. Dai, X. Xie, and X.-C. Zhang, "Detection of Broadband Terahertz Waves with a Laser-Induced Plasma in Gases," *Physical Review Letters*, vol. 97, Sept. 2006.

[101] M. Kreß, T. Löffler, M. D. Thomson, R. Dörner, H. Gimpel, K. Zrost, T. Ergler, R. Moshammer, U. Morgner, and J. Ullrich, "Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy," *Nature physics*, vol. 2, no. 5, pp. 327–331, 2006.

[102] J. Dai and X.-C. Zhang, "Terahertz wave generation from gas plasma using a phase compensator with attosecond phase-control accuracy," *Applied Physics Letters*, vol. 94, no. 2, p. 021117, 2009.

[103] E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida, "Coherent infrared spectroscopy system from terahertz to near infrared using air plasma produced by 10-fs pulses," *JOSA B*, vol. 30, pp. 1627–1630, June 2013.

[104] L. Gillette, *Système de Mesure de Champ Électrique Pour La Caractérisation sans Contact, Vectorielle et à Grande Dynamique de La Tension Basse Fréquence En Environnement Industriel*. Thesis, Grenoble Alpes, Oct. 2016.

[105] Y. Gaeremynck, G. Gaborit, L. Duvillaret, M. Ruaro, and F. Lecoche, "Two electric field components measurements using a 2-port pigtailed electro-optic sensor," *App. Phys. Let.*, vol. 99, 2011.

[106] M. J. Weber, *Handbook of Optical Materials*. The CRC Press Laser and Optical Science and Technology Series, Boca Raton : CRC Press, 2003.

[107] N. Karpowicz, X. Lu, and X.-C. Zhang, "Terahertz gas photonics," *Journal of Modern Optics*, vol. 56, pp. 1137–1150, June 2009.

[108] H. Zhong, N. Karpowicz, and X.-C. Zhang, "Terahertz emission profile from laser-induced air plasma," *Applied Physics Letters*, vol. 88, no. 26, p. 261103, 2006.

[109] A. Gorodetsky, A. D. Koulouklidis, M. Massaouti, and S. Tzortzakis, "Physics of the conical broadband terahertz emission from two-color laser-induced plasma filaments," *Physical Review A*, vol. 89, no. 3, p. 033838, 2014.

[110] M. N. Afsar and H. Chi, "Millimeter wave complex refractive index, complex dielectric permittivity and loss tangent of extra high purity and compensated silicon," *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, vol. 15, no. 7, pp. 1181–1188, 1994.

[111] T. I. Oh, Y. S. You, N. Jhajj, E. W. Rosenthal, H. M. Milchberg, and K. Y. Kim, "Scaling and saturation of high-power terahertz radiation generation in two-color laser filamentation," *Applied Physics Letters*, vol. 102, no. 20, p. 201113, 2013.

[112] M. M. Nazarov, P. A. Shcheglov, M. V. Chaschin, A. A. Garmatina, A. V. Mitrofanov, D. A. Sidorov-Biryukov, M. Bernier, B. Muller, and V. Y. Panchenko, "Measurements of THz and X-ray generation during metal foil ablation by TW, sub-relativistic laser pulses," *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 1692, p. 012018, Nov. 2020.

[113] Y. S. You, T. I. Oh, and K. Y. Kim, "Off-Axis Phase-Matched Terahertz Emission from Two-Color Laser-Induced Plasma Filaments," *Physical Review Letters*, vol. 109, p. 183902, Oct. 2012.

[114] A. H. Firester, M. E. Heller, and P. Sheng, "Knife-edge scanning measurements of subwavelength focused light beams," *Applied Optics*, vol. 16, no. 7, pp. 1971–1974, 1977.

[115] M. Peccianti, M. Clerici, A. Pasquazi, L. Caspani, S. P. Ho, F. Buccheri, J. Ali, A. Busacca, T. Ozaki, and R. Morandotti, "Exact Reconstruction of THz Sub-$$\backslash$lambda $ Source Features in Knife-Edge Measurements," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 19, no. 1, pp. 8401211–8401211, 2012.

[116] V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, N. A. Panov, D. E. Shipilo, P. M. Solyankin, M. N. Esaulkov, P. González de Alaiza Martínez, A. P. Shkurinov, V. A. Makarov, L. Bergé, and S. L. Chin, "Ultrabroad Terahertz Spectrum Generation from an Air-Based Filament Plasma," *Physical Review Letters*, vol. 116, p. 063902, Feb. 2016.

[117] P. Klarskov, T. Wang, J. D. Buron, A. C. Strikwerda, and P. U. Jepsen, "Spatial properties of a terahertz beam generated from a two-color air plasma," in *SPIE Optical Engineering + Applications* (M. Razeghi, A. N. Baranov, and J. M. Zavada, eds.), (San Diego, California, United States), p. 88460R, Sept. 2013.

[118] P. Klarskov, A. C. Strikwerda, K. Iwaszczuk, and P. U. Jepsen, "Experimental three-dimensional beam profiling and modeling of a terahertz beam generated from a two-color air plasma," *New Journal of Physics*, vol. 15, p. 075012, July 2013.

[119] J.-L. Coutaz, *Optoélectronique terahertz*. EDP Sciences, Dec. 2012.

[120] I.-C. Ho, X. Guo, and X.-C. Zhang, "Design and performance of reflective terahertz air-biased-coherent-detection for time-domain spectroscopy," *Optics Express*, vol. 18, p. 2872, Feb. 2010.

[121] F. Sanjuan, G. Gaborit, and J.-L. Coutaz, "Full electro-optic terahertz time-domain spectrometer for polarimetric studies," *Applied Optics*, vol. 57, p. 6055, July 2018.

[122] G. Gaborit, A. Biciunas, M. Bernier, and J.-L. Coutaz, "Emitting and Receiving Terahertz Vectorial Antennas Based on Cubic Electro-Optic Crystals," *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, vol. 5, pp. 828–835, Sept. 2015.

[123] N. C. Van der Valk, W. A. van der Marel, and P. C. Planken, "Terahertz polarization imaging," *Optics letters*, vol. 30, no. 20, pp. 2802–2804, 2005.

[124] L. Duvillaret and G. Gaborit, "Electro-optic Probe For Vector Measurement of an Electromagnetic Field, WO Patent WO/2007/144,547 (2007), EP Patent 2,035,846 (2009)," *US Patent App*, vol. 12, no. 305,066, 2010.

[125] L. Duvillaret, S. Rialland, and J.-L. Coutaz, "Electro-optic sensors for electric field measurements. I.Theoretical comparison among different modulation techniques," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, pp. 2692–2703, 2002.

[126] G. Gaborit, J.-L. Coutaz, and L. Duvillaret, "Vectorial electric field measurement using isotropic electro-optic crystals," *Applied Physics Letters*, vol. 90, p. 241118, June 2007.

[127] G. V. Naidis, "Modelling of plasma bullet propagation along a helium jet in ambient air," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 44, no. 21, p. 215203, 2011.

[128] J. P. Boeuf, L. L. Yang, and L. C. Pitchford, "Dynamics of a guided streamer ('plasma bullet') in a helium jet in air at atmospheric pressure," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 46, no. 1, p. 015201, 2012.

[129] S. Yonemori, Y. Nakagawa, R. Ono, and T. Oda, "Measurement of OH density and air–helium mixture ratio in an atmospheric-pressure helium plasma jet," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 45, no. 22, p. 225202, 2012.

[130] K. Urabe, T. Morita, K. Tachibana, and B. N. Ganguly, "Investigation of discharge mechanisms in helium plasma jet at atmospheric pressure by laser spectroscopic measurements," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 43, no. 9, p. 095201, 2010.

[131] S. Hübner, J. S. Sousa, V. Puech, G. M. W. Kroesen, and N. Sadeghi, "Electron properties in an atmospheric helium plasma jet determined by Thomson scattering," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 47, no. 43, p. 432001, 2014.

[132] F. Théberge, W. Liu, P. T. Simard, A. Becker, and S. L. Chin, "Plasma density inside a femtosecond laser filament in air : Strong dependence on external focusing," *Physical Review E*, vol. 74, no. 3, p. 036406, 2006.

[133] J. Papeer, M. Botton, D. Gordon, P. Sprangle, A. Zigler, and Z. Henis, "Extended lifetime of high density plasma filament generated by a dual femtosecond–nanosecond laser pulse in air," *New Journal of Physics*, vol. 16, no. 12, p. 123046, 2014.

[134] J. Dai, N. Karpowicz, and X.-C. Zhang, "Coherent Polarization Control of Terahertz Waves Generated from Two-Color Laser-Induced Gas Plasma," *Physical Review Letters*, vol. 103, p. 023001, July 2009.

[135] P. M. Solyankin, I. A. Nikolaeva, A. A. Angeluts, D. E. Shipilo, N. V. Minaev, N. A. Panov, A. V. Balakin, Y. Zhu, O. G. Kosareva, and A. P. Shkurinov, "THz generation from laser-induced breakdown in pressurized molecular gases : On the way to terahertz remote sensing of the atmospheres of Mars and Venus," *New Journal of Physics*, vol. 22, no. 1, p. 013039, 2020.

[136] D. R. Lide, "CRC Handbook of Chemistry and Physics CRC," *Boca Raton*, 2008.

[137] J. Dai, J. Liu, and X.-C. Zhang, "Terahertz Wave Air Photonics : Terahertz Wave Generation and Detection With Laser-Induced Gas Plasma," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 17, pp. 183–190, Jan. 2011.

[138] A. Börzsönyi, Z. Heiner, M. Kalashnikov, A. Kovács, and K. Osvay, "Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800 nm," *Applied optics*, vol. 47, pp. 4856–63, Oct. 2008.

[139] H. Kogelnik and T. Li, "Laser beams and resonators," *Applied optics*, vol. 5, no. 10, pp. 1550–1567, 1966.

[140] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer, "Saturation of the all-optical Kerr effect," *Physical review letters*, vol. 106, no. 18, p. 183902, 2011.

[141] Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A. P. Kovács, M. P. Kalashnikov, and K. Osvay, "Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases," *Optics Express*, vol. 18, no. 25, pp. 25847–25854, 2010.

[142] G. Belmont, L. Rezeau, and A. Zaslavsky, *Introduction à la physique des plasmas*. ISTE Group, July 2018.

[143] F. Brown, R. E. Parks, and A. M. Sleeper, "Nonlinear Optical Reflection from a Metallic Boundary," *Physical Review Letters*, vol. 14, pp. 1029–1031, June 1965.

[144] N. Bloembergen, R. K. Chang, S. S. Jha, and C. H. Lee, "Optical Second-Harmonic Generation in Reflection from Media with Inversion Symmetry," *Physical Review*, vol. 174, pp. 813–822, Oct. 1968.

[145] Y. R. Shen, "Surface properties probed by second-harmonic and sum-frequency generation," *Nature*, vol. 337, pp. 519–525, Feb. 1989.

[146] A. V. Andreev, A. A. Korneev, L. S. Mukina, M. M. Nazarov, I. R. Prudnikov, and A. P. Shkurinov, "Simultaneous generation of second and third optical harmonics on a metal grating," *Physical Review B*, vol. 74, p. 235421, Dec. 2006.

[147] G. A. Sheroziya, "Detection of a surface current during the reflection of light from a diffraction grating," *JETP Lett*, vol. 45, no. 7, 1987.

[148] J. F. Offersgaard and T. Skettrup, "Electro-optic properties of thin metallic layers," *JOSA B*, vol. 10, pp. 1457–1463, Aug. 1993.

[149] N. Bloembergen, W. K. Burns, and M. Matsuoka, "Reflected third harmonic generated by picosecond laser pulses," *Optics Communications*, vol. 1, pp. 195–198, Sept. 1969.

[150] W. K. Burns and N. Bloembergen, "Third-Harmonic Generation in Absorbing Media of Cubic or Isotropic Symmetry," *Physical Review B*, vol. 4, pp. 3437–3450, Nov. 1971.

[151] N. I. Zheludev, V. E. Gusev, V. F. Kamalov, E. V. Slobodchikov, P. J. Bennett, H. Loh, S. V. Popov, I. R. Shatwell, and Y. P. Svirko, "Cubic optical nonlinearity of free electrons in bulk gold," *Optics Letters*, vol. 20, p. 1368, June 1995.

[152] P. M. Oppeneer, T. Maurer, J. Sticht, and J. Kübler, "Ab initio calculated magneto-optical Kerr effect of ferromagnetic metals : Fe and Ni," *Physical Review B*, vol. 45, pp. 10924–10933, May 1992.

[153] J. Dai and X.-C. Zhang, "Terahertz wave generation from thin metal films excited by asymmetrical optical fields," *Optics Letters*, vol. 39, p. 777, Feb. 2014.

[154] M. A. Ordal, R. J. Bell, R. W. Alexander, L. L. Long, and M. R. Querry, "Optical properties of fourteen metals in the infrared and far infrared : Al, Co, Cu, Au, Fe, Pb, Mo, Ni, Pd, Pt, Ag, Ti, V, and W.," *Applied optics*, vol. 24, no. 24, pp. 4493–4499, 1985.

[155] N. D. Lang and W. Kohn, "Theory of metal surfaces : Charge density and surface energy," *Physical Review B*, vol. 1, no. 12, p. 4555, 1970.

[156] T. F. Heinz, "Second-order nonlinear optical effects at surfaces and interfaces," in *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, vol. 29, pp. 353–416, Elsevier, 1991.

[157] J.-L. Coutaz, "Surface enhanced second harmonic generation from metals," in *Nonlinear Optics in Solids*, pp. 44–72, Springer, 1990.

[158] I. V. Oladyshkin, D. A. Fadeev, and V. A. Mironov, "Thermal mechanism of laser induced THz generation from a metal surface," *Journal of Optics*, vol. 17, no. 7, p. 075502, 2015.

[159] S. G. Bezhanov and S. A. Uryupin, "Free-electron mechanisms of low-frequency radiation generation on metal surfaces," *Optics letters*, vol. 41, no. 21, pp. 4975–4978, 2016.

[160] J. Maysonnave, S. Huppert, F. Wang, S. Maero, C. Berger, W. De Heer, T. B. Norris, L. A. De Vaulchier, S. Dhillon, and J. Tignon, "Terahertz generation by dynamical photon drag effect in graphene excited by femtosecond optical pulses," *Nano letters*, vol. 14, no. 10, pp. 5797–5802, 2014.

[161] A. F. Gibson, M. F. Kimmitt, and A. C. Walker, "Photon drag in germanium," *Applied Physics Letters*, vol. 17, no. 2, pp. 75–77, 1970.

[162] J.-L. Coutaz, *Nonlinear Optics in Solids : Proceedings of the International Summer School, Aalborg, Denmark, July 31—August 4, 1989*. Springer Science & Business Media, Aug. 1989.

[163] W. Hübner, K. H. Bennemann, and K. Böhmer, "Theory for the Nonlinear Optical Response of Transition-Metals : Polarization Dependence as a Fingerprint of the Electronic Structure at Surfaces and Interfaces," *arXiv :cond-mat/9408012*, Aug. 1994.

[164] J. A. Maytorena, B. S. Mendoza, and W. L. Mochán, "Theory of surface sum frequency generation spectroscopy," *Physical Review B*, vol. 57, no. 4, p. 2569, 1998.

[165] R. W. Boyd, "Order-of-magnitude estimates of the nonlinear optical susceptibility," *journal of modern optics*, vol. 46, no. 3, pp. 367–378, 1999.

[166] D. von der Linde, T. Engers, and G. Jenke, "P. Agostini, G. Grillon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti," *Phys. Rev. A*, vol. 52, pp. R25–7, 1995.

[167] A. V. Andreev, A. A. Korneev, L. S. Mukina, M. M. Nazarov, I. R. Prudnikov, and A. P. Shkurinov, "Simultaneous generation of second and third optical harmonics on a metal grating," *Physical Review B*, vol. 74, no. 23, p. 235421, 2006.

[168] R. R. Birss, "Property tensors in magnetic crystal classes," *Proceedings of the Physical Society*, vol. 79, no. 5, p. 946, 1962.

[169] D. E. Watkins, "Study of degenerate four-wave mixing in germanium and rhenate-doped potassium chloride at carbon dioxide laser wavelengths," tech. rep., Los Alamos National Lab., 1982.

Table des figures

1 Spectre électromagnétique. Le rayonnement THz se situe dans le spectre électro-magnétique entre les ondes dites "électroniques" et celles dites "optiques". 1

2 Sources de rayonnement électromagnétique autour du fossé THz selon leur puissance. RTD : *Resonant tunnel diode*, diode tunnel résonnante. IMPATT : *Impactionization avalanche transit-time diode*, Diode de temps de transit d'avalanche à ionisation d'impact. Gunn : Gunn laser. QCL : *Quantum-cascade laser*, laser cascade quantique. III–V : éléments des groupes III et V dans le tableau périodique des éléments de Mendeleïev. [1]. 2

3 Spectre THz et son influence sur les mouvements moléculaires [27]. 3

4 Différentes sources de rayonnement THz classées selon la bande passante du rayonnement THz émis et leur puissance [35]. PCA : antenne photo-conductrice, OR : redressement optique, CO_2 *laser frequency mixing* : mélange de fréquences de laser CO_2, DFG : différence de fréquence, *optically pumped laser* : laser à pompage optique, QCL : laser à cascade quantique, p-Ge-laser : laser P-Germanium 4

5 Schéma d'une antenne photo-conductrice. L'impulsion laser génère des porteurs de charge dans le *gap* où ils sont accélérés par la tension électrique. 5

6 Schéma d'une antenne photo-conductrice vue de côté rayonnant un champ électrique THz 6

1.1 Processus d'ionisation d'un atome en fonction du champ électrique incident qui déforme le potentiel noyau - électron V(r) : a) Ionisation multi-photonique, b) ionisation par effet tunnel et c) ionisation par suppression de barrière. La déformation de la barrière de potentiel induit par le champ électrique incident est représentée en pointillé bleu [71]. 15

1.2 Schéma des processus mis en jeu lors de la formation d'un filament. a) L'effet Kerr optique qui aboutit à focaliser le faisceau en un point. b) L'effet d'ionisation qui tend à défocaliser le faisceau. c) Formation d'un filament par focalisation du faisceau par effet Kerr optique qui engendre l'ionisation du milieu et qui a pour effet la formation d'un filament [78]. 16

1.3 Trois schémas généraux de la génération d'impulsions THz par claquage. (A) Une seule excitation de faisceau optique (ω ou 2ω), dans laquelle la génération d'onde THz est affectée à la force pondéromotrice pour entraîner les électrons et les ions. (B) La configuration habituelle pour le mélange à quatre ondes (FWM) qui admet le processus optique non linéaire du troisième ordre. (C) Un miroir dichroïque combine le faisceau du deuxième harmonique avec le faisceau fondamental. La phase, l'amplitude et la polarisation des deux faisceaux peuvent être contrôlées individuellement. [8] . . 18

1.4 Schéma expliquant la force pondéromotrice responsable de la génération THz via un plasma photo-généré. a) Impulsion laser se propageant selon l'axe z, la force pondéromotrice crée un gradient de champ électrique qui met en mouvement les électrons libres. b) La force pondéromotrice écarte les électrons libres du plasma en laissant les ions, plus lourds, relativement stationnaires au sein du plasma. c) La différence de la densité électronique entraîne la création d'un dipôle électrique le long de l'axe de propagation. [88] 18

1.5 Champ THz généré en fonction de l'intensité du faisceau laser fondamental à 800 nm (a) et de l'intensité du faisceau du second harmonique à 400 nm (b). [95] 23

1.6 Représentation du changement de repère suivant deux rotations à partir du repère propre du cristal (x, y, z) à (X, Y, Z) qui permet au vecteur d'onde optique de se propager suivant Z [104] 28

1.7 (a) La forme d'onde (b) et le spectre associé à une impulsion THz typique émis et détecté par des filaments plasma [107]. 31

2.1 Schéma de l'expérience montée au début des travaux de thèse comprenant une génération THz via un filament plasma bicolore et une détection électro-optique. MP : miroir parabolique, QWP : lame quart d'onde, HWP : lame demi onde, WP : prisme de Wollaston, BDP : photo-diode balancée. . . 36
2.2 (a) Signal temporel obtenu grâce au banc de spectroscopie avec pour émetteur un filament plasma bicolore et pour détection électro-optique un cristal ZnTe <110> de 0,2 mm d'épaisseur. (b) Spectre associé. 37
2.3 10 signaux temporels (points de mesures) et la moyenne de ces signaux (trait plein gris). Les encadrés correspondent aux agrandissements des zones 1 et 2. 38
2.4 Bruits en amplitude (point bleu) et en phase (carré orange) mesurés en fonction du temps d'intégration du lock-in, ainsi que leurs courbes d'ajustements respectives en τ^{-1} (trait plein bleu) et en $\tau^{-1/4}$ (trait plein orange). 38
2.5 Amplitude du signal THz (gris) et puissance optique (jaune) en fonction du temps, ainsi que leurs courbes d'ajustements linéaires respectives en pointillés. 39
2.6 Deux séries de mesures pour enregistrer le maximum du signal temporel avec en trait plein bleu le tracé du maximum du signal temporel mesuré dès la génération du filament plasma, et en pointillés rouges le maximum du signal THz mesuré 10 minutes après la génération du filament plasma. . . 40
2.7 Maximum du signal THz en fonction du temps (points bleus) ainsi qu'une courbe de tendance sinusoïdale (pointillés rouges). 41
2.8 Signaux temporels des impulsions THz obtenues avec différentes optiques de focalisation : miroir parabolique de distance focale de 5 cm (MP-5cm en bleu) ou une lentille de distance focale de 10 cm (f-10cm en orange) et 20 cm (f-20cm en gris). 42
2.9 Spectres associés aux impulsions THz en changeant la distance focale de l'optique de focalisation : miroir parabolique de distance focale de 5 cm (MP-5cm en bleu) ou une lentille de distance focale de 10 cm (f-10cm en orange) et 20 cm (f-20cm en gris), montrés sur la figure 2.8. 42
2.10 Efficacité du processus de SHG en fonction de l'angle α et sa courbe d'ajustement en $sin^4(\alpha)$. . . 43
2.11 Puissance optique du second harmonique (2ω) en fonction de la puissance optique incidente sur le cristal de $\beta - BBO$ et sa courbe d'ajustement quadratique 44
2.12 Amplitude de l'impulsion THz générée via un filament plasma en fonction de la puissance optique incidente (points de mesures) et son ajustement théorique (trait plein) basé sur le modèle de l'équation (2.2). L'encadré montre les points de mesure à plus basse puissance optique avec une courbe d'ajustement quadratique. 44
2.13 Amplitude du signal THz généré en fonction de la puissance optique avec wafer de silicium (jaune et orange) et pour deux puissances de sonde différentes (32 mW en bleu et orange et 21 mW en gris et jaune). Les courbes d'ajustement prédites par le modèle (2.2) en trait plein. 45
2.14 Amplitude spectrale pour différents diaphragmes à 0,625 THz avec les points de mesures en bleu et le modèle en trait plein noir. 47
2.15 (a) le signal temporel du banc de spectroscopie avec pour émetteur un filament plasma bicolore et pour détection électro-optique un cristal ZnTe <110> de 0,2 mm d'épaisseur avec (b) son spectre associé. 48

3.1 (a) Photo du plasma jet. (b) Schéma du filament plasma bicolore formé par le laser et qui génère un rayonnement THz. En violet, le plasma jet qui se trouve sous le filament plasma et pouvant se déplacer suivant l'axe optique (axe z). 52
3.2 Schéma de la détection électro-optique sensible en polarisation. Elle comprend un cristal non linéaire, ZnTe <111> de 0,2 mm d'épaisseur, un séparateur de faisceau (BS : beamsplitter, une demi-onde, un prisme de Wollastone (WP) sur chaque voie et deux systèmes de photo-diodes (PD) balancées [121]. 53
3.3 Champ électrique du rayonnement THz en fonction du temps mesuré par la détection électro-optique sensible en polarisation. 53
3.4 Représentation du champ électrique THz $\vec{E_\Omega}$ en coordonnée sphérique dans la direction <111> correspondant au vecteur d'onde du faisceau sonde optique [122] 55

3.5 Montage de la détection électro-optique permettant l'analyse vectorielle du champ THz. La polarisation circulaire du faisceau sonde est colinéaire avec le vecteur d'onde THz et permet une mesure EO quelle que soit l'orientation du champ THz $\vec{E_\Omega}$. Représentation de l'ellipsoïde des indices, en haut à gauche, induit par le champ électrique $\vec{E_{\Omega\perp}}$, à mesurer [122]. 55
3.6 Orientation des vecteurs propres de l'ellipse des indices vue par l'onde optique en fonction du champ électrique transverse. Les lignes bleue et rouge correspondent à l'orientation du champ électrique induit par les vecteurs propres dans le référentiel du diélectrique. [122] 56
3.7 Champ électrique du rayonnement THz de référence (en l'absence de plasma jet) en fonction du temps, mesuré par la détection électro-optique sensible en polarisation détaillée dans la partie 3.2 et représenté dans le référentiel propre du cristal EO (ZnTe <111>). 58
3.8 Projection de l'état de polarisation sur E_x et E_y du rayonnement THz pour un signal de référence en l'absence de plasma (noir), avec haute tension seule (rouge), flux d'hélium seul (vert), et avec plasma jet (bleu). 59
3.9 Caption with footmark 60
3.10 Amplitudes normalisées des composantes E_x^{THz} (bleues) et E_y^{THz} (rouges) des impulsions THz en fonction de la position z_0 de la buse d'hélium, extraites des mesures avec flux d'hélium gazeux (cercles), et avec plasma jet (carrés). 61
3.11 Module normalisé du champ THz en fonction de la position z_0 de la buse d'hélium (cercles), et profil de la distribution linéique de sources THz (trait plein) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1. 61
3.12 Variation de l'orientation entre le champ électrique THz généré par claquage dans l'air et celui sous l'influence d'un flux d'hélium (cercles), et profil de la distribution linéique de sources THz (trait plein) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1. 62
3.13 Spectre en amplitude et en phase d'une mesure de référence (noir) et d'une mesure avec le flux d'hélium (rouge) positionné dans la région 3. 64
3.14 Schéma du z-scan. Figure a) : le rayonnement THz en rouge se situe en amont du trou (en gris), il n'est obstrué qu'en partie. Le rayonnement THz en vert, en aval du trou, est totalement détecté. La figure b) schématise le profil transverse en champ de type "donut" du signal THz émis par claquage dans l'air tel que décrit dans le paragraphe 2.3 66
3.15 Puissance normalisée à $f = 0.625$ THz, transmise à travers deux diaphragmes en fonction de leur position z_0. Les points rouges et les carrés bleus sont respectivement les points de mesures obtenus respectivement pour un diaphragme d'1 mm et de 2,5 mm de diamètre. Les courbes rouge et bleue sont respectivement les courbes d'ajustement associées selon le modèle proposé et pour un facteur de forme à 0,625 THz, $B = 2,3$; et le profil de la distribution linéique de sources THz (pointillés) défini à partir du *z-scan* détaillé dans le paragraphe 3.4.1. 70
3.16 Amplitude du champ électrique THz généré par claquage dans l'air (bleu), dans l'hélium (vert), et dans le diazote (rouge), en fonction de la densité de puissance optique de pompe. 72
3.17 Distribution linéique des énergies d'ionisation le long de l'axe optique pour un flux d'hélium centré en $z = z_0$ et soufflé par une buse dont le diamètre intérieur est de ϕ_{tube}. 75
3.18 Schéma du dispositif avec les paramètres z_s et z_0, respectivement la position de la source THz et la position du plasma jet correspondant à l'origine du repère pour les calculs du modèle non linéaire. 76
3.19 Projection de l'état de polarisation sur E_x et E_y du rayonnement THz avec le flux d'hélium en vert, avec le plasma jet en bleu et sans ajout en noir (mesure de référence), en fonction de la région du flux d'hélium. 79

3.20 L'amplitude du champ THz mesurée (points bleus) en fonction de la position du flux d'hélium. Les courbes correspondent au modèle physique résumé en page 78 avec contribution non linéaire d'ordre 2 (trait plein), et sans (pointillés). 80
3.21 La variation de l'orientation du champ THz mesurée entre les mesures avec l'hélium et les mesures de référence, en fonction de la position du flux d'hélium. Les points bleus sont les points de mesures, la courbe en pointillés représente la modélisation linéaire et la courbe en trait plein est issue du modèle non linéaire. . . . 81

4.1 Illustration du courant créé par l'éclairement du laser sur la surface métallique permettant la génération d'un rayonnement THz [159]. 88
4.2 Le graphique de gauche montre les différents processus expliqués théoriquement de génération THz à la surface du métal ainsi que le total en noir. Le graphique de droite reprend la courbe noire du graphique de gauche du total des effets de génération THz à la surface du métal et une courbe de mesure en rouge tirée des travaux de redresssement optique à la surface de l'or de 2004 [57]. Cette courbe noire théorique doit encore être convoluée par la réponse temporelle de la détection EO (en tirets bleus). Il manque toutefois encore un ordre de grandeur pour faire coïncider les deux courbes [159]. 89
4.3 Fluence du champ électrique THz en fonction de la fluence du champ électrique optique de pompe sur l'échantillon d'or et d'argent selon différentes polarisations et longueurs d'onde de pompe [57]. 90
4.4 Schéma de la génération THz à la surface des métaux (sans cristal de $\beta - BBO$ pour la génération par redressement optique, avec le cristal de $\beta - BBO$ pour la génération THz par effet non linéaire d'ordre 3) 91
4.5 Amplitude maximale du signal THz en fonction de la fluence du faisceau laser sur l'échantillon (faisceau composé de ω polarisé TM et 2ω polarisé TE). Cercles rouges : signal THz obtenu par redressement optique ; cercles bleus : signal THz obtenu par effet Kerr et redressement optique. Les courbes sont des courbes de tendances linéaire (en rouge) et parabolique (en bleu). 92
4.6 Phénomènes d'optique non linéaire d'ordre 2 et 3 94
4.7 Schéma du faisceau laser excitant le métal avec la définition des axes utilisés pour le développement théorique. L'axe z est la direction de propagation (normal à la surface du métal). L'angle θ est l'angle d'incidence (ici $\theta = \pi/2$ quand z est normal à la surface), et les angles φ et ψ sont les angles de polarisation (par rapport à l'axe x) des faisceaux à ω et 2ω 96
4.8 Comparaison de la polarisation du signal THz émis avec (a) un faisceau de champ E_ω polarisé en TM et (b) un faisceau composé des champs E_ω polarisés en TM et $E_2\omega$ polarisé en TE. 100

Liste des tableaux

1 Valeurs caractéristiques du domaine térahertz. 1
2 Comparaison des sources impulsionelles 9

1.1 Susceptibilité optique non linéaire de divers matériaux 23
1.2 Propriétés de cinq cristaux électro-optiques zinc-blendes 30

2.1 Paramètres d'ajustement, A, pour les courbes théoriques de la figure 2.13. 45
2.2 Paramètres d'ajustement, B, pour les courbes théoriques de la figure 2.13. 45

3.1 Caractéristiques physiques du dioxygène, du diazote et de l'hélium extraites de la littérature [136]. 71

4.1 Fréquence plasma ω_p de plusieurs métaux dont l'or (Au) qui est utilisé dans les expériences [154]. 86
4.2 Résumé de l'état de polarisation d'un rayonnement térahertz selon la polarisation du mélange des faisceaux optiques ω et 2ω 98
4.3 Résumé de l'état de polarisation d'un rayonnement térahertz selon la polarisation du mélange des faisceaux optiques ω et 2ω pour les matériaux isotropes (amorphes) 99

Génération de rayonnements THz par plasma photo-généré dans les gaz et à la surface de métaux

Résumé

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans l'étude de deux techniques novatrices de génération d'onde térahertz à partir d'un plasma. Celui-ci est soit un filament photo-créé, soit la surface d'un métal. Même si un métal n'est pas formellement un gaz ionisé, c'est un milieu composé de porteurs libres, dont la réponse à une excitation électromagnétique est assez voisine de celle d'un plasma. Dans les deux cas (claquage dans l'air et métaux), nous avons généré et détecté un signal THz par excitation avec un laser impulsionnel femtoseconde intense, à l'aide un banc expérimental de type spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous avons effectué une étude complète de caractérisation du signal THz généré dans l'air en fonction des nombreux paramètres expérimentaux. En particulier, nous nous sommes intéressés au comportement en polarisation des phénomènes observés. Nous avons aussi étudié la possibilité de renforcer l'efficacité de génération par l'addition d'un plasma jet d'hélium. Les résultats obtenus sont parfaitement décrits par un modèle que nous avons développé. Celui-ci tient compte de nombreux paramètres des gaz photo-excités, comme leur énergie d'ionisation, leur dispersion chromatique et leur coefficient non linéaire du second ordre. Dans le cas des métaux, nous avons réalisé pour la première fois une expérience de génération THz en éclairant un miroir métallique par le laser et son second harmonique, mettant en évidence un phénomène non linéaire de type Kerr.

Mots-clés : Génération térahertz, Plasma photo-généré, Plasma jet d'hélium, Génération THz à la surface de métaux, Détection THz sensible en polarisation

Abstract

This thesis project aims to study two innovative techniques for generating terahertz waves from a plasma. This is either a photo-induced filament or the surface of a metal. Even if a metal is not strictly an ionized gas, it is a medium composed of free carriers, whose response to electromagnetic excitation is quite close to that of a plasma. In both cases (breakdown in air and metals), we generated and detected a THz signal by excitation with an intense femtosecond pulsed laser, using an experimental bench of THz spectroscopy type in the time domain. We have achieved a complete characterization of the THz signal generated in the air as a function of the numerous experimental parameters. In particular, we are interested in the polarization of the observed phenomena. We also investigated the possibility of enhancing the generation efficiency by the addition of a helium plasma jet. The results obtained are perfectly described by a model we have developed. This takes into account many parameters of the photo-excited gases, such as their ionization energy, their chromatic dispersion and their second-order non-linear coefficient. In the case of metal, we performed for the first time a THz generation experiment by illuminating a metallic mirror by the laser and its second harmonic, highlighting a nonlinear phenomenon of the Kerr type.

Keywords : Terahertz generation, Photo-induced plasma, Helium plasma jet, THz generation at metal surface, Polarization sensitive THz detection