université de BORDEAUX

THÈSE PRÉSENTÉE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

Spécialité : LASERS, MATIÈRE, NANOSCIENCES

Par **Gabriel TATON**

Spectroscopie THz par photo-mélange d'impulsions à dérive de fréquence sur antennes photo-conductrices

Directeur de thèse : Damien Bigourd
Co-directeur de thèse : Patrick Mounaix

Soutenue le 10 décembre 2025

Membres du jury :

M. Jean-François ROUX	Professeur des universités	Univ. Savoie Mont-Blanc, CROMA	Rapporteur
M. Gaël MOURET	Professeur des universités	Univ. du Littoral Côte d'Opale, LPCA	Rapporteur
M. Emilien PEYTAVIT	Directeur de Recherche	Univ. de Lille, CNRS, IEMN	Examinateur/Président
M. Damien BIGOURD	Chargé de Recherche	Univ. de Bordeaux, CNRS, IMS	Directeur de thèse
M. Patrick MOUNAIX	Directeur de Recherche	Univ. de Bordeaux, CNRS, IMS	Co-directeur de thèse

Table des matières

Table des matières i

Table des figures iii

Introduction générale xi

1 Le domaine térahertz : Sources et applications 1
- 1.1 Définition . . . 1
- 1.2 Applications . . . 2
- 1.3 Sources THz . . . 4
  - 1.3.1 Radiation naturelle . . . 4
  - 1.3.2 Antennes photo-conductrices . . . 5
  - 1.3.3 Laser à cascade quantique (QCL) . . . 6
  - 1.3.4 Rectification optique . . . 7
  - 1.3.5 Autres sources . . . 8
- 1.4 Détecteurs THz . . . 8
  - 1.4.1 Détecteurs pyroélectriques . . . 8
  - 1.4.2 Bolomètres . . . 9
  - 1.4.3 Caméras à semi-conducteurs ou à graphène . . . 9
  - 1.4.4 Spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) . . . 9
- 1.5 Perspectives . . . 11
- 1.6 Bibliography . . . 12

2 Antennes photo-conductrices 19
- 2.1 Principe de fonctionnement . . . 19
  - 2.1.1 Caractéristiques . . . 19
- 2.2 Description analytique de l'émission THz . . . 23
  - 2.2.1 Génération des porteurs de charge . . . 23
  - 2.2.2 Calculs de la photo-conductivité, du courant et du champ électrique THz . . . 25
  - 2.2.3 Saturation du courant et du champ électrique THz . . . 27
- 2.3 Montage expérimental . . . 31
  - 2.3.1 Montage général . . . 31
  - 2.3.2 Source laser dopée à l'Ytterbium . . . 32
  - 2.3.3 Antennes photo-conductrices GaBiAs . . . 33
- 2.4 Mesure d'une impulsion ultra-courte THz . . . 34
  - 2.4.1 Échantillonnage photo-conductif . . . 34
  - 2.4.2 Mesure du signal THz . . . 35
  - 2.4.3 Émission THz en fonction de la focalisation optique . . . 36
  - 2.4.4 Émission THz en fonction de la puissance optique . . . 37
  - 2.4.5 Émission THz en fonction de la tension de polarisation . . . 38
- 2.5 Avantages et limitations . . . 40
- 2.6 Bibliography . . . 41

3 Génération THz par Photo-mélange **47**
3.1 Photo-mélange de lasers à ondes continues . . . 47
3.1.1 Théorie . . . 47
3.2 Façonnage de sources impulsionnelles . . . 50
3.2.1 Impulsions optiques à dérive de fréquence . . . 50
3.2.2 Façonneurs optiques . . . 52
3.3 Réalisation expérimentale . . . 56
3.3.1 Caractérisation du VBG . . . 56
3.4 Photo-mélange d'impulsions optiques à chirps linéaires identiques . . . 58
3.4.1 Théorie . . . 59
3.4.2 Résultats expérimentaux . . . 66
3.5 Photo-mélange d'impulsions à chirps linéaires opposés . . . 70
3.5.1 Théorie . . . 71
3.5.2 Résultats expérimentaux . . . 78
3.6 Conclusion . . . 82
3.7 Bibliography . . . 83

4 Spectroscopie et détection homodyne **87**
4.1 Spectroscopie d'échantillons . . . 87
4.1.1 Spectroscopie par impulsion THz ultra-courte . . . 88
4.1.2 Spectroscopie par impulsion THz de longue durée à spectre fin . . . 92
4.1.3 Spectroscopie par impulsion THz de longue durée à spectre large . . . 94
4.1.4 Conclusion . . . 96
4.2 Détection homodyne du signal THz émis par photo-mélange . . . 96
4.2.1 Détection d'ondes THz continues . . . 96
4.2.2 Détection d'impulsions THz émises par photo mélange quasi-continu . . . 98
4.2.3 Mesures expérimentales et spectroscopie . . . 99
4.3 Conclusion . . . 101
4.4 Bibliography . . . 102

Conclusion générale **105**

Liste des publications de l'auteur **107**

Table des figures

1.1 Illustration des différents domaines de fréquence [1]. 1

1.2 Imagerie en transmission à 100 GHz d'un sac contenant deux armes à feu [11]. . . . 2

1.3 Images dans le domaine fréquentiel du carcinome canalaire infiltrant pour deux échantillons (a et b). Amplitude en transmission (c et d) et en réflexion (e et f) à 1 THz de chaque échantillon. [24] 3

1.4 Spectre de la luminance par un corps noir pour différentes températures. La courbe en tirets représente la radiance maximale atteinte en fonction de la température du corps, et donc de λ_c. 5

1.5 schéma illustrant la structure simplifiée d'une antenne photo-conductrice configurée pour l'émission d'une impulsion THz. L'impulsion optique (rouge) excite le semiconducteur (bleu) entre les dipôles polarisés (jaune) par une tension externe (noir). Les électrons excités et mis en mouvement génèrent un courant transitoire i, ce qui émet une impulsion THz (vert). 6

1.6 Schéma simplifié du principe de fonctionnement d'un QCL. L'électron (rouge) est amené par effet tunnel (bleu) à la sous-bande de haute énergie d'un puits quantique. Il émet alors une onde (vert) en transitionnant vers une sous-bande de plus basse énergie. Une deuxième transition est rapidement réalisée vers une sous-couche légèrement plus basse afin de dépeupler la sous-couche précédente et de maintenir l'état énergétique nécessaire à l'émission d'une même fréquence. Enfin, un champ électrique force l'électron par effet tunnel vers un autre puits dont la sous-couche de plus haute énergie est égale au niveau énergétique de l'électron, permettant le recommencement du cycle. 7

1.7 Schéma illustrant l'échantillonnage d'une impulsion THz (vert) par une impulsion optique ultra-courte (rouge) pour une mesure de spectroscopie dans le domaine temporel. Les courbes en pointillés représentent l'impulsion optique avec un retard relatif à l'impulsion THz différent. 10

2.1 Schéma démonstratif de l'excitation optique a) d'une impulsion ultra courte ou b) de la superposition de deux ondes continues présentant un écart spectral dans la gamme THz. Les champs électriques (violet et rouge) produisent un battement optique (orange) incident sur l'antenne. Cette dernière filtre les fréquences optiques et ne perçoit donc que l'enveloppe de l'excitation (vert), dont les variations temporelles sont à des fréquences plus lentes, de l'ordre du THz. 20

2.2 Schéma illustratif d'une antenne photo-conductrice a) à large ouverture, b) dipôle, c) spirale. 22

2.3 Schéma illustrant la structure simplifiée d'une antenne photo-conductrice configurée pour l'émission d'une onde THz 24

2.4 Simulation d'une impulsion THz générée par l'excitation d'une impulsion optique ultra-courte gaussienne centrée à λ_0 = 1028 nm pour différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique (à énergie optique constante) avec τ = 1 ps. a) Domaine temporel du champ électrique THz. b) Spectre de la puissance THz. Le maximum de chaque courbe est affiché par un cercle. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. 26
2.5 Simulation d'une impulsion THz générée par l'excitation d'une impulsion optique ultra-courte gaussienne de 70 fs à mi-hauteur et centrée à λ_0 = 1028 nm pour différentes valeurs de τ. a) Domaine temporel du champ électrique THz. b) Spectre de la puissance THz. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. 27
2.6 A) Expressions normalisées en fonction du temps de la puissance optique P_{opt}, de la photo-conductivité σ et du champ électrique généré E_{THz} pour t_Δ = 70 fs et a) τ = 1 ps ou b) τ = 10 fs. L'énergie optique normalisée est fixée à $\frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{sat}} = 1$. B) a) Instant t_{THz}^{max} et amplitude E_{THz}^{max} b) en fonction de l'énergie optique normalisée $\frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{sat}}$. 31
2.7 Schéma du montage expérimental pour la génération d'impulsions THz ultra-courtes. 32
2.8 a) Profil spatial du faisceau optique. b) Spectre de l'impulsion optique. 32
2.9 a) Structure schématique de l'antenne large ouverture. b) Vue au microscope de l'antenne dipôle utilisée pour la détection du signal THz. c) Structure schématique de l'antenne dipôle. 33
2.10 Mesures du courant moyen généré au sein de l'antenne émettrice en fonction a) de la puissance optique et b) de la tension appliquées. Les courbes noires représentent les ajustements théoriques d'un régime saturé par effet d'écran. 34
2.11 a) Champ électrique temporel et b) puissance spectrale d'une impulsion THz ultra-courte générée avec une puissance optique de 15 mW et 15 V de tension. Signal obtenu avec l'antenne émettrice dipôle (bleu) ou à petite ouverture (rouge). L'antenne réceptrice est excitée par un faisceau optique de 12 mW. L'encart représente le coefficient normalisé de l'absorption de la vapeur d'eau (unités arbitraires). 36
2.12 Champ électrique THz crête à crête mesuré avec différentes focales utilisées pour focaliser la source optique sur l'antenne photo-conductrice. La tension de polarisation est appliquée à 25 V. 37
2.13 Mesures du champ électrique THz a) crête à crête et b) accumulé en valeur absolue, en fonction de la puissance optique pour différentes tensions de polarisation. Les courbes en tirets noirs représentent le modèle théorique ajusté aux mesures expérimentales. 38
2.14 Mesures du champ électrique THz crête à crête a) en échelle linéaire et b) en échelle log-log, en fonction de la tension pour différentes puissances optiques. Les courbes en pointillés et en tirets modélisent la pente ajustée aux mesures expérimentales, permettant d'obtenir leur degré de non-linéarité, dont la valeur est égale à celle de la pente. 39
2.15 Mesures du courant de l'antenne émettrice en fonction de la tension pour différentes puissances optiques. Les courbes en pointillés représentent les ajustements théoriques linéaires pour chaque loi de puissance. 39

3.1 Schéma illustratif de l'étirement d'une impulsion optique par l'introduction d'une phase spectrale d'ordre 2, ainsi que l'illustration de deux impulsions jumelles étirées temporellement avec un retard relatif Δ_t. La différence ω entre la fréquence instantanée des deux impulsions optique ω_1 et ω_2 résulte en un battement optique constant à la fréquence THz. 53
3.2 Schéma de la structure d'un réseau de Bragg volumique. Le rayonnement incident est réfléchi à différentes profondeurs de propagation au sein du VBG en fonction de la longueur d'onde. 54

3.3 Schéma de la structure d'un réseau dispersif. 54
3.4 Montage en configuration 4f (4 focales) composé de deux réseaux dispersifs, de deux lentilles focales et d'un modulateur à cristaux liquides (LC-SLM). Le LC-SLM, dont la structure moléculaire est paramétrée par un champ électrique de polarisation $\vec{E}_b$, est placé au plan de Fourier pour agir en tant que masque spectral sur l'impulsion optique. 55
3.5 Schéma explicatif d'un AOPDF 55
3.6 Schéma illustratif du montage expérimental avec l'ajout d'un module sous deux variantes possibles a. et b. permettant la génération THz par photo-mélange. 56
3.7 a) Schéma illustrant l'échantillonnage d'une impulsion chirpée par une impulsion ultra-courte. b) Spectre optique via interférométrie de l'impulsion optique chirpée par l'impulsion optique ultra-courte. La longueur d'onde échantillonnée est ici environ égale à 1034 nm, représentée par la modulation centrale des interférences pompe - sonde. 57
3.8 Distribution temporelle des fréquences instantanées au sein d'une impulsion optique étirée respectivement d'un côté (a) et de l'autre (b) du VBG. 58
3.9 Spectre d'une impulsion optique étirée respectivement d'un côté (a) et de l'autre (b) du VBG. 58
3.10 Simulation temporelle de la densité de porteurs de charge $n(t)$ et de ses composantes lente $n_{\mathrm{DC}}(t)$ et modulée $n_{mod}(t)$. Les deux courbes en pointillés représentent $n(t)$ dans le cas d'une excitation par une seule des deux impulsions. a) Simulation avec un retard relatif $\Delta_t = 8.8$ ps, correspondant à un battement d'environ 0.4 THz. b) Simulation avec $\Delta_t = 88$ ps, correspondant à environ 4 THz. Les paramètres de simulations sont $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 61
3.11 a) Simulation temporelle du champ électrique normalisé $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}(t)$ (bleu) et de sa composante à variation lente $\mathrm{E}_{\mathrm{DC}}(t)$ pour un retard relatif $\Delta_t = 8.8$ ps. b) Spectre normalisé correspondant au champ électrique $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}$. Les paramètres de simulation sont $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 62
3.12 Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange quasi-continu pour a) différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique avant étirement temporel avec $\tau = 1$ ps. b) différents temps de vie τ des porteurs de charge avec $t_\Delta = 70$ fs. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $\Delta_t = 12$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 63
3.13 Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange quasi-continu pour a) retards relatifs Δ_t entre les deux impulsions optiques avec $\phi'' = 3.5$ ps^2. b) différentes phases spectrales d'ordre deux ϕ'' avec $\Delta_t = 12$ ps. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs et $\tau = 1$ ps. Les courbes en tirets représentent respectivement le filtre $\frac{\omega}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}$ (bleu) et le coefficient $e^{-2\alpha t_d^2}$ (rouge). 63
3.14 Simulation de la variation du facteur de saturation $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ en fonction de la pulsation du battement optique (a) et du temps de vie des porteurs de charge (b). Les valeurs sont respectivement fixées à $\tau = 1$ ps (a) et $f = \frac{\omega}{2\pi} = 0.5$ THz (b), avec $t_\Delta = 70$ fs, et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 65
3.15 Schéma du module expérimental pour la mise en place d'une double impulsion optique linéairement chirpée, avec l'introduction d'un retard relatif modulable entre les deux impulsions. 66
3.16 a) Signal THz mesuré, généré par l'antenne dipôle avec (bleu) et sans (rouge) filtre passe-bande pour un retard relatif correspondant à une fréquence de battement $f = 0.33$ THz. b) Spectre de l'impulsion optique après passage au travers du filtre passe-bande de 10 nm. Le spectre initial de l'impulsion est présenté en Figure 2.8.b. 67

3.17 Émission THz via l'antenne dipôle. a) Forme temporelle normalisée du champ électrique et b) Spectre d'une impulsion THz ultra-courte (rouge) et d'une impulsion THz quasi-continue générée à une fréquence de 0.33 THz (bleu). 68

3.18 a) Signal THz quasi-continu généré par antenne dipôle pour différentes fréquences de battement. b) Maxima du spectre quasi-continu (bleu) pour différentes fréquences de battement optique, allant de 0.1 THz à 2 THz. En rouge le spectre d'une impulsion THz courte. 68

3.19 Spectre mesuré du signal THz émis par photo-mélange quasi-continu sur antenne dipôle (bleu) ou sur antenne à petite ouverture (rouge). Le niveau de bruit est illustré en tirets. 69

3.20 a) Mesure du courant moyen généré dans l'antenne émettrice en fonction de la puissance optique incidente pour différentes tensions (5 V, 15 V et 25 V), avec une excitation par impulsion ultra-courte (rouge, SP) ou par photo-mélange d'impulsions avec chirps identiques (bleu, PM). b) Mesure du courant moyen en fonction de la tension pour différentes valeurs de puissance optique (5 mW, 15 mW et 25 mW). 69

3.21 a) Mesure de l'amplitude crête à crête maximale du champ électrique THz émis en fonction de la puissance optique, avec une excitation par impulsion ultra-courte (rouge, SP) ou par photo-mélange d'impulsions avec chirps identiques (bleu, PM). b) Mesure de l'énergie d'une impulsion THz émise en fonction de la puissance optique. 70

3.22 Schéma de la distribution temporelle des fréquences pour deux impulsions optiques à chirps linéaires opposées. $\omega(t) = \omega_2(t) - \omega_1(t)$ représente la fréquence du battement optique généré par l'interaction entre les deux impulsions optiques. 71

3.23 a) Simulation numérique $n_{num}(t)$(bleu) et approximation analytique $n_{\sim}(t)$ (rouge) de l'évolution temporelle de la densité de porteurs de charge n en configuration de photo-mélange à spectre large. les paramètres sont fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. b) Simulation pour $\tau = 3$ ps (haut) et pour $\tau = 0.1$ ps (bas). . 74

3.24 Simulation d'une impulsion THz émise par photo-mélange à spectre large. a) Signal temporel et b) son spectrogramme calculé avec une porte glissante de 4 ps de durée. c) Spectre de l'impulsion complète (bleu) et de la deuxième moitié temporelle du signal (noir). Les paramètres sont fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 50$ fs, $\tau = 1$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 75

3.25 Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange à spectre large pour a) différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique avant étirement temporel avec $\tau = 1$ ps. b) différents temps de recombinaison τ des porteurs de charge avec $t_\Delta = 70$ fs. Les courbes en couleur représentent l'enveloppe du spectre modulé (gris) pour chaque paramètre. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $\Delta_t = 0$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 76

3.26 Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange à spectre large pour différentes phases spectrales d'ordre deux ϕ''. Les courbes en couleur représentent l'enveloppe du spectre modulé (gris) pour chaque paramètre. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\Delta_t = 0$ ps et $\tau = 1$ ps. 76

3.27 Coefficient $C^{sat}_{\mathrm{PM}opp}$ (bleu) et $C^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ (rouge) en fonction a) du temps de recombinaison τ. b) de la phase d'ordre deux ϕ''. Les valeurs sont respectivement fixées à $\phi'' = 3.5$ ps^2 (a) et à $\tau = 1$ ps (b), avec $t_\Delta = 70$ fs, et $f = \frac{\omega}{2\pi} = 0.5$ THz pour la fréquence émise en photo-mélange quasi-continu. 77

3.28 Schéma du module expérimental pour la mise en place d'une double impulsion optique linéairement chirpée, les deux impulsions présentant un chirp opposé. 78

3.29 A) Signal mesuré d'une impulsion THz émise par photo-mélange à spectre large sur l'antenne dipôle pour une puissance optique de 15 mW et une tension de 25 V. a) Signal temporel. b) Spectrogramme de l'impulsion. c) Spectre de l'impulsion. Les tirets en rouge illustrent la pente de 90 GHz/ps. B) Impulsion THz simulée avec l'introduction du spectre optique expérimental et d'un bruit simulé ajusté à -20 dB, les autres paramètres étant fixés tels que $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, $\Delta_t = 0$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. 79

3.30 Mesure respectivement de la première (bleu) et deuxième (rouge) moitié temporelle du signal THz émis par photo-mélange à spectre large. a) Spectre des deux moitiés temporelles et de l'impulsion complète (noir). b) Signal temporel. 79

3.31 a) Signal THz émis par l'antenne à petite ouverture via photo-mélange à spectre large pour une puissance optique de 15 mW et une tension de 25 V. (haut) Champ électrique temporel. (bas) Spectrogramme numérique correspondant. b) Spectre THz de chaque moitié temporelle du signal émis par l'antenne dipôle (bleu) ou par l'antenne à petite ouverture (rouge) 80

3.32 a) Mesure du courant moyen généré dans l'antenne émettrice en fonction de la puissance optique incidente pour différentes tensions (5 V, 15 V et 25 V), avec une excitation par photo-mélange quasi-continu (rouge, PMcw) ou à spectre large (bleu, PMopp). b) Mesure du courant moyen en fonction de la tension pour différentes valeurs de puissance optique (5 mW, 15 mW et 25 mW). 81

3.33 a) Mesure de l'amplitude crête à crête maximale du champ électrique THz émis en fonction de la puissance optique, avec une excitation par photo-mélange quasi-continu (rouge, PMcw) ou à spectre large (bleu, PMopp). b) Mesures normalisées. La génération THz par excitation ultra-courte est représentée en noir (SP). 81

4.1 Mesure de l'impulsion THz ultra-courte après être passée au travers d'un échantillon de téflon (bleu) ou de Silicium (rouge) ainsi que celle de référence (jaune). a) Signal temporel. b) Spectre du signal. 89

4.2 Atténuation du spectre en fonction de l'échantillon mesuré. 89

4.3 A) Phase spectrale de la mesure THz du téflon sur l'intervalle $[-\pi;\pi[$, a) sans ou b) avec ajout de points numériques de valeur nulle à la fin du signal temporel. B) Phase spectrale dépliée des trois mesures THz (en valeur absolue), avec (ligne) ou sans (tirets) ajout de points numériques à la fin du signal temporel. La phase absolue ϕ_0 a été soustraite des courbes. 90

4.4 Indice de réfraction en fonction de la fréquence. Mesure via le montage expérimental en impulsion ultra-courte (ligne) ou via le TeraPulse Lx (tirets). 90

4.5 Indice de réfraction en fonction de la fréquence pour différentes mesures successives de l'échantillon de Silicium avec une impulsion ultra-courte. La courbe en noir représente la mesure TeraPulse Lx de l'indice de réfraction. 91

4.6 Mesure de l'impulsion THz quasi-continue après être passée (rouge) ou non (jaune) au travers d'un échantillon de Silicium. a) Signal temporel. b) Spectres correspondants et celui de la mesure THz de l'échantillon de téflon (bleu). 92

4.7 a) Signal temporel de l'impulsion THz en configuration de photo-mélange quasi-continu pour 52 mesures successives (du bleu au rouge). (bas) Intervalle temporel de [0;40] ps. (haut) Zoom sur l'intervalle temporel de [10;20] ps. b) Phase spectrale du signal THz à la fréquence centrale (0.33 THz) en fonction du numéro de mesure. 93

4.8 a) Enveloppe temporelle du champ électrique pour 10 mesures successives avec échantillon de Silicium (rouge et bleu) ou sans échantillon (vert et cyan). b) Indice de réfraction obtenu en fonction du numéro de la paire de mesures. Les seuils en tirets (SP) représentent la mesure de l'indice moyen dans la configuration en ultra-court. 93

4.9 Mesure de l'impulsion THz de longue durée à spectre large après être passée au travers d'un échantillon de téflon (bleu) ou de Silicium (rouge) ainsi que la mesure de référence (jaune). a) Signal temporel. b) Spectre de la deuxième moitié temporelle du signal. Les modulations encore présentes sont dues à la difficulté pour déterminer précisément le centre de l'impulsion. 94
4.10 a) Phase spectrale dépliée de la mesure THz de référence (jaune) et des deux échantillons respectivement de téflon (bleu) et de Silicium (rouge). Les droites en pointillés représentent un modèle linéaire ajusté aux mesures. b) Indice de réfraction en fonction de la fréquence pour différentes mesures successives de l'échantillon de Silicium avec une impulsion THz de longue durée à spectre large. La courbe en tirets représente la mesure de l'indice de réfraction dans la configuration en ultra-court. . 94
4.11 a) Indice de réfraction en fonction de la fréquence du Silicium (rouge) et du téflon (bleu) par mesures d'impulsions THz de longue durée à spectre large avec moyenne du signal temporel. Indice obtenu via l'utilisation de l'impulsion complète (tirets) ou de sa deuxième moitié temporelle (ligne). Indice de référence par mesure d'impulsions THz ultra-courtes (jaune et vert, SP). b) Indice de réfraction moyen obtenu par détermination du retard relatif pour différentes mesures successives et différentes configurations THz : émission par photo-mélange à spectre large (ligne, PMopp) ou à spectre fin (tirets, PMcw) ; émission par excitation ultra-courte (pointillés). 95
4.12 Schéma illustratif de la détection homodyne d'une onde continue THz. Le retard relatif pompe - sonde Δt définit le déphasage entre les deux ondes optique et THz, ce qui génère un photo-courant dans l'antenne réceptrice avec des interférences constructives ou destructives en fonction de Δt. 97
4.13 Mesure de l'impulsion THz générée par photo-mélange quasi-continu, et détectée par échantillonnage ultra-court (jaune) ou homodyne (bleu). a) Signal temporel. b) Spectre du signal. 99
4.14 a) Signal temporel de l'impulsion THz par détection homodyne en configuration de photo-mélange quasi-continu pour 10 mesures successives (du bleu au rouge). b) Spectres correspondants et moyenne des 10 mesures (jaune). 100
4.15 A) Indice de réfraction pour différentes mesures successives en configuration de photo-mélange quasi-continu et détection homodyne, avec corrélation croisée de a) l'enveloppe, b) le champ électrique. L'indice moyen mesuré dans la configuration en ultra-court est représenté en tirets (SP). B) Corrélation croisée normalisée du champ électrique entre la mesure de référence et celle de l'échantillon (bleu) et ajustement d'une courbe théorique gaussienne (rouge). 101

Remerciements

Je souhaiterais tout d'abord remercier l'ensemble des membres du jury, Jean-François Roux, Gaël Mouret ainsi que Emilien Peytavit, pour leur présence à la soutenance de cette thèse et pour avoir évalué les travaux que j'ai réalisés durant ces trois dernières années.

Cette thèse n'aurait pu se faire sans mes directeurs de thèse, Damien Bigourd et Patrick Mounaix, que je remercie grandement pour la confiance qu'ils m'ont accordé pour mener ce doctorat jusqu'à son terme, ainsi que pour toute l'aide qu'ils m'ont apporté au fil de son avancement. Je tiens également à remercier particulièrement Frédéric Fauquet pour son support sur tout le travail expérimental, ainsi que les autres membres de l'équipe, Frédéric Darracq et Jean-Paul Guillet, de même que les membres du comité de suivi individuel, Etienne Brasselet et Nicolas Dubreuil, pour les discussions et conseils scientifiques échangés.

Ces trois années ont aussi été l'opportunité de rencontrer de nombreuses personnes que je souhaiterais remercier pour les moments passées ensemble et pour leur soutien, en particulier Barnabé, Djeber, Yifan, Lucas, Arthur, Valentin M., Valentin T., Maxime, Bruno, Ilyes, Pitambar, Dyune, Peyliang, Clément, Rémi, Samir, Moussa, Amine, Marina, Houssem, et tant d'autres. Toutes ces personnes ont permis l'existence d'un environnement de travail agréable et convivial, et ont eu ensemble un rôle primordial dans le bon déroulement de ce projet.

Enfin, je remercie tout le personnel du laboratoire, notamment, Claudine, Fabienne, Fanny, Serge et l'équipe informatique pour le support technique et administratif.

Introduction générale

Durant les dernières décennies, le domaine des ondes térahertz (THz), faisant office de transition entre fréquences micro-ondes et optiques, a constitué un champ de recherche scientifique majeur pour le développement de nouvelles technologies aux applications diverses, telles que les télécommunications, l'imagerie 3D non destructive et la spectroscopie. L'intérêt seulement récent pour ces fréquences aux propriétés uniques est dû à leur caractère intermédiaire entre le monde électronique et le monde photonique, ce qui a empêché leur étude, jusqu'à la mise au point d'émetteurs et de détecteurs qui ont repoussé les limites spectrales usuelles pour atteindre la gamme THz. Les antennes photo-conductrices sont aujourd'hui les sources THz les plus documentées et les plus commercialisées grâce à leur bonne efficacité de conversion optique - THz ainsi que leur haut potentiel d'intégration dans des systèmes compacts.

Malgré la maturité de cette source THz, il reste une forte activité de recherche sur son optimisation, notamment sur la mise en place de méthodes permettant d'apporter des solutions à la saturation de l'émission THz à faible puissance optique des antennes photo-conductrices, et ainsi d'obtenir des puissances THz émises plus conséquentes. Notamment, les études visant à utiliser les antennes photo-conductrices sous forme matricielle, permettraient d'accumuler la puissance d'émission individuelle des antennes et de compenser les restrictions imposées par la saturation optique.

La réalisation d'une telle méthode de génération apporte plusieurs difficultés techniques. Premièrement, l'excitation des différentes antennes doit se faire simultanément, ce qui nécessite une maîtrise complète de l'alignement optique, en particulier du chemin optique après séparation de la source principale en plusieurs canaux (chacun relié à une antenne différente). Deuxièmement, la puissance optique nécessaire à l'alimentation de l'ensemble des sources THz résulte en une source optique de forte puissance en entrée du système. Pour des matrices de grande envergure, le risque d'endommagement des optiques en amont de la séparation du faisceau devient non négligeable.

Dans le cadre de ces travaux de recherche, nous apportons une solution à l'utilisation de fortes puissances optiques en proposant l'utilisation d'une nouvelle configuration d'excitation optique pour la génération d'impulsions THz via des antennes photo-conductrices. Le montage expérimental est réalisé avec pour source optique un laser dopé à l'ion Ytterbium centré à 1030 nm, longueur d'onde permettant l'utilisation de fortes puissances moyennes, pour pouvoir mettre en place à terme un système d'antenne multiplexé pour la génération THz à forte puissance.

Nous commencerons par introduire une approche générale sur le domaine THz, puis nous décrirons en seconde partie le fonctionnement théorique des antennes photo-conductrices, avant de présenter les résultats expérimentaux obtenus dans un régime d'excitation par impulsions optiques ultra-courtes, configuration pour laquelle les antennes sont les plus adaptées. Par la suite, nous analyserons les limitations inhérentes à leur utilisation dans ce régime, notamment la puissance crête extrême des impulsions ultra-courtes, facteur clef des risques d'endommagement optique.

La réduction de cette puissance crête est ensuite réalisée par étirement temporel des impulsions optiques. Cependant, la durée ultra-courte de l'excitation optique étant nécessaire pour la génération THz, cela nous amène en troisième partie à la mise en œuvre d'un nouveau régime d'excitation pour répondre à ces contraintes. Ce régime est basé sur le processus de photomélange, généralement employé en régime continu, mais adapté ici à des impulsions optiques étirées temporellement. Deux configurations sont étudiées, l'une permettant la génération d'une impulsion THz quasi-continue et quasi-monochromatique, et l'autre permettant la génération d'une impulsion THz toujours de longue durée, mais présentant un spectre large.

En quatrième et dernière partie, les différentes configurations d'excitation étudiées sont mises à l'épreuve via la spectroscopie d'échantillons solides, du téflon et du silicium, afin de valider ou de comprendre les limites de leur potentiel dans une application concrète. Enfin, la détection homodyne en photo-mélange est utilisée comme méthode alternative pour résoudre un des défis techniques rencontrés concernant la phase absolue du signal.

Chapitre 1

Le domaine térahertz : Sources et applications

1.1 Définition

Le champ des fréquences électromagnétiques du domaine Térahertz (THz) fait office de transition entre deux autres domaines, celui des micro-ondes dont les fréquences se situent en dessous de la centaine de GHz, et l'optique débutant vers la dizaine de THz (Figure 1.1).

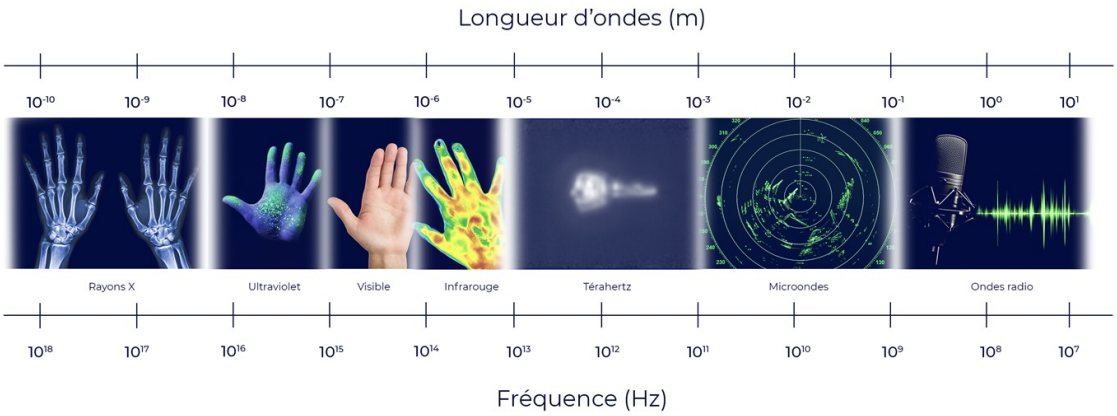


FIGURE 1.1 – Illustration des différents domaines de fréquence [1].

Longtemps appelées gap THz dû à la difficulté à générer et à mesurer ces fréquences, l'étude des ondes THz a réellement commencé à la fin du siècle dernier où la miniaturisation des sources et l'élaboration de nouvelles méthodes (THz-TDS, QCLs, etc.) ont facilité l'émission et l'utilisation de ces fréquences [2]. On peut citer les premières recherches sur ce domaine en 1911 par Heinrich Rubens et Otto von Baeyer [3]. Il aura ensuite fallu attendre les années 80s pour voir apparaître un réel intérêt pour le domaine THz de la part du monde scientifique [4–6]. L'introduction de techniques cohérentes à très haute résolution temporelle (spectroscopie THz dans le domaine temporel) ainsi que les avancées en photonique et électronique ont fortement accéléré la recherche fondamentale et appliquée dans ce domaine.

Les limites basse et haute du domaine THz ne sont pas clairement définies et ne font pas l'unanimité dans la littérature scientifique. La gamme la plus couramment citée est située entre 0.1 THz et 10 THz. Toutefois, plus que la plage de fréquence exacte, c'est l'utilisation de technologies et applications inédites qui ont apporté le besoin d'une catégorie nouvelle.

Le caractère transitoire entre électronique et optique octroie aux fréquences THz des particu-

larités physiques uniques, avec un fort potentiel dans les télécommunications et l'imagerie non destructive [7]. Leur fort pouvoir pénétrant leur permet une transmission élevée dans les matériaux non conducteurs tels que les vêtements, le bois ou les différents polymères. En contrepartie, les ondes THz sont réfléchies par les métaux et sont absorbées par l'eau, ce qui inclut également les matières organiques et l'atmosphère. Cette forte absorption restreint ainsi les applications en télécommunication aux petites distances.

Ces hautes fréquences présentent en échange un grand débit d'information, permettant de répondre à une demande toujours plus forte sur le transfert de donnée à grande vitesse, tout en offrant une plage de fréquence encore inoccupée. De plus, les ondes THz sont non ionisantes et très peu énergétiques (1 THz $\Leftrightarrow$ 4.1 meV), notablement moins que l'énergie d'activation thermique $k_B T$ à température ambiante ($\simeq$ 25.2 meV à 20 °C). Cela les rend à priori peu nocives, ce qui en fait une très bonne alternative aux rayons X pour les applications en imagerie. L'ensemble de ces atouts leur donnent ainsi un fort intérêt pour leur industrialisation, avec un développement rapide durant ces dernières années dans de nombreux domaines.

1.2 Applications

Les ondes THz ont pu trouver un grand nombre d'applications durant les 20 dernières années, pouvant être décrites en plusieurs secteurs.

La capacité des ondes THz à traverser les tissus montre premièrement un fort potentiel dans le secteur de la sécurité [8, 9], en permettant la détection d'objets dissimulés sous les vêtements, tels que de potentielles armes (Figure 1.2). En effet, cette gamme de fréquence permet de meilleurs contrastes pour la détection de polymères et de céramiques, matériaux difficiles à différencier de la peau dans le cas d'une détection par rayons X. Certains éléments chimiques peuvent aussi être perçus de par leur signature spectrale, et les poudres peuvent être détectées à travers des sachets ou des vêtements [10].

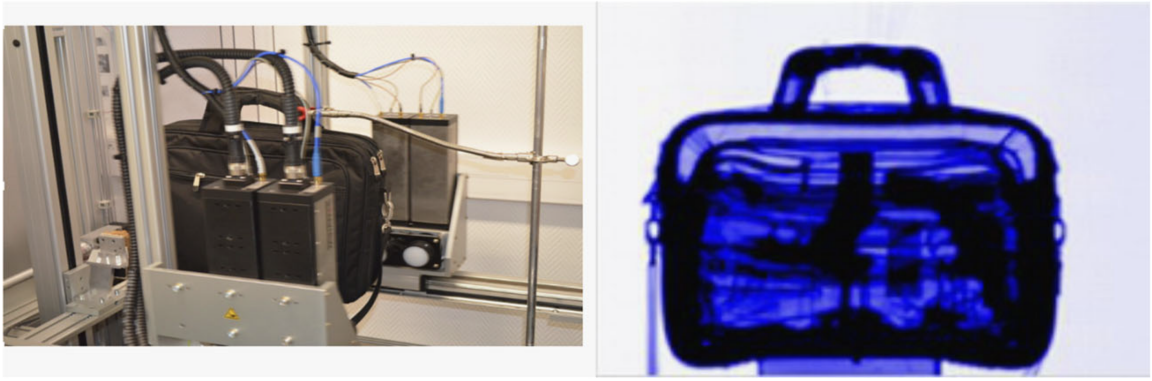


FIGURE 1.2 – Imagerie en transmission à 100 GHz d'un sac contenant deux armes à feu [11].

L'imagerie non destructive permet d'autre part le contrôle qualité industriel, de la structure interne de matériaux multicouches comme les peintures automobiles ou les revêtements de protection pour la détection de potentiels défauts ou pour la mesure de l'épaisseur des couches [12–14]. Les ondes THz trouvent aussi des applications dans le domaine alimentaire, pour la détection de moisissures, de contaminants (pesticides, polluants, etc.) ou encore du taux de sucre ou d'alcool [15].

Également, l'imagerie THz tomographique et la reconstruction 3D apportent des applications

en conservation du patrimoine et en archéologie, permettant par exemple la stratigraphie des peintures pour identifier des restaurations antérieures [16–18], ou encore, l'étude interne d'artefacts, tels que des céramiques, des tissus ou encore des momies [19, 20].

En parallèle, l'utilisation des fréquences THz présente un grand intérêt pour les études médicales et biologiques [21, 22], en particulier grâce à leur caractère non destructif. Entre autres applications, la spectroscopie THz biomoléculaire [23] permet de sonder les modes vibrationnels à basse fréquence (modes collectifs) et les dynamiques intermoléculaires, en particulier les liaisons hydrogène et l'état d'hydratation. Ces phénomènes se retrouvent dans de nombreux processus biologiques, tels que le repliement des protéines ou les changements conformationnels, aidant à la caractérisation, par exemple, des acides nucléiques (ADN/ARN) ou des acides aminés.

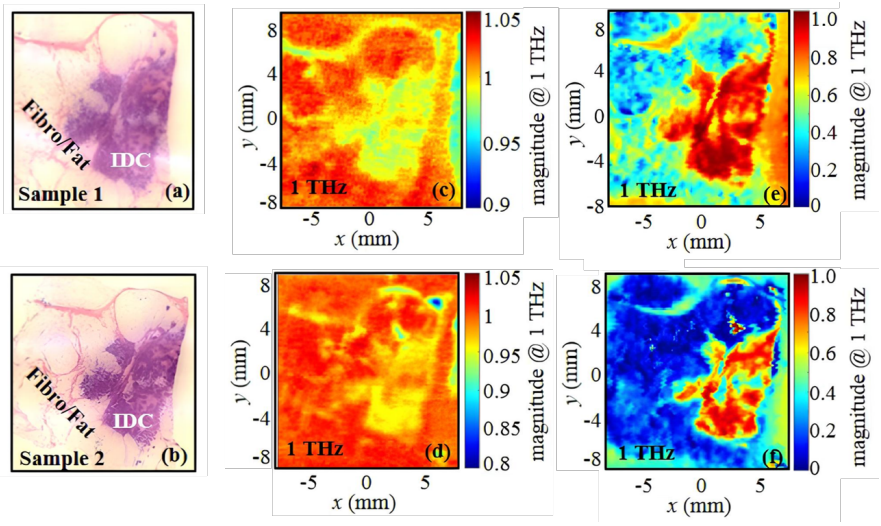


FIGURE 1.3 – Images dans le domaine fréquentiel du carcinome canalaire infiltrant pour deux échantillons (a et b). Amplitude en transmission (c et d) et en réflexion (e et f) à 1 THz de chaque échantillon. [24]

Du côté de la détection in vitro de pathologies [25–27], notamment de néoplasmes pour la reconnaissance de cancers (Figure 1.3), les mesures THz peuvent être réalisées sans nécessiter de marqueur (tel que le fluorophore), grâce à la sensibilité des ondes THz à la teneur en eau des tissus. En revanche, cette forte absorption par l'eau restreint la détection in vivo à des configurations en réflexion sur de faibles profondeurs de pénétration, quelques centaines de micromètres à millimètres selon la fréquence et la configuration instrumentale.

Dans les télécommunications, les ondes THz ouvrent des possibilités vers le transfert de données à très haut débit (centaine de Gbit/s) [28–30]. La haute absorption des fréquences THz dans l'atmosphère limite leur déploiement sur de courtes distances, comme pour le wifi et les communications entre serveurs, voire entre satellites proches. Toutefois, des études sont réalisées visant à compenser cette perte et pour atteindre de plus longues distances [31, 32]. De plus, l'apport d'une gamme de fréquences encore non occupée répond à une demande de plus en plus présente au vu du développement rapide des télécommunications.

Les ondes THz présentent aussi un intérêt dans la recherche scientifique en physique, tel que dans la radioastronomie [33, 34] où ces fréquences donnent accès à l'observation et l'étude de la matière froide de l'univers, notamment les lignes de rotation et transitions faibles de molécules, la signature des poussières froides, les nuages moléculaires et régions de formation d'étoiles. Les instruments THz sont embarqués à haute altitude (télescopes au sol à haute altitude, ballons stratosphériques, plateformes spatiales) pour réaliser les observations, inaccessibles depuis des sites terrestres à basse altitude à cause de l'absorption atmosphérique.

Dans le secteur météorologique, cette absorption atmosphérique permet en échange de compléter les analyses apportées par d'autres techniques déjà existantes [35–37], notamment le profil des paramètres atmosphériques verticaux (humidité, vapeur d'eau) et la détection de certains éléments à l'état de trace (ozone, molécules avec raies dans la gamme THz) pour la modélisation de la troposphère.

Pour la majorité de ces applications, les technologies THz gardent jusqu'à présent un rôle complémentaire aux autres fréquences. Certains défis techniques liés aux caractéristiques THz limitent leur utilisation comme méthode suffisante à elle seule.

Plus précisément, la forte absorption de l'eau dans la gamme THz réduit grandement la profondeur utile en milieux biologiques et aqueux, nécessitant de plus fortes puissances d'émission pour compenser les pertes. De plus, l'atténuation due à la propagation de l'onde, amplifie la nécessité de fortes puissances pour la transmission THz sur de plus longues distances. Enfin, les ondes THz sont très sensibles aux conditions environnementales. L'humidité, la pluie et la suspension de particules affectent les mesures THz, nécessitant une prise en compte de la variabilité atmosphérique pour les télécommunications et mesures à ciel ouvert ou en environnement non contrôlé.

La compensation de ces pertes se fait par la disponibilité de sources puissantes, compactes et à coût raisonnable ainsi que de détecteurs sensibles et rapides, dont le développement reste aujourd'hui compliqué, et subsiste donc comme un frein au déploiement industriel.

1.3 Sources THz

Le plus gros obstacle à l'utilisation des ondes THz est la fabrication de sources fiables et puissantes. Se positionnant à la jonction entre électronique et optique, les sources habituelles de ces deux domaines trouvent leurs limites aux portes des fréquences THz. Malgré cela, un certain nombre de méthodes ont vu le jour durant les 50 dernières années pour atteindre ce gap fréquentiel. Celles-ci sont réparties en plusieurs catégories.

1.3.1 Radiation naturelle

Le phénomène de radiation par un corps noir initialement décrit par Plank produit un rayonnement infrarouge dépendant de la température de la source. On note la luminance L^o du corps noir :

$$L^o(\lambda, T) = \left(\frac{2hc^2}{\lambda^5}\right) \frac{1}{e^{hc/\lambda kT} - 1} \tag{1.1}$$

avec :
- h, la constante de Planck.
- c, la vitesse de la lumière dans le vide.
- k, la constante de Boltzmann.
- f, la fréquence de la radiation électromagnétique.
- T, la température absolue du corps.

L'intensité du rayonnement décroît pour les fréquences atteignant l'infrarouge lointain, jusqu'à des niveaux très faible dans la gamme THz (Figure 1.4). Cependant, la longueur d'onde centrale λ_c émise par le corps noir est inversement proportionnelle à sa température :

$$\lambda_c = \frac{\sigma_w}{T} \tag{1.2}$$

avec σ_w, la constante de Wien.

Ce phénomène permet ainsi certaines analyses THz à très basse température, comme la caractérisation par détection THz de poussières cosmiques à $10-20$ K présentes dans les nuages interstellaires de la voie lactée ou dans les galaxies à sursauts de formation d'étoiles [38].

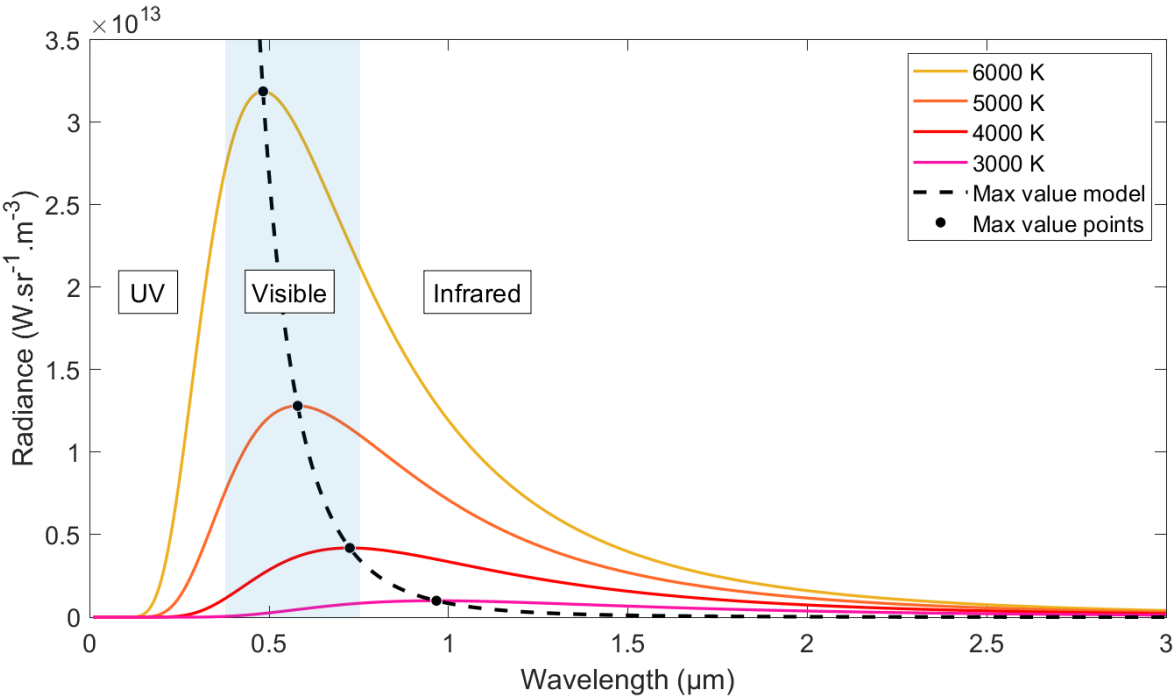


FIGURE 1.4 – Spectre de la luminance par un corps noir pour différentes températures. La courbe en tirets représente la radiance maximale atteinte en fonction de la température du corps, et donc de λ_c.

1.3.2 Antennes photo-conductrices

Les antennes photo-conductrices sont les sources THz les plus communes [39, 40]. Initialement développées par D. H. Auston à partir de 1975 [41], les photo-conducteurs ont rapidement progressé et atteint les fréquences THz au début des années 80s [42–47]. Pour fonctionner, elles nécessitent l'absorption dans un semi-conducteur d'un faisceau optique dont l'intensité varie très rapidement (Figure 1.5). Cela peut être obtenu via une source sous forme d'impulsions ultra-courtes (femtoseconde) ou sous forme d'un battement optique entre deux lasers à ondes continues (processus nommé photo-mélange). Les électrons ainsi excités dans le semi-conducteur sont accélérés par une tension extérieure appliquée sur l'antenne.

Le courant transitoire alors généré produit un champ électrique sous forme d'une onde dont la fréquence est directement liée à la vitesse de variation du courant. Notamment, l'excitation par des impulsions ultra-courtes de l'ordre de la centaine de femtosecondes est convertie en l'émission d'ondes pouvant s'étendre de la centaine de GHz jusqu'à quelques THz, typiquement jusqu'à 6 - 7 THz. Leur fonctionnement ne nécessite pas beaucoup de puissance optique (quelques mW) mais leur saturation apparaît à faible puissance, restreignant l'émission THz aux µW, avec pour record quelques mW pour les plus fortes émissions enregistrées [48]. Du côté signal sur bruit, les dynamiques sont typiquement de l'ordre de 50 - 80 dB, pouvant atteindre jusqu'à plus de 120 dB pour les technologies les plus performantes [49]. Cumulées à un prix de production relativement

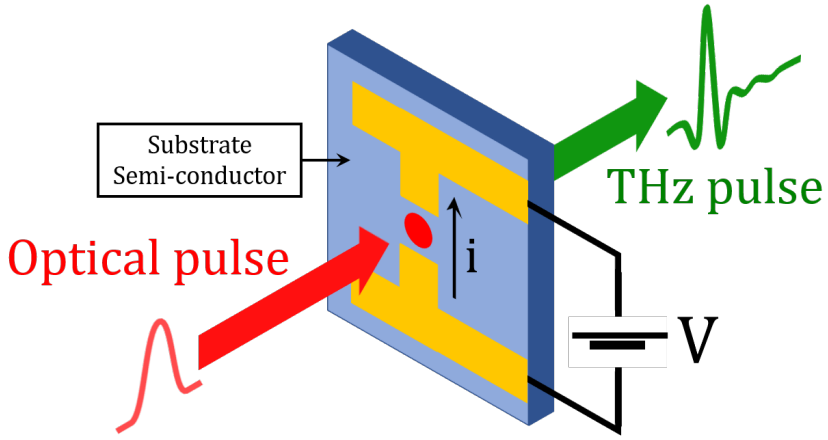


FIGURE 1.5 – schéma illustrant la structure simplifiée d'une antenne photo-conductrice configurée pour l'émission d'une impulsion THz. L'impulsion optique (rouge) excite le semi-conducteur (bleu) entre les dipôles polarisés (jaune) par une tension externe (noir). Les électrons excités et mis en mouvement génèrent un courant transitoire i, ce qui émet une impulsion THz (vert).

faible et à une forte intégrabilité dans des systèmes compacts, ces caractéristiques ont amené ce procédé à se retrouver dans la plupart des études scientifiques et applications industrielles.

1.3.3 Laser à cascade quantique (QCL)

Les QCLs sont parmi les sources avec le plus de potentiel pour de fortes puissances d'émission dans l'infrarouge lointain et le domaine THz [50]. De la catégorie des lasers à semi-conducteur, leur principe repose cependant sur l'émission par cascade quantique initialement proposée par R.F. Kazarinov et R.A. Suris en 1971 [51] mais démontré expérimentalement seulement à partir de 1994 [52].

Les lasers à semi-conducteur (ou diodes laser) fonctionnent grâce à l'émission d'un photon lors de la recombinaison d'une paire électron - trou dans un semi-conducteur. L'énergie, et donc la longueur d'onde, du photon émis dépend directement de la largeur de la bande interdite du semi-conducteur utilisée. Cette dépendance limite l'utilisation des diodes laser à l'infrarouge lointain.

De leur côté, les QCLs se basent sur deux phénomènes de la mécanique quantique, l'effet tunnel et le confinement quantique, afin de produire des transitions inter sous-bande au sein de la bande de conduction (Figure 1.6). Une structure multi-couche du semi-conducteur est constituée de puits et de barrières quantiques pour piéger les électrons dans certains états énergétiques. En parallèle, un champ électrique appliqué sur le semi-conducteur permet aux électrons de transiter au travers d'une barrière et d'arriver dans un autre puits équivalent à un état de plus faible énergie. Cet état provoque l'émission d'un photon par désexcitation de l'électron.

En plus, de par la composition du matériau, l'énergie de transition est fixée par la largeur des puits/barrières. En ajustant ce paramètre, il est possible de régler la longueur d'onde émise par le laser sur une grande variété spectrale sans avoir besoin de changer de matériau. Il est alors possible de générer des longueurs d'onde sur l'ensemble de l'infrarouge lointain, atteignant une large plage du domaine THz.

Afin de maximiser le rendement du QCL, celui-ci est constitué d'une multitude de puits quantiques. Une fois l'électron relaxé sur la sous-bande de plus basse énergie, il traverse l'interstice entre deux puits quantiques par effet tunnel, lui permettant à nouveau une désexcitation. Un

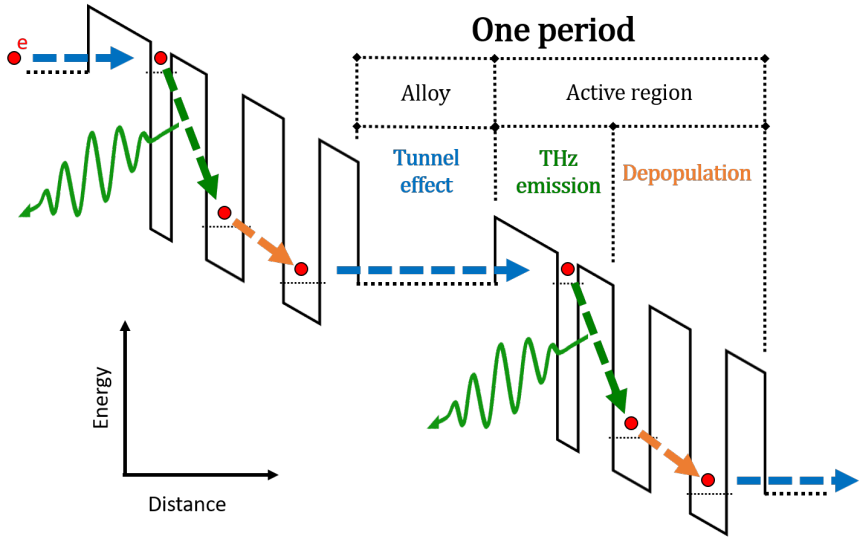


FIGURE 1.6 – Schéma simplifié du principe de fonctionnement d'un QCL. L'électron (rouge) est amené par effet tunnel (bleu) à la sous-bande de haute énergie d'un puits quantique. Il émet alors une onde (vert) en transitionnant vers une sous-bande de plus basse énergie. Une deuxième transition est rapidement réalisée vers une sous-couche légèrement plus basse afin de dépeupler la sous-couche précédente et de maintenir l'état énergétique nécessaire à l'émission d'une même fréquence. Enfin, un champ électrique force l'électron par effet tunnel vers un autre puits dont la sous-couche de plus haute énergie est égale au niveau énergétique de l'électron, permettant le recommencement du cycle.

même électron peut descendre plusieurs états successifs pour émettre à lui seul plusieurs photons et ainsi obtenir un rendement supérieur à 1, ce qui résulte en une plus haute puissance de sortie. C'est ce principe qui donne son nom de « cascade » au laser.

Bien qu'efficace, cette source nécessite actuellement un refroidissement cryogénique pour son bon fonctionnement dans les fréquences THz, restreignant son utilisation à plus large échelle.

1.3.4 Rectification optique

La rectification optique consiste à générer des fréquences sous-harmoniques par le biais d'effets non linéaires entre une impulsion optique ultra-courte et un cristal [53] ou un semi-conducteur [54].

Durant l'interaction avec un cristal, le champ électrique optique induit une oscillation des électrons dans le cristal. À faible puissance optique, cette oscillation est symétrique par rapport à son noyau. La fréquence d'oscillation est ainsi contrôlée par celle de l'onde optique et on retrouve un régime linéaire. En amplifiant la puissance optique, les électrons se retrouvent légèrement déplacés par le fort champ électrique. Cette variation lente de leur position crée une asymétrie produisant l'émission d'une onde à fréquence plus lente, pouvant atteindre la gamme THz. Ce procédé passif purement optique est caractérisé par un spectre présentant une grande largeur de bande ainsi qu'une grande qualité spectrale (absence d'artefacts apportés par la source) du signal. En contrepartie, la génération THz par rectification optique nécessite un laser femtoseconde puissant et résulte en un faible rendement de conversion.

Bien que pouvant provoquer les mêmes phénomènes que dans un cristal, la rectification optique dans un semi-conducteur peut toutefois se passer différemment. Comme pour les antennes photo-conductrices, la source optique vient générer des électrons libres dans le semi-conducteur. Cependant, à forte puissance optique, le champ électrique permettant l'accélération de ces élec-

trons est dans ce cas photo-induit, généré par des phénomènes comme l'effet photo-Dember [55–57]. Bien que permettant une génération THz souvent plus intense, la plus grande complexité des phénomènes intervenants et la plus grande inhomogénéité des semi-conducteurs peuvent complexifier la forme du spectre.

1.3.5 Autres sources

D'autres formes de sources THz ont pu être étudiées, mais leur attrait se retrouve plus limité par rapport à celles précédemment citées. C'est le cas notamment des diodes Schottky [58], dont l'efficacité en régime continu est intéressante, mais qui ne sont pas adaptées à un régime impulsionnel. D'autres sources, telles que la génération par plasma [59, 60], provoquent un apport de bruit important, les rendant peu fiables pour des applications nécessitant une haute reproductibilité. Cette dernière méthode permet néanmoins la génération de champs THz intenses, avec des largeurs pouvant atteindre plus de 100 THz [61].

Cette difficulté à obtenir des puissances d'émission THz élevées trouve petit à petit des pistes de solutions. Des études progressent dans l'utilisation simultanée d'antennes photo-conductrices organisées sur une structure matricielle afin d'accumuler leur puissance respective et ainsi d'augmenter le rayonnement total [62–66]. L'optimisation d'une telle configuration demande un contrôle précis sur la cohérence entre les antennes, ainsi qu'une distribution optique et une régulation thermique maîtrisée, tâches encore complexes aujourd'hui.

D'autre part, des avancées sont réalisées sur la conception de QCLs, permettant des usages à température plus élevées [67–69]. Le fonctionnement stable d'un QCL à température ambiante sans nécessiter un refroidissement cryogénique reste cependant encore marginal pour de larges gammes de fréquences.

1.4 Détecteurs THz

Similairement aux sources THz, les détecteurs nécessitent des propriétés spécifiques pour atteindre la gamme des fréquences THz. La détection est actuellement aussi limitée par la faible puissance de rayonnement des sources actuelles, imposant la nécessité de concevoir des détecteurs présentant une grande sensibilité.

1.4.1 Détecteurs pyroélectriques

Les cristaux pyroélectriques [70–72] ont la particularité de modifier temporairement leur polarisation s'ils subissent une variation de leur température. L'absorption d'une onde chauffe localement le matériau, ce qui provoque cette évolution de la polarisation et entraîne alors une montée de la tension qui peut être convertie en courant mesurable. Puisque la conversion repose sur la dérivée de la température, ce type de détecteur nécessite une modulation temporelle du signal et ne peut donc pas être utilisé pour mesurer des rayonnements continus.

Les détecteurs pyroélectriques ont l'avantage de fonctionner à température ambiante, de posséder une rapidité de réponse élevée et d'être faciles à intégrer, ce qui en fait un bon choix pour de nombreuses applications d'imagerie en temps réel. Cependant, ils sont sensibles aux bruits externes. Ils peuvent être utilisés avec une détection synchrone pour améliorer la dynamique du signal, mais restent globalement moins sensibles que la détection par bolomètre.

1.4.2 Bolomètres

Développé en 1878 par Samuel Pierpont Langley pour étudier le rayonnement électromagnétique solaire, le bolomètre [73] fait usage d'un thermomètre pour mesurer l'élévation en température d'un matériau absorbeur suite à la réception d'un rayonnement électromagnétique. Cette méthode de mesure permet de détecter toute sorte de transfert d'énergie, que ce soit par des photons, des particules ionisées ou non, ainsi que toute autre catégorie de radiation absorbable par le matériau choisi.

Les bolomètres peuvent détecter des photons sur une très large gamme spectrale et, lorsqu'ils sont sous refroidissement cryogénique ou implémentés sous forme de détecteurs spécifiques (TES [74, 75], HEB [76], nano-bolomètres [77], etc.), atteignent des sensibilités extrêmes, ce qui en fait les détecteurs de référence pour l'astronomie THz et la métrologie à très faible flux.

En contrepartie, ce type de détecteur présente un temps de retour vers l'état d'équilibre relativement long dû à la caractéristique thermique du processus de détection. Cela implique une forte susceptibilité au bruit de mesure. Un refroidissement cryogénique est donc régulièrement utilisé pour augmenter la sensibilité et réduire le bruit du capteur. De plus, comme pour les détecteurs pyroélectriques, les bolomètres réalisent une mesure incohérente du signal, c'est-à-dire qu'ils ne mesurent que la puissance moyenne du signal, empêchant de retrouver la forme et la phase de son champ électrique.

1.4.3 Caméras à semi-conducteurs ou à graphène

L'utilisation de semi-conducteurs (Si, InSb, InGaAs, etc.) ou de matériaux 2D tels que le graphène pour la conception de caméras THz est en plein développement et présente un fort potentiel [78, 79]. Ces détecteurs promettent une imagerie à température ambiante avec un taux de rafraîchissement élevé et une excellente intégrabilité.

Le graphène présente une réponse intrinsèquement ultra-rapide (de l'ordre de la picoseconde) [80, 81] et son utilisation dans des architectures de transistor FET (Field-Effect transistor) ou photo-thermoélectriques [82] peuvent donner des détecteurs ultra-rapides. Les caméras basées sur des semi-conducteurs [83, 84] visent quant à elles plutôt des FPAs (Focal Plane Array) robustes à des cadences allant du Hz au kHz.

Ce fort potentiel d'imagerie ultra-rapide reste actuellement limité à des démonstrations sur pixel unique, la mise en œuvre de matrices de récepteurs étant encore un défi. Cette technologie récente pourrait permettre à l'avenir une détection THz à température ambiante, avec une sensibilité proche des bolomètres sous refroidissement cryogénique.

1.4.4 Spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS)

Pour palier à la restriction sur la résolution temporelle des détecteurs précédemment cités, la spectroscopie dans le domaine temporel (TDS) est utilisée [85–88]. Cette méthode de mesure consiste en l'échantillonnage optique ou photo-conductif du signal THz (générée par une source optique appelée pompe), généralement par une impulsion ultra-courte (appelée sonde) cohérente avec l'onde THz (Figure 1.7). En mesurant le signal produit par l'interaction entre la pompe et la sonde dans un cristal ou sur une antenne photo-conductrice, la puissance THz détectée se limite à la plage temporelle de convolution entre les deux signaux.

Ainsi, l'échantillonnage par une impulsion ultra-courte permet de localiser temporellement la détection à une petite partie du signal THz. Il suffit ensuite de faire évoluer le décalage temporel entre la pompe et la sonde pour mesurer et retracer l'ensemble de la forme THz. De cette

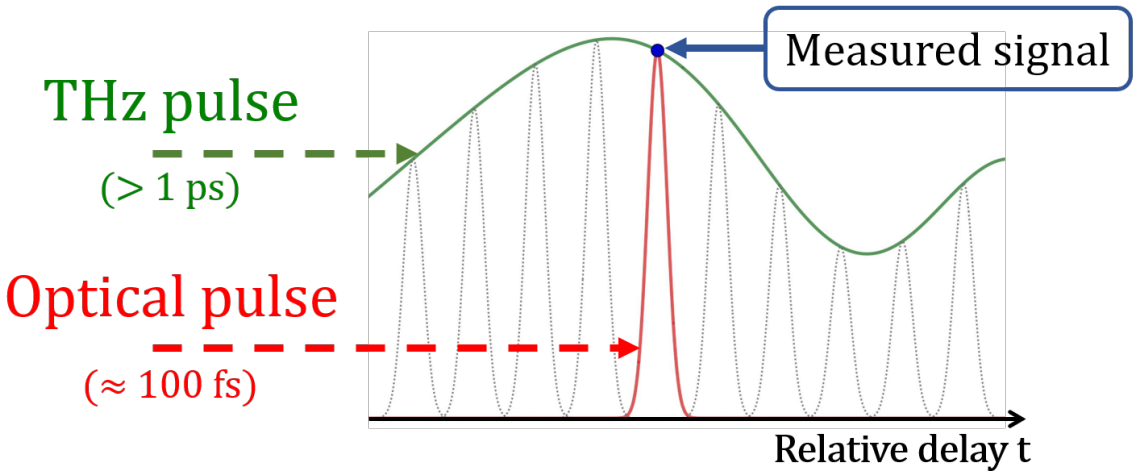


FIGURE 1.7 – Schéma illustrant l'échantillonnage d'une impulsion THz (vert) par une impulsion optique ultra-courte (rouge) pour une mesure de spectroscopie dans le domaine temporel. Les courbes en pointillés représentent l'impulsion optique avec un retard relatif à l'impulsion THz différent.

manière, la détection TDS permet de caractériser pleinement le champ électromagnétique THz, lui accordant un grand intérêt. Toutefois, les signaux THz étant généralement de faible puissance, il est souvent nécessaire de moyenner chaque point de mesure (via une détection synchrone), ce qui peut grandement augmenter le temps d'acquisition complet. Deux catégories de détecteurs TDS sont couramment utilisées.

Détection électro-optique

La détection électro-optique consiste à modifier les propriétés biréfringentes d'un cristal électro-optique (ZnTe, GaP ou $LiNbO_3$) par l'interaction d'une onde THz via l'effet Pockels [89–91]. Ce changement d'indice temporaire impacte directement un signal optique (sonde) qui se propagerait au même moment, permettant de transcrire proportionnellement l'information du champ électrique THz dans le signal optique. Cette information peut ensuite être mesurée par la détection de la polarisation du faisceau optique via un polariseur croisé ou via un dispositif combinant une lame quart d'onde et un polariseur. Cette méthode offre une sensibilité à un large spectre allant jusqu'à plusieurs THz et une réponse instantanée.

Antennes photo-conductrices

Un des avantages des antennes photoconductrices est leur capacité à être utilisées à la fois pour la génération et la détection de signaux THz [92–95]. Dans le dernier cas, l'onde THz réceptionnée applique une tension sur l'antenne, remplaçant celle apportée par un générateur de tension pour la génération d'ondes THz. En parallèle, l'impulsion optique utilisée pour l'excitation des électrons joue le rôle de la sonde. Ainsi, le courant généré et mesuré est proportionnel à la tension appliquée par le champ THz durant l'excitation du semi-conducteur par la sonde optique. Leur sensibilité est meilleure que celle de la détection électro-optique et le chemin optique peut être fibré, ce qui simplifie leur intégration et leur utilisation pour de l'imagerie. Elles sont cependant plus limitées en réponse spectrale et filtrent les basses (< 0.1 THz) et hautes fréquences (> 3 THz).

1.5 Perspectives

Les avancées réalisées et attendues dans les sources (lasers à cascade quantique, photoconducteurs compacts), dans les détecteurs (bolomètres refroidis, THz-TDS) mais aussi dans le traitement du signal (apprentissage automatique [96–98], reconstruction tomographique [98, 99] et hyperspectrale [100], etc.) ont ouvert et devraient continuer d'étendre les usages THz dans le futur proche. Cependant, de nombreux défis restent à résoudre pour repousser les limites actuelles.

Bien qu'étant l'une des technologies les plus matures du domaine THz, les antennes photoconductrices sont encore aujourd'hui un sujet d'intérêt pour le monde scientifique. En effet, leur simplicité d'utilisation, leur compatibilité avec les systèmes opto-électroniques, leur bon rendement optique - THz, leur bonne dynamique du rapport signal sur bruit et enfin leur potentiel d'intégration dans des dispositifs compacts en font le dispositif THz le plus adapté au déploiement industriel. L'optimisation de son fonctionnement, par la conception de nouvelles architectures et de nouveaux matériaux a pour objectif d'améliorer le rendement de conversion de cette technologie, mais aussi d'étendre la plage des fréquences optiques utilisables pour son excitation afin de faciliter et d'élargir son champ d'application.

La description générale de cette technologie THz est présentée dans le chapitre suivant, puis le développement analytique de son fonctionnement pour la conversion optique - THz est réalisé. L'émission et de la détection THz par antenne photo-conductrice est ensuite mise en œuvre expérimentalement pour analyser les limites de cette technologie dans un régime d'excitation par impulsion optique ultra-courte.

1.6 Bibliography

[1] P. Tablot. Terahertz ou rayons X. *INO, https ://www.ino.ca/fr/blogue/terahertz-ou-rayons-x/.* iii, 1

[2] M. F. Kimmitt. Restrahlen to T-rays – 100 years of terahertz radiation. *Journal of Biological Physics*, 29 :77–85, 2003. 1

[3] H. Rubens and O. von Baeyer. Sur des rayons de longueurs d'onde extrêmement grandes émis par la lampe à mercure en quartz. *Radium (Paris)*, 8(4) :139–142, 1911. 1

[4] F. Sizov. Brief history of THz and IR technologies. *Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics*, 22 :67–79, 2019. 1

[5] X.-C. Zhang and J. Xu. *Introduction to THz Wave Photonics*. Springer New York, 2009.

[6] P. H. Siegel. THz technology : An overview. *International Journal of High Speed Electronics and Systems*, 13(02) :351–394, 2003. 1

[7] Y. Huang, Y. Shen, and J. Wang. From terahertz imaging to terahertz wireless communications. *Engineering*, 22 :106–124, 2023. 2

[8] M. C. Kemp, P. F. Taday, B. E. Cole, J. A. Cluff, A. J. Fitzgerald, and W. R. Tribe. Security applications of terahertz technology. In *Terahertz for Military and Security Applications*, volume 5070, pages 44–52. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2003. 2

[9] R. Appleby and H. B. Wallace. Standoff detection of weapons and contraband in the 100 GHz to 1 THz region. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 55(11) :2944–2956, 2007. 2

[10] M. R. Leahy-Hoppa, M. J. Fitch, and R. Osiander. Terahertz spectroscopy techniques for explosives detection. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 395 :247–257, 2009. 2

[11] J.-P. Guillet, B. Recur, L. Frédérique, B. Bousquet, L. Canioni, I. Manek-Hönninger, P. Desbarats, and P. Mounaix. Review of terahertz tomography techniques. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 35 :382–411, 2014. iii, 2

[12] F. Ellrich, M. Bauer, N. Schreiner, A. Keil, T. Pfeiffer, J. Klier, S. Weber, J. Jonuscheit, F. Friederich, and D. Molter. Terahertz quality inspection for automotive and aviation industries. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 41(4) :470–489, 2020. 2

[13] H. Ketelsen, R. Mästle, L. Liebermeister, R. Kohlhaas, and B. Globisch. THz time-domain ellipsometer for material characterization and paint quality control with more than 5 THz bandwidth. *Applied Sciences*, 12(8), 2022.

[14] S. Krimi, J. Klier, J. Jonuscheit, G. von Freymann, R. Urbansky, and R. Beigang. Highly accurate thickness measurement of multi-layered automotive paints using terahertz technology. *Applied Physics Letters*, 109(2) :021105, 2016. 2

[15] A. A. Gowen, C. O'Sullivan, and C. P. O'Donnell. Terahertz time domain spectroscopy and imaging : Emerging techniques for food process monitoring and quality control. *Trends in Food Science & Technology*, 25(1) :40–46, 2012. 2

[16] Q. Cassar, C. Koch-Dandolo, J.-P. Guillet, M. Roux, F. Fauquet, J.-B. Perraud, and P. Mounaix. Characterization of varnish ageing and its consequences on terahertz imagery : Demonstration on a painting presumed of the french renaissance. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 41, 2020. 3

[17] A. Cosentino. Terahertz and cultural heritage science : Examination of art and archaeology. *Technologies*, 4(1), 2016.

[18] E. S. Reyes-Reyes, R. Carriles-Jaimes, E. D'Angelo, S. Nazir, C. L. Koch-Dandolo, F. Kuester, P. U. Jepsen, and E. Castro-Camus. Terahertz time-domain imaging for the examination of gilded wooden artifacts. *Scientific Reports*, 14 :6261, 2024. 3

[19] F. Fauquet, F. Galluzzi, R. Chapoulie, A. Mounier, A. Ben Amara, and P. Mounaix. Terahertz frequency-modulated continuous-wave inspection of an ancient enamel plate. *Sensors*, 25(9), 2025. 3

[20] J. B. Jackson, J. Labaune, R. Bailleul-Lesuer, L. D'Alessandro, A. Whyte, J. W. Bowen, M. Menu, and G. Mourou. Terahertz pulse imaging in archaeology. *Frontiers of Optoelectronics*, 8(1) :81–92, 2015. 3

[21] X. Chen, H. Lindley-Hatcher, R. I. Stantchev, J. Wang, K. Li, A. Hernandez Serrano, Z. D. Taylor, E. Castro-Camus, and E. Pickwell-MacPherson. Terahertz (THz) biophotonics technology : Instrumentation, techniques, and biomedical applications. *Chemical Physics Reviews*, 3(1) :011311, 2022. 3

[22] Y. Zhang, C. Wang, B. Huai, S. Wang, Y. Zhang, D. Wang, L. Rong, and Y. Zheng. Continuous-wave THz imaging for biomedical samples. *Applied Sciences*, 11(1), 2021. 3

[23] Y. Xiang, Z. Xiang, Y. Ke, L. Yueping, L. Yu, F. Weiling, and L. Yang. Biomedical applications of terahertz spectroscopy and imaging. *Trends in Biotechnology*, 34(10) :810–824, 2016. 3

[24] T. Bowman, M. El-Shenawee, and L. K. Campbell. Terahertz transmission vs reflection imaging and model-based characterization for excised breast carcinomas. *Biomedical Optics Express*, 7(9) :3756–3783, 2016. iii, 3

[25] Y. Peng, C. Shi, X. Wu, Y. Zhu, and S. Zhuang. Terahertz imaging and spectroscopy in cancer diagnostics : A technical review. *BME frontiers*, 2020(2547609), 2020. 3

[26] A. I. Nikitkina, P. Bikmulina, E. R. Gafarova, N. V. Kosheleva, Y. M. Efremov, E. A. Bezrukov, D. V. Butnaru, I. N. Dolganova, N. V. Chernomyrdin, O. P. Cherkasova, A. A. Gavdush, and P. S. Timashev. Terahertz radiation and the skin : a review. *Journal of Biomedical Optics*, 26(4) :043005, 2021.

[27] Q. Cassar, S. Caravera, G. MacGrogan, T. Bücher, P. Hillger, U. Pfeiffer, T. Zimmer, J.-P. Guillet, and P. Mounaix. Terahertz refractive index-based morphological dilation for breast carcinoma delineation. *Scientific Reports*, 11 :6457, 2021. 3

[28] T. Kleine-Ostmann and T. Nagatsuma. A review on terahertz communications research. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 32(2) :143–171, 2011. 3

[29] T. Nagatsuma, G. Ducournau, and C. C. Renaud. Advances in terahertz communications accelerated by photonics. *Nature Photonics*, 10 :371–379, 2016.

[30] G. Carpintero, S. Hisatake, D. de Felipe, R. Guzman, T. Nagatsuma, and N. Keil. Wireless data transmission at terahertz carrier waves generated from a hybrid InP-polymer dual tunable DBR laser photonic integrated circuit. *Scientific Reports*, 8, 2018. 3

[31] J. Yu and J. Chen. Research on tbps and kilometer-range transmission of terahertz signals. *Micromachines*, 16(7), 2025. 3

[32] B. Ning, Z. Tian, W. Mei, Z. Chen, C. Han, S. Li, J. Yuan, and R. Zhang. Beamforming technologies for ultra-massive mimo in terahertz communications. *IEEE Open Journal of the Communications Society*, 4 :614–658, 2023. 3

[33] J. Li, X. Deng, Y. Li, J. Hu, W. Miao, C. Lin, J. Jiang, and S. Shi. Terahertz science and technology in astronomy, telecommunications, and biophysics. *Research*, 8 :0586, 2025. 3

[34] G. L. Pilbratt, J. R. Riedinger, T. Passvogel, G. Crone, D. Doyle, U. Gageur, A. M. Heras, C. Jewell, L. Metcalfe, S. Ott, and M. Schmidt. Herschel space observatory - an ESA facility for far-infrared and submillimetre astronomy. *Astronomy & Astrophysics*, 518 :L1, 2010. 3

[35] P. Hargrave, S. A. Withington, S. and. Buehler, L. Kluft, B. Flatman, and P. K. Dongre. THz spectroscopy of the atmosphere for climatology and meteorology applications. In *Next-Generation Spectroscopic Technologies X*, volume 10210, page 1021010. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2017. 4

[36] K. Kikuchi, T. Nishibori, S. Ochiai, H. Ozeki, Y. Irimajiri, Y. Kasai, M. Koike, T. Manabe, K. Mizukoshi, Y. Murayama, T. Nagahama, T. Sano, R. Sato, M. Seta, C. Takahashi, M. Takayanagi, H. Masuko, J. Inatani, M. Suzuki, and M. Shiotani. Overview and early results of the superconducting submillimeter-wave limb-emission sounder (SMILES). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D23), 2010.

[37] Y. Duan, Z. Wang, H. Xu, and W. Wang. Simulation of the spectrum response for the THz atmosphere limb sounder (TALIS). *Sensors*, 20(2), 2020. 4

[38] M. Juvela, J. He, K. Pattle, T. Liu, G. Bendo, D. J. Eden, O. Fehér, F. Michel, G. Fuller, N. Hirano, K.-T. Kim, D. Li, S.-Y. Liu, J. Malinen, D. J. Marshall, D. Paradis, H. Parsons, V.-M. Pelkonen, M. G. Rawlings, I. Ristorcelli, M. R. Samal, K. Tatematsu, M. Thompson, A. Traficante, K. Wang, D. Ward-Thompson, Y. Wu, H.-W. Yi, and H. Yoo. Herschel and SCUBA-2 observations of dust emission in a sample of planck cold clumps. *Astronomy & Astrophysics*, 612(A71), 2018. 5

[39] N. M. Burford and M. O. El-Shenawee. Review of terahertz photoconductive antenna technology. *Optical Engineering*, 56(1) :010901, 2017. 5

[40] P. Rashmi and M. Leeladhar. THz antennas design, developments, challenges, and applications : A review. *International Journal of Communication Systems*, 36(8) :e5474, 2023. 5

[41] D. H. Auston. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon. *Applied Physics Letters*, 26(3) :101–103, 1975. 5

[42] D. H. Auston. Subpicosecond electro-optic shock waves. *Applied Physics Letters*, 43(8) :713–715, 1983. 5

[43] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith. Picosecond photoconducting hertzian dipoles. *Applied Physics Letters*, 45(3) :284–286, 1984.

[44] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman. Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media. *Physical Review Letters*, 53 :1555–1558, 1984.

[45] M. B. Ketchen, D. Grischkowsky, T. C. Chen, C-C. Chi, III Duling, I. N., N. J. Halas, J-M. Halbout, J. A. Kash, and G. P. Li. Generation of subpicosecond electrical pulses on coplanar transmission lines. *Applied Physics Letters*, 48(12) :751–753, 1986.

[46] P.R. Smith, D.H. Auston, and M.C. Nuss. Subpicosecond photoconducting dipole antennas. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(2) :255–260, 1988.

[47] C. Fattinger and D. Grischkowsky. Point source terahertz optics. *Applied Physics Letters*, 53(16) :1480–1482, 1988. 5

[48] N. T. Yardimci, S. Cakmakyapan, S. Hemmati, and M. Jarrahi. A high-power broadband terahertz source enabled by three-dimensional light confinement in a plasmonic nanocavity. *Scientific Reports*, 7 :4166, 2017. 5

[49] A. Dohms, N. Vieweg, S. Breuer, T. Heßelmann, R. Herda, N. Regner, S. Keyvaninia, M. Gruner, L. Liebermeister, M. Schell, and R. B. Kohlhaas. Fiber-coupled THz TDS system with mW-level THz power and up to 137-dB dynamic range. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 14(6) :857–864, 2024. 5

[50] L. Consolino, F. Cappelli, M. Siciliani de Cumis, and P. De Natale. QCL-based frequency metrology from the mid-infrared to the THz range : a review. *Nanophotonics*, 8(2) :181–204, 2019. 6

[51] R. F. Kazarinov and R. A. Suris. Possible amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice. *Soviet Physics Semiconductors*, 5 :707–709, 1971. 6

[52] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho. Quantum cascade laser. *Science*, 264(5158) :553–556, 1994. 6

[53] G. L. Dakovski, B. Kubera, and J. Shan. Localized terahertz generation via optical rectification in ZnTe. *Journal of the Optical Society of America B*, 22(8) :1667–1670, 2005. 7

[54] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston. Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces. *Applied Physics Letters*, 56(11) :1011–1013, 1990. 7

[55] K. Liu, J. Xu, T. Yuan, and X.-C. Zhang. Terahertz radiation from InAs induced by carrier diffusion and drift. *Physical Review B*, 73 :155330, 2006. 8

[56] G. Klatt, F. Hilser, W. Qiao, M. Beck, R. Gebs, A. Bartels, K. Huska, U. Lemmer, G. Bastian, M. B. Johnston, M. Fischer, J. Faist, and T. Dekorsy. Terahertz emission from lateral photo-Dember currents. *Optics Express*, 18(5) :4939–4947, 2010.

[57] V. Apostolopoulos and M. E. Barnes. THz emitters based on the photo-Dember effect. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 47(37) :374002, 2014. 8

[58] W. Kou, S. Liang, H. Zhou, Y. Dong, S. Gong, Z. Yang, and H. Zeng. A review of terahertz sources based on planar Schottky diodes. *Chinese Journal of Electronics*, 31(3) :467–487, 2022. 8

[59] W. Sun, X. Wang, and Y. Zhang. Terahertz generation from laser-induced plasma. *Opto-Electronic Science*, 1(8) :220003, 2022. 8

[60] 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*, 116 :063902, 2016. 8

[61] 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*, 18(22) :23173–23182, 2010. 8

[62] D. R. Bacon, T. B. Gill, M. Rosamond, A. D. Burnett, A. Dunn, L. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, P. Dean, and J. R. Freeman. Photoconductive arrays on insulating substrates for high-field terahertz generation. *Optics Express*, 28(12) :17219–17231, 2020. 8

[63] D. R. Bacon, M. Rosamond, T. Gill, A. D. Burnett, L. Li, J. Cunningham, E. H. Linfield, A. G. Davies, P. Dean, and J. R. Freeman. Photoconductive arrays for high-field terahertz generation. In *2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*, pages 1–2, 2019.

[64] N. V. Zenchenko, D. V. Lavrukhin, R. R. Galiev, A. E. Yachmenev, R. A. Khabibullin, Y. G. Goncharov, I. N. Dolganova, V. N. Kurlov, T. Otsuji, K. I. Zaytsev, and D. S. Ponomarev. Enhanced terahertz emission in a large-area photoconductive antenna through an array of tightly packed sapphire fibers. *Applied Physics Letters*, 124(12) :121107, 2024.

[65] M. Khalili, T. Vogel, Y. Wang, S. Mansourzadeh, A. Singh, S. Winnerl, and C. J. Saraceno. Microstructured large-area photoconductive terahertz emitters driven at high average power. *Optics Express*, 32(13) :22955–22969, 2024.

[66] P.-K. Lu, D. Turan, and M. Jarrahi. High-power terahertz pulse generation from bias-free nanoantennas on graded composition InGaAs structures. *Optics Express*, 30(2) :1584–1598, 2022. 8

[67] M. Razeghi, Y. Bai, and F. Wang. High-power, high-wall-plug-efficiency quantum cascade lasers with high-brightness in continuous wave operation at 3–300µm. *Light : Science & Applications*, 14 :252, 2025. 8

[68] S. Levy, N. Lander Gower, P. Mensz, S. Piperno, G. Bahir, and A. Albo. Practical implementation of m-plane GaN resonant-phonon terahertz quantum cascade laser. *Scientific Reports*, 15 :30797, 2025.

[69] S. G. Razavipour. Wavefunction engineering towards high-performance terahertz quantum cascade lasers. *Scientific Reports*, 15 :29349, 2025. 8

[70] A. R. Melnikov, E. V. Kalneus, Y. V. Getmanov, D. A. Shevchenko, V. V. Gerasimov, O. A. Anisimov, M. V. Fedin, and S. L. Veber. Comparative study of single crystal and polymeric pyroelectric detectors in the 0.9–2.0 THz range using monochromatic laser radiation of the NovoFEL. *Polymers*, 15(20), 2023. 8

[71] J. R. Wubs, U. Macherius, X. Lü, L. Schrottke, M. Budden, J. Kunsch, K.-D. Weltmann, and J.-P. H. van Helden. Performance of a high-speed pyroelectric receiver as cryogen-free detector for terahertz absorption spectroscopy measurements. *Applied Sciences*, 14(10), 2024.

[72] Q. Li, S.-H. Ding, R. Yao, and Q. Wang. Real-time terahertz scanning imaging by use of a pyroelectric array camera and image denoising. *Journal of the Optical Society of America A*, 27(11) :2381–2386, 2010. 8

[73] P. L. Richards. Bolometers for infrared and millimeter waves. *Journal of Applied Physics*, 76(1) :1–24, 1994. 9

[74] P. C. Nagler, J. E. Sadleir, and E. J. Wollack. Transition-edge sensor detectors for the origins space telescope. *Journal of Astronomical Telescopes, Instruments, and Systems*, 7(1) :011005, 2021. 9

[75] M. De Lucia, P. Dal Bo, E. Di Giorgi, T. Lari, C. Puglia, and F. Paolucci. Transition edge sensors : Physics and applications. *Instruments*, 8(4), 2024. 9

[76] G. Torrioli, A. Forrer, M. Beck, P. Carelli, F. Chiarello, J. Faist, A. Gaggero, E. Giovine, F. Martini, U. Senica, R. Leoni, G. Scalari, and S. Cibella. THz optical beat-note detection with a fast superconducting hot electron bolometer operating up to 31 GHz. *Optics Express*, 31(10) :15942–15952, 2023. 9

[77] R. Kokkoniemi, J. Govenius, V. Vesterinen, R. E. Lake, A. M. Gunyhó, K. Y. Tan, S. Simbierowicz, L. Grönberg, J. Lehtinen, M. Prunnila, J. Hassel, A. Lamminen, O.-P. Saira, and M. Möttönen. Nanobolometer with ultralow noise equivalent power. *Communications Physics*, 2 :124, 2019. 9

[78] X. Li, J. Li, Y. Li, A. Ozcan, and M. Jarrahi. High-throughput terahertz imaging : progress and challenges. *Light : Science & Applications*, 12 :233, 2023. 9

[79] Q. Wei, W. Zhu, T. Li, B. Song, C. Shi, Y. Qu, H. Yang, J. Zhang, X. Liu, and H. Liu. Recent advancements in two-dimensional materials for terahertz photodetectors. *Science China Materials*, 68 :933–946, 2025. 9

[80] Q. Zhou, Q. Qiu, and Z. Huang. Graphene-based terahertz optoelectronics. *Optics & Laser Technology*, 157 :108558, 2023. 9

[81] M. D. Thomson, F. Ludwig, J. Holstein, R. Al-Mudhafar, S. Al-Daffaie, and H. G. Roskos. Coherent terahertz detection via ultrafast dynamics of hot Dirac fermions in graphene. *ACS Nano*, 18 :4765–4774, 2024. 9

[82] F. Ludwig, A. Generalov, J. Holstein, A. Murros, K. Viisanen, M. Prunnila, and H. G. Roskos. Terahertz detection with graphene FETs : Photothermoelectric and resistive self-mixing contributions to the detector response. *ACS Applied Electronic Materials*, 6 :2197–2212, 2024. 9

[83] J. Shi, D. Yoo, F. Vidal-Codina, C.-W. Baik, K.-S. Cho, N.-C. Nguyen, H. Utzat, J. Han, A. M. Lindenberg, V. Bulović, M. G. Bawendi, J. Peraire, S.-H. Oh, and K. A. Nelson. A room-temperature polarization-sensitive CMOS terahertz camera based on quantum-dot-enhanced terahertz-to-visible photon upconversion. *Nature Nanotechnology*, 17 :1288–1293, 2022. 9

[84] N. Oda, S. Kurashina, M. Miyoshi, K. Doi, T. Ishi, T. Sudou, T. Morimoto, H. Goto, and T. Sasaki. Microbolometer terahertz focal plane array and camera with improved sensitivity in the sub-terahertz region. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 36 :947–960, 2015. 9

[85] J. Neu and C. A. Schmuttenmaer. Tutorial : An introduction to terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS). *Journal of Applied Physics*, 124(23) :231101, 2018. 9

[86] M. C. Nuss and J. Orenstein. *Terahertz time-domain spectroscopy*, pages 7–50. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1998.

[87] L. Zhang, S. Wang, W. Yang, X. Liu, Z. Wei, A. Abdalla, J. Zhang, X. Kong, and F. Qu. A comprehensive review of terahertz time-domain spectroscopy for agri-food safety detection : Enhanced sensing performance through multidisciplinary technology integration. *Critical Reviews in Analytical Chemistry*, 0 :1–22, 2025.

[88] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima. Terahertz time-domain spectroscopy of solids : A review. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 26 :1661–1690, 2005. 9

[89] G. Gallot and D. Grischkowsky. Electro-optic detection of terahertz radiation. *Journal of the Optical Society of America B*, 16(8) :1204–1212, 1999. 10

[90] T. Shields, A. C. Dada, L. Hirsch, S. Yoon, J. M. R. Weaver, D. Faccio, L. Caspani, M. Peccianti, and M. Clerici. Electro-optical sampling of single-cycle THz fields with single-photon detectors. *Sensors*, 22(23), 2022.

[91] I.-C. Benea-Chelmus, J. Faist, A. Leitenstorfer, A. S. Moskalenko, I. Pupeza, D. V. Seletskiy, and K. L. Vodopyanov. Electro-optic sampling of classical and quantum light. *Optica*, 12(4) :546–563, 2025. 10

[92] N. T. Yardimci and M. Jarrahi. High sensitivity terahertz detection through large-area plasmonic nano-antenna arrays. *Scientific Reports*, 7 :42667, 2017. 10

[93] T. K. Nguyen, W. T. Kim, B. J. Kang, H. S. Bark, K. Kim, J. Lee, I. Park, T.-I. Jeon, and F. Rotermund. Photoconductive dipole antennas for efficient terahertz receiver. *Optics Communications*, 383 :50–56, 2017.

[94] P.-K. Lu, D. Turan, and M. Jarrahi. High-sensitivity telecommunication-compatible photoconductive terahertz detection through carrier transit time reduction. *Optics Express*, 28(18) :26324–26335, 2020.

[95] R. Henri, K. Nallappan, D. S. Ponomarev, H. Guerboukha, D. V. Lavrukhin, A. E. Yachmenev, R. A. Khabibullin, and M. Skorobogatiy. Fabrication and characterization of an 8 × 8 terahertz photoconductive antenna array for spatially resolved time domain spectroscopy and imaging applications. *IEEE Access*, 9 :117691–117702, 2021. 10

[96] H. Park and J.-H. Son. Machine learning techniques for THz imaging and time-domain spectroscopy. *Sensors*, 21(4), 2021. 11

[97] Y. Jiang, G. Li, H. Ge, F. Wang, L. Li, X. Chen, M. Lu, and Y. Zhang. Machine learning and application in terahertz technology : A review on achievements and future challenges. *IEEE Access*, 10 :53761–53776, 2022.

[98] Y.-C. Hung, T.-H. Chao, P. Yu, and S.-H. Yang. Terahertz spatio-temporal deep learning computed tomography. *Optics Express*, 30(13) :22523–22537, 2022. 11

[99] J. Dou, J. Fang, W. Jiang, J. Di, and Y. Qin. High-precision 3D reconstruction of terahertz computed tomography under extremely sparse view. *Optics and Lasers in Engineering*, 186 :108783, 2025. 11

[100] X.-H. Han, J. Wang, and H. Jiang. Recent advancements in hyperspectral image reconstruction from a compressive measurement. *Sensors*, 25(11), 2025. 11

Chapitre 2

Antennes photo-conductrices

2.1 Principe de fonctionnement

2.1.1 Caractéristiques

Les antennes sont des structures usuellement métalliques permettant de convertir un courant électrique en onde électromagnétique, et inversement. Elles remplissent donc un double rôle d'émetteur et de récepteur sans modification nécessaire de leur structure.

Les antennes photo-conductrices consistent en des électrodes métalliques déposées sur un substrat semi-conducteur, dont la bande interdite est inférieure à l'énergie des photons émis par une source laser adaptée. Cela permet au semi-conducteur d'absorber les photons incidents, générant ainsi des porteurs de charge (électrons - trous). Sous l'effet d'une tension électrique appliquée entre les électrodes, ces porteurs sont mis en mouvement, ce qui génère un courant. L'émission d'une onde électromagnétique se produit lorsque ce courant présente une variation temporelle de son amplitude. Plus la dérivée du courant est élevée, plus la composante haute fréquence de l'onde émise est importante. Ainsi, pour atteindre la gamme THz, il est essentiel de générer des courants transitoires ultra-rapides, typiquement de l'ordre de la picoseconde.

Plusieurs facteurs influencent les caractéristiques du courant produit et du matériau choisi pour le semi-conducteur.

Source optique

L'excitation des électrons dans le semi-conducteur doit s'effectuer extrêmement rapidement pour générer un courant transitoire avec une forte composante dans la gamme THz. Deux configurations de sources optiques permettent d'y parvenir.

La méthode la plus répandue (Figure 2.1.a) repose sur l'utilisation d'un laser impulsionnel femtoseconde [1–4]. Les impulsions ultra-courtes (typiquement inférieurs à 100 fs) permettent une génération quasi-instantanée de porteurs, assurant un courant transitoire bref et intense. Cela maximise à la fois l'efficacité de conversion et la largeur spectrale de l'émission térahertz.

Une seconde approche (Figure 2.1.b), nommée processus de photo-mélange, consiste à utiliser deux lasers à ondes continues dont les fréquences diffèrent légèrement [5–9]. Les interférences constructives et destructives entre ces deux sources engendrent un battement optique modulant l'intensité incidente sur le photoconducteur. Le courant alternatif ainsi généré produit en conséquence l'émission d'une onde THz continue, dont la fréquence est directement reliée à celle du battement optique. Cette fréquence THz monochromatique, égale à la différence de fréquences

des deux lasers, a l'avantage d'être modulable en ajustant la fréquence d'un des deux lasers.

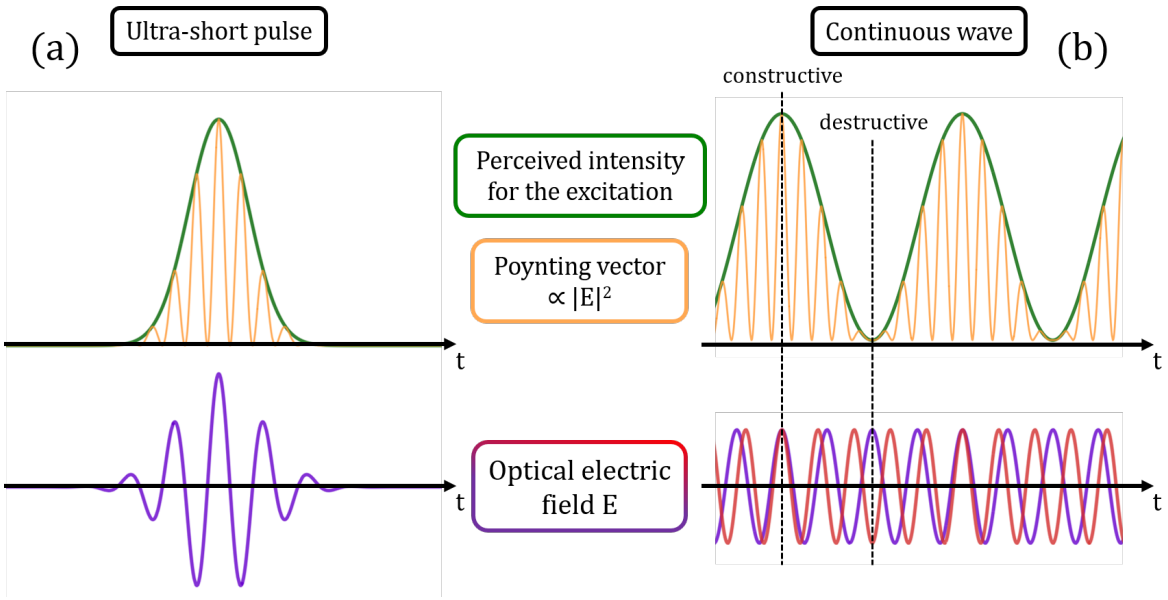


FIGURE 2.1 – Schéma démonstratif de l'excitation optique a) d'une impulsion ultra courte ou b) de la superposition de deux ondes continues présentant un écart spectral dans la gamme THz. Les champs électriques (violet et rouge) produisent un battement optique (orange) incident sur l'antenne. Cette dernière filtre les fréquences optiques et ne perçoit donc que l'enveloppe de l'excitation (vert), dont les variations temporelles sont à des fréquences plus lentes, de l'ordre du THz.

Temps de vie et mobilité des électrons

Le temps de vie (ou temps de recombinaison) des porteurs de charge est un critère majeur pour la sélection du matériau. Il correspond à la durée typique pendant laquelle les électrons et trous générés restent libres avant de se recombiner. Un temps de vie très court est nécessaire pour maximiser la décroissance rapide du courant après excitation du semi-conducteur, essentielle pour une émission centrée dans la gamme THz, ainsi que pour limiter l'échauffement du matériau.

La mobilité des électrons influence quant à elle directement l'intensité du courant généré et, par conséquent, la puissance du rayonnement THz émis. Une forte mobilité permet un déplacement plus rapide des porteurs sous l'effet du champ électrique appliqué, ce qui améliore l'efficacité de conversion de l'antenne.

Pour obtenir un bon compromis entre temps de vie court et mobilité élevée des électrons, tout en assurant une absorption efficace à la longueur d'onde souhaitée, le choix des matériaux pour la fabrication d'antennes photo-conductrices est assez restreint. De plus, d'autres paramètres interviennent dans la sélection du matériau. Sa tension de claquage détermine la limite de tension applicable (directement liée à la puissance THz émise), tandis que sa résistivité en obscurité influence la durée de vie de l'antenne, notamment via l'échauffement thermique provoqué par le courant d'obscurité.

Le matériau choisi a fréquemment pour base l'arséniure de gallium (GaAs) [10], ou le GaAs-BT (BT pour croissance à basse température) [11], dont le temps de vie des porteurs est plus court que le GaAs. D'autres matériaux, un peu moins répandus, sont également utilisés pour la génération THz, tels que le phosphure d'indium (InP) [12], le séléniure de zinc (ZnSe) [13] ou encore le diamant [14].

Afin d'ajuster leurs propriétés, certains matériaux sont dopés ou conçus en alliages avec des éléments spécifiques. C'est le cas, par exemple, SI-GaAs (SI pour semi-isolant, provoqué par un excès d'arsenic) [15], du InGaAs (In pour indium) [16], du GaAs :N (N pour azote) [17] ou encore du GaBiAs (Ga pour gallium) [18], ce qui permet de modifier la durée de vie des porteurs, la mobilité, ou encore la bande interdite effective.

Ces procédés de fabrication, qu'ils soient réalisés via croissance à basse température, implantation ionique [19, 20], ou autres techniques, présentent souvent une mise en œuvre et une reproductibilité complexe. De faibles variations sur, par exemple, la température ou le taux d'implantation entraînent des différences significatives sur le résultat final. De plus, la conception de structures plus sophistiquées telles que les structures multi-couches [21], visant à combiner les avantages de plusieurs matériaux par empilement, complique davantage la modélisation et la caractérisation expérimentale (interactions aux interfaces, diffusion inter-couches, contraintes mécaniques) pour un choix optimal du matériau.

Bande interdite et longueur d'onde optique

Le choix de la longueur d'onde de la source optique restreint également la sélection possible des matériaux semi-conducteurs utilisables. Elle définit la bande interdite nécessaire à son absorption. Cette bande doit ainsi être inférieure mais proche de l'énergie des photons produits par la source optique afin d'assurer une absorption efficace, tout en minimisant l'excès d'énergie donné aux électrons. Trois grandeurs principales de longueur d'onde sont utilisées pour l'excitation des antennes photo-conductrices.

Les sources optiques à 800 nm permettent la génération d'impulsions ultra-courtes de quelques femtosecondes au plus court, favorables à une génération THz à spectre large. La haute énergie des photons à cette longueur d'onde ($\simeq$ 1.55 eV) permet également l'utilisation de matériaux comme le GaAs-BT [22], très efficaces pour la conversion optique - THz. En contrepartie, ces sources optiques (telles que les lasers Ti :Sapphire [23]) sont encombrantes, coûteuses et souvent moins performantes en termes de puissance moyenne. Notamment, la forte absorption du silicium (Si) à 800 nm rend inadaptée l'utilisation de guides d'ondes en Si. Le recours à des matériaux spécifiques pour cette longueur d'onde comme la silice (SiO_2) limite l'intégration compacte de ces systèmes [24].

À l'opposé, les longueurs d'onde autour de 1.5 µm présentent un intérêt majeur en raison de leur utilisation pour les télécommunications optiques. Optimisées pour la propagation dans les fibres optiques, les technologies à 1.5 µm s'appuient sur des composants industriels matures (lasers à fibre Erbium [25, 26], amplificateurs EDFA [27], modulateurs intégrés [28], etc.) . Cela facilite grandement l'intégration des systèmes THz dans un environnement fibré et modulaire. Toutefois, la conversion optique - THz à 1.5 µm était historiquement moins efficace que celle à 800 nm, principalement en raison des performances réduites des photoconducteurs (par exemple InAlAs ou InGaAs [29]) à cette longueur d'onde. Toutefois, les progrès récents pour la conception de nouveaux matériaux (Au-implanted Ge [30], InGaAs :Rh [16]) répondant aux limites rencontrées permettent de concurrencer l'efficacité des sources à 800 nm.

La gamme des 1 µm constitue une alternative intéressante, combinant plusieurs avantages issus des deux domaines précédents cités [31–33]. Les sources optiques à cette fréquence (telles que les lasers ytterbium / à fibre dopée à l'ion ytterbium [34], ou les lasers Nd :YAG) sont réputées pour leur robustesse, stabilité, et surtout leur haute puissance moyenne, que ce soit en régime continu ou impulsionnel. Bien que les fibres optiques présentent des pertes plus élevées qu'à 1.5 µm, leur utilisation reste possible à 1 µm, permettant une intégration compacte des systèmes op-

tiques. Aussi, leur haute puissance optique autorise la mise œuvre de systèmes multiplexés tels que des matrices d'antennes photo-conductrices pour la génération de fortes puissances THz [35]. Le principal frein à l'utilisation de cette bande de fréquence réside aujourd'hui dans le manque de matériaux semi-conducteurs optimisés pour 1 µm. Ceux étudiés (InGaAs-BT à bande interdite intermédiaire [36], GaBiAs [37]) donnent des performances réduites face aux matériaux utilisés à 800 nm et 1.5 µm et leurs procédés de fabrication (croissance, dopage et/ou traitement) restent complexes. En conséquence, la conversion optique - THz à 1 µm demeure pour l'instant moins efficace qu'à 800 nm et 1.5 µm, bien que certaines études récentes utilisent de nouveaux matériaux prometteurs (ErAs :InAlGaAs [38]). Aussi, la restriction des matériaux utilisables à 1 µm peut être contournée en convertissant la source optique en seconde harmonique (515 nm), permettant l'utilisation du GaAs à des puissances optiques de plusieurs watts et générant des impulsions THz jusqu'à 6.7 mW de puissance moyenne [39, 40].

Structure de l'antenne

Sur le substrat semi-conducteur est ensuite placée une antenne métallique pour introduire un champ électrique statique et permettre la génération d'un courant. La structure des électrodes métalliques définit la répartition du champ électrique, et donc celle du courant, provoqué par la tension de polarisation. Cela se répercute dans l'émission de l'onde THz en impactant directement la bande passante et la directivité du rayonnement THz. Plusieurs configurations d'antennes photo-conductrices ont été développées pour adapter leurs caractéristiques aux besoins des différentes applications THz [41, 42].

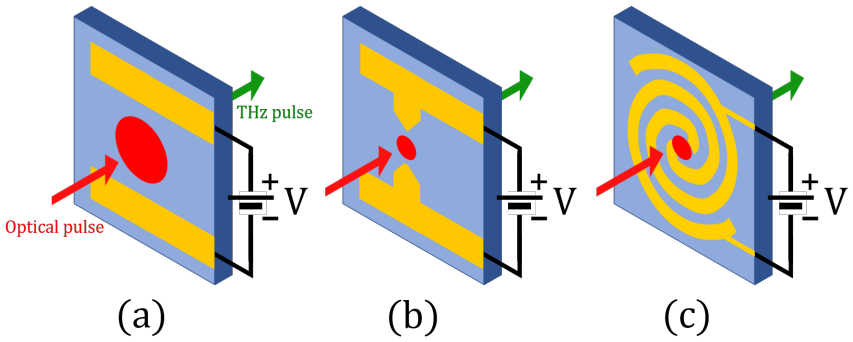


FIGURE 2.2 – Schéma illustratif d'une antenne photo-conductrice a) à large ouverture, b) dipôle, c) spirale.

La structure la plus simple, l'antenne à grande ouverture [43, 44], est constituée de deux lignes métalliques rectilignes et parallèles (Figure 2.2.a). Sous l'application d'une tension de polarisation, les deux lignes permettent la formation d'un champ électrique homogène. La zone active étant large, le faisceau optique incident n'a pas besoin d'être focalisé, et la puissance moyenne d'excitation peut donc être augmentée. Cela résulte en un rayonnement THz dont l'efficacité de conversion n'est pas optimisée en fonction de la fréquence émise, mais dont la limite de saturation optique est repoussée par les grandes dimensions de l'antenne.

Une variante plus répandue avec une simplicité de fabrication similaire est l'antenne dipôle [45]. Cette configuration ajoute aux lignes parallèles deux électrodes symétriques et séparées d'une faible distance (Figure 2.2.b), de l'ordre de la longueur d'onde THz émise. La zone active du champ électrique étant diminuée, le faisceau doit être focalisé avec précision et limité en puissance, mais l'antenne offre alors une émission efficace dans une bande de fréquences restreinte autour de la fréquence de résonance, dépendante des dimensions du dipôle.

Pour des applications nécessitant une plus large bande passante, des géométries plus complexes comme l'antenne spirale [46, 47] (Figure 2.2.c) ou l'antenne bow-tie [48] sont privilégiées. Ces structures permettent une génération efficace sur une large plage spectrale, et sont donc attractives pour des applications de spectroscopie. On peut aussi noter les antennes log-périodique [49, 50], elles aussi large bande, présentant en plus une bonne directivité du rayonnement.

Le choix de la géométrie influe donc sur plusieurs facteurs, tels que la bande spectrale, la puissance THz, la directivité du rayonnement, ou encore les contraintes de fabrication.

Enfin, l'antenne métallique est connectée à un générateur de tension ou à un mesureur de courant (par exemple une détection synchrone) suivant son rôle d'émetteur ou de récepteur. Du côté du substrat où l'antenne est positionnée, une fibre peut y être attachée pour optimiser l'alignement optique et faciliter l'intégration du système, mais il est également commun d'aligner le faisceau en espace libre. De l'autre côté du substrat, au vu des dimensions microscopiques des antennes pour générer ces fréquences, le faisceau émis est généralement divergeant. Une lentille en silicium y est alors placée pour collimater le rayonnement THz.

2.2 Description analytique de l'émission THz

2.2.1 Génération des porteurs de charge

Lors de l'excitation optique du semi-conducteur, la variation de la densité volumique de porteurs de charge $\frac{dn(t)}{dt}$ est influencée par deux composantes [51, 52].

Le taux de génération optique $G = \frac{\eta P_{opt}(t)}{\hbar\omega_0 Vol}$ décrit la rapidité de création des porteurs de charge. Celui-ci dépend de :

- $P_{opt}(t)$, la puissance optique moyenne incidente sur le semi-conducteur à l'instant t.
- η, le rendement quantique externe (nombre de porteurs générés par photon incident).
- Vol, le volume de la zone active du semi-conducteur (entre les électrodes).
- $\hbar\omega_0$, l'énergie des photons (h représente la constante de Planck, et ω_0 la pulsation du rayonnement optique incident).

Le taux de recombinaison $R = -\frac{n(t)}{\tau}$ décrit quant à lui le phénomène de recombinaison des porteurs de charge, caractérisé par le temps de vie des porteurs τ.

Ainsi, cette densité volumique de porteurs $n(t)$ s'exprime en fonction de la puissance optique moyenne incidente $P_{opt}(t)$ sous la forme d'une équation différentielle de premier ordre :

$$\frac{dn(t)}{dt} + \frac{n(t)}{\tau} = \frac{\eta P_{opt}(t)}{\hbar\omega_0 Vol} \qquad : \qquad [s^{-1}.m^{-3}] \tag{2.1}$$

Pour résoudre cette équation différentielle, la solution homogène est d'abord calculée en considérant la puissance optique nulle $P_{opt} = 0$:

$$\frac{dn(t)}{dt} + \frac{n(t)}{\tau} = 0 => n(t) = \lambda e^{-\frac{t}{\tau}} \tag{2.2}$$

avec $\lambda \in \mathbb{R}$, une constante d'intégration.

Afin d'obtenir la solution particulière, il est possible d'utiliser la méthode de la variation de la constante λ, aussi nommée méthode de Lagrange. On suppose $\lambda(t)$ une fonction du temps. La solution homogène est ensuite injectée dans l'équation différentielle :

$$\frac{d\lambda(t)}{dt}e^{-\frac{t}{\tau}} = \frac{\eta P_{opt}(t)}{h\omega_0 Vol} \tag{2.3}$$

Après intégration temporelle, la solution particulière est exprimée par :

$$\lambda(t) = \frac{\eta}{h\omega_0 Vol}\int_{-\infty}^{t} P_{opt}(t')e^{\frac{t'}{\tau}}dt' \tag{2.4}$$

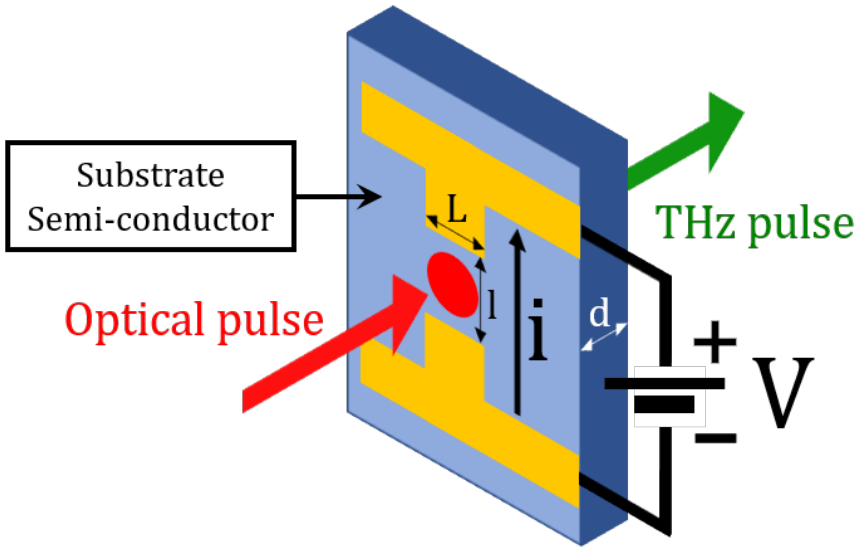


FIGURE 2.3 – Schéma illustrant la structure simplifiée d'une antenne photo-conductrice configurée pour l'émission d'une onde THz

Le volume de la région active du semi-conducteur peut quant à lui être exprimé comme le produit entre la surface entre les électrodes et la profondeur d'absorption optique effective :

$$Vol = LlD \quad : \quad [m^3] \tag{2.5}$$

avec (Figure 2.3) :
- l, la distance entre les électrodes.
- L, la largeur de la surface entre les électrodes.
- D, la profondeur d'absorption optique effective.

La profondeur D est déterminée par le coefficient d'absorption du semi-conducteur, tel que :

$$D = \int_0^d e^{-\alpha d}dz = \frac{1-e^{-\alpha d}}{\alpha} \quad : \quad [m] \tag{2.6}$$

avec :
- dz, la profondeur élémentaire du semi-conducteur.
- d, la profondeur totale du semi-conducteur.
- α, le coefficient d'absorption du semi-conducteur $[m^{-1}]$.

Par conséquent, on peut décrire la densité de porteurs de charge dans le semi-conducteur comme :

$$n(t) = \frac{\eta}{h\omega_0 Ll}\frac{\alpha}{1-e^{-\alpha d}}e^{-\frac{t}{\tau}}\int_{-\infty}^{t} P_{opt}(t')e^{\frac{t'}{\tau}}dt' \quad : \quad [m^{-3}] \tag{2.7}$$

Pour simplifier les expressions suivantes, on introduit la constante $\mathrm{K} = \frac{\eta}{h\omega_0 \mathrm{L}l} \frac{\alpha}{1-e^{-\alpha d}}$: $[\mathrm{J}^{-1}.m^{-3}]$ tel que :

$$n(t) = \mathrm{K} e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} \mathrm{P}_{opt}(t') e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \tag{2.8}$$

La quantité de porteurs de charge est ainsi dépendante d'un terme représentant l'énergie accumulée par l'antenne et exprimé par l'intégrale temporelle $\int_{-\infty}^{t} \mathrm{P}_{opt}(t') e^{\frac{t'}{\tau}} dt'$. Le nombre de porteurs décroît ensuite au cours du temps via le facteur de recombinaison $e^{-\frac{t}{\tau}}$.

2.2.2 Calculs de la photo-conductivité, du courant et du champ électrique THz

Une fois les porteurs de charge générés dans le semi-conducteur, ceux-ci peuvent se déplacer librement. Ces porteurs sont formés d'électrons libres et de trous. Toutefois, la mobilité des trous est plus petite que celle des électrons. En considérant leur contribution négligeable, la conductivité électrique photo-induite (ou photo-conductivité) peut s'exprimer comme [53] :

$$\sigma(t) = q\mu n(t) \qquad : \qquad [\mathrm{A.V}^{-1}.m^{-1}] \tag{2.9}$$

avec :
- q, la charge élémentaire de l'électron [C].
- μ, la mobilité de l'électron $[m^2.\mathrm{V}^{-1}.s^{-1}]$.

Bien que plus courante, cette expression est une approximation de la forme plus complexe :

$$\sigma(t) = q\mathrm{K} e^{\frac{-t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} \mu(t-t') \mathrm{P}_{opt}(t') e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \tag{2.10}$$

En effet, la mobilité μ présente un temps de réponse non négligeable dans le cas d'une excitation ultra-rapide. Sa croissance est généralement plus lente que les impulsions optiques inférieures à 100 fs de durée et la photo-conductivité s'en retrouve impactée [54–57]. Il reste cependant possible de l'assimiler à une constante en première approximation, réduisant l'expression de la photo-conductivité à l'équation 2.9.

Pour la suite, la structure de l'antenne est supposée être composée de deux électrodes coplanaires pour simplifier le modèle théorique. Durant l'excitation optique, en appliquant une tension continue et supposée uniforme $\mathrm{E}_{bias} = \frac{\mathrm{V}_{bias}}{l}$ aux bornes des électrodes, un photo-courant est alors généré :

$$i(t) = \int j(t) d\mathrm{S} = \int \sigma(t) \mathrm{E}_{bias} d\mathrm{S} = \sigma(t) \mathrm{E}_{bias} \mathrm{S} \qquad : \qquad [\mathrm{A}] \tag{2.11}$$

avec :
- $j(t)$, la densité de courant $[\mathrm{A}.m^{-2}]$.
- $d\mathrm{S}$, la section élémentaire du semi-conducteur perpendiculaire au champ $\overrightarrow{\mathrm{E}_{bias}}$.
- $\mathrm{S} = \mathrm{LD} = \mathrm{L}\frac{1-e^{-\alpha d}}{\alpha}$, la section effective du semi-conducteur perpendiculaire au champ $\overrightarrow{\mathrm{E}_{bias}}$.

Le champ électrique émis par une antenne de forme dipôle peut être décrit, en première approximation, par le potentiel vecteur de Hertz [58]. Dans un milieu homogène et non magnétique,

la valeur scalaire de la composante θ du champ électrique s'écrit en fonction de la distance r et de l'angle θ par rapport à l'émetteur :

$$\mathrm{E_{THz}}(r,\theta,t_r) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0 n_{\mathrm{ind}}^2}\left(\frac{1}{r^3}p(t_r) + \frac{n_{ind}}{cr^2}\dot{p}(t_r) + \frac{n_{ind}^2}{c^2 r}\ddot{p}(t_r)\right)sin(\theta) \tag{2.12}$$

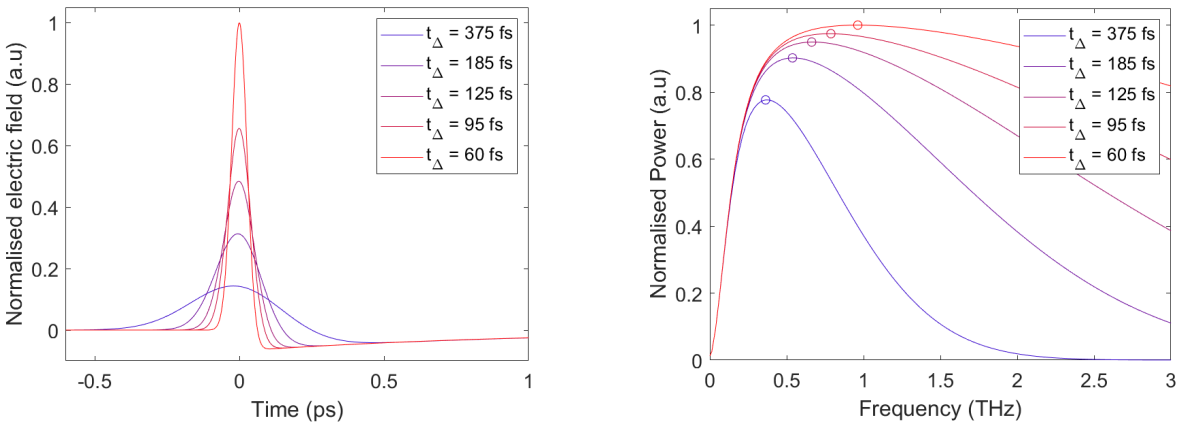
avec :
- $p(t)$, le moment dipolaire.
- n_{ind}, l'indice de réfraction du milieu de propagation.
- c, la vitesse de la lumière dans le vide.
- $t_r = t - \frac{n_{\mathrm{ind}} r}{c}$, le temps retardé par le temps de propagation jusqu'à la distance r.

En champ lointain ($r \gg \lambda$), $\mathrm{E_{THz}}$ dépend principalement du terme en r^{-1} et est donc proportionnel à $\ddot{p}(t)$. En notant que $i(t) = \frac{1}{l}\frac{dp}{dt}$, le champ électrique est aussi proportionnel à la variation temporelle du photo-courant. Le champ lointain émis par l'excitation optique d'un volume élémentaire $dVol$ de l'antenne photo-conductrice s'exprime finalement :

$$\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}^{far}(t) \propto \frac{dj(t)}{dt} \propto q\mu \mathrm{E}_{bias}\frac{dn(t)}{dt} = q\mu \mathrm{E}_{bias}\left(\frac{\eta \mathrm{P}_{opt}(t)}{\hbar\omega_0 Vol} - \frac{n(t)}{\tau}\right) \tag{2.13}$$

$$\propto q\mu \mathrm{E}_{bias}\mathrm{K}\left(\mathrm{P}_{opt}(t) - \frac{e^{-\frac{t}{\tau}}}{\tau}\int_{-\infty}^{t}\mathrm{P}_{opt}(t')e^{\frac{t'}{\tau}}dt'\right)$$

Dans l'approximation d'une mobilité des électrons constante, la forme temporelle du champ électrique THz suit le comportement cumulé de deux termes, celui de l'impulsion optique $\mathrm{P}_{opt}(t)$, ainsi qu'un second terme dépendant des porteurs de charge $\frac{e^{-\frac{t}{\tau}}}{\tau}\int_{-\infty}^{t}\mathrm{P}_{opt}(t')e^{\frac{t'}{\tau}}dt'$.

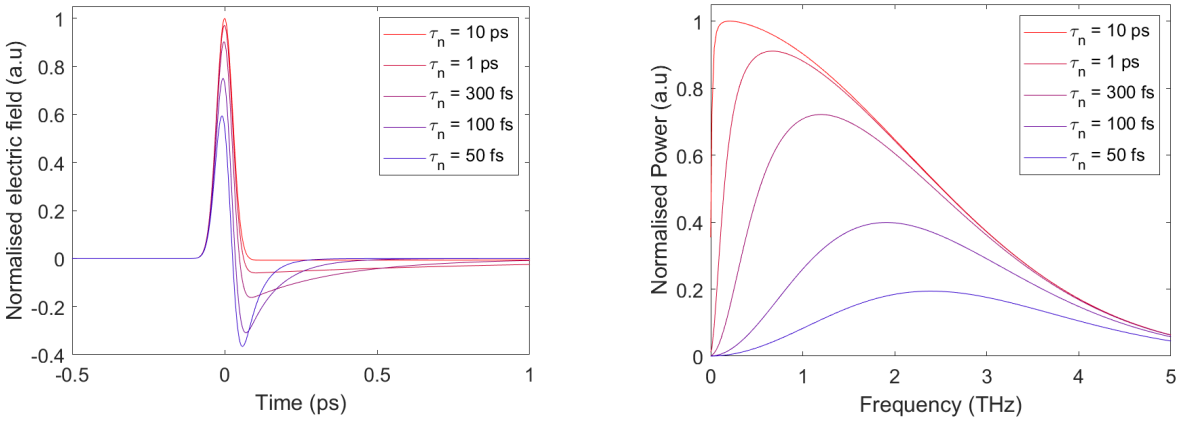


(a) (b)

FIGURE 2.4 – Simulation d'une impulsion THz générée par l'excitation d'une impulsion optique ultra-courte gaussienne centrée à $\lambda_0 = 1028$ nm pour différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique (à énergie optique constante) avec $\tau = 1$ ps. a) Domaine temporel du champ électrique THz. b) Spectre de la puissance THz. Le maximum de chaque courbe est affiché par un cercle. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes.

Dans le cadre d'une excitation optique gaussienne telle que $\mathrm{P}_{opt}(t) = \mathrm{P}_{opt}^{c} e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}$ avec P_{opt}^{c} la puissance optique crête, la durée de l'impulsion optique à mi-hauteur t_Δ détermine la largeur spectrale THz émise (Figure 2.4). En fixant ici le temps de vie $\tau = 1$ ps et la longueur d'onde centrale optique $\lambda_0 = 1028$ nm, plus la durée à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique est courte, plus le front de l'impulsion THz devient abrupte, permettant la génération vers les hautes fréquences du spectre THz. À énergie optique constante, une durée t_Δ courte permet également une meilleure

efficacité de conversion optique - THz.



(a) (b)

FIGURE 2.5 – Simulation d'une impulsion THz générée par l'excitation d'une impulsion optique ultra-courte gaussienne de 70 fs à mi-hauteur et centrée à $\lambda_0 = 1028$ nm pour différentes valeurs de τ. a) Domaine temporel du champ électrique THz. b) Spectre de la puissance THz. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes.

Concernant le temps de vie τ, celui-ci possède un rôle important dans la forme spectrale THz (Figure 2.5). Pour une durée à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique fixée ici à 70 fs, plus le temps de vie des porteurs est court, plus le centre du spectre est décalé vers une fréquence THz élevée. Il est cependant à noter que la réduction du temps de vie n'améliore pas l'efficacité d'émission théorique à haute fréquence, et réduit la puissance THz dans son ensemble. En pratique, cette réduction peut être compensée par d'autres facteurs clefs de la génération THz [59] et il est donc important de considérer l'ensemble des caractéristiques du semi-conducteur pour évaluer l'efficacité réelle de l'émission THz.

Il est également important de souligner que ces simulations ne prennent pas en compte la réponse fréquentielle de l'antenne photo-conductrice. Cette réponse impose un filtre passe-bande sur le spectre d'émission, dépendant des caractéristiques de l'antenne, tels que la structure des électrodes ou autres caractéristiques limitantes du semi-conducteur.

2.2.3 Saturation du courant et du champ électrique THz

Durant la génération du champ électrique THz, la composante en champ proche applique une tension supplémentaire au sein du semi-conducteur, qui influe la mise en mouvement des porteurs de charge. À partir d'une certaine valeur d'énergie optique absorbée, cette influence du champ généré devient non négligeable [60].

Dans ce cas, le champ proche THz apporte une autre composante à l'expression de la densité de courant :

$$j(t) = \sigma(t)\Big(\mathrm{E}_{bias} + \mathrm{E}_{in}(t)\Big) \qquad : \qquad [\mathrm{A}.m^{-2}] \tag{2.14}$$

où $\mathrm{E}_{in}(t)$ représente le champ électrique THz proche émis à l'intérieur de l'antenne et a pour expression :

$$\mathrm{E}_{in}(t) = -\frac{\eta_0}{1+\sqrt{\epsilon_r}} j_s(t) \qquad : \qquad [\mathrm{V}.m^{-1}] \tag{2.15}$$

$$= -\mathrm{E}_{bias}\frac{\eta_0\sigma(t)\mathrm{D}}{\eta_0\sigma(t)\mathrm{D}+1+\sqrt{\epsilon_r}}$$

avec :
- η_0, l'impédance caractéristique du vide [Ω].
- $\sqrt{\epsilon_r}$, l'indice de réfraction du photo-conducteur aux fréquences THz.
- $j_s(t) = \int_0^d j(t)dz = j(t)\mathrm{D}$, la densité de courant de surface [A.m^{-1}], D étant la profondeur efficace calculée à l'équation 2.6.

On peut ensuite développer l'expression de la densité de courant :

$$j(t) = \mathrm{E}_{bias}\sigma(t)\frac{1+\sqrt{\epsilon_r}}{\eta_0\sigma(t)\mathrm{D}+1+\sqrt{\epsilon_r}} \tag{2.16}$$

Ce qui peut se réécrire :

$$j(t) = \frac{\mathrm{E}_{bias}\sigma(t)}{\eta'\sigma(t)+1} \tag{2.17}$$

avec $\eta' = \frac{\eta_0\mathrm{D}}{1+\sqrt{\epsilon_r}} = \frac{\eta_0}{1+\sqrt{\epsilon_r}}\frac{1-e^{-\alpha d}}{\alpha}$.

La densité de courant est ici exprimée en fonction du terme $\frac{\sigma(t)}{\eta'\sigma(t)+1}$ qui converge vers $\frac{1}{\eta'}$ pour une photo-conductivité $\sigma(t)$ élevée. L'influence du champ proche créé ainsi un effet d'écran qui sature la génération de courant pour de grandes valeurs de photo-conductivité, et donc pour de grandes valeurs d'énergie optique absorbée. Pour expliciter l'expression du courant en fonction de l'énergie optique, il est nécessaire de définir la forme optique de l'excitation. Ici, le développement est effectué en supposant une forme temporelle extrêmement courte.

Régime impulsionnel ultra-court

Dans le cas d'un régime impulsionnel ultra-court, pour exprimer la photo-conductivité en fonction de l'énergie optique $\mathscr{E}_{opt}$ absorbée par le semi-conducteur, la durée de l'impulsion optique (de l'ordre de la centaine de femtosecondes) peut être supposée largement inférieure au temps de vie τ (de l'ordre de la picoseconde). Dans ce cas, l'intégrale $\int_{-\infty}^{t}\mathrm{P}_{opt}(t')e^{\frac{t'}{\tau}}dt'$ peut être approximée à $\int_{-\infty}^{t}\mathrm{P}_{opt}(t')dt'$, avec $e^{\frac{t'}{\tau}} \simeq 1$ sur la durée de l'excitation optique. Une approximation est alors obtenue de la photo-conductivité précédemment calculée à l'équation 2.10, avec μ considéré constant :

$$\sigma(t) = q\mathrm{K}\mu e^{\frac{-t}{\tau}}\int_{-\infty}^{t}\mathrm{P}_{opt}(t')dt' \tag{2.18}$$

Aussi, la photo-conductivité maximale est atteinte à un temps T, juste après l'absorption complète de l'énergie optique, mais avant que les porteurs de charge n'aient le temps de se recombiner. Le terme de recombinaison peut alors être approximé à $e^{\frac{-\mathrm{T}}{\tau}} \simeq 1$. En définissant l'énergie optique de l'impulsion tel que :

$$\mathscr{E}_{opt} = \int \mathrm{P}_{opt}(t')dt' \qquad : \qquad [\mathrm{J}] \tag{2.19}$$

La photo-conductivité maximale est alors décrite comme :

$$\sigma_{max} = q\mu\mathrm{K}\mathscr{E}_{opt} \tag{2.20}$$

En définissant l'énergie optique de saturation :

$$\mathscr{E}_{sat} = \frac{1}{\eta' q \mu K} = \frac{\hbar \omega_0 L l (1+\sqrt{\epsilon_r})}{\eta_0 q \mu \eta} \qquad : \qquad [J] \tag{2.21}$$

La densité de courant maximale est alors exprimée à partir de l'équation 2.17 :

$$j_{max} = \frac{E_{bias}}{\eta'} \frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{opt} + \mathscr{E}_{sat}} \tag{2.22}$$

Et l'amplitude maximale du champ électrique proche émis est écrite par l'équation 2.15 :

$$E_{in}^{max} = -E_{bias} \frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{opt} + \mathscr{E}_{sat}} \tag{2.23}$$

Toujours dans l'hypothèse d'une excitation ultra-courte, et pour une saturation faible, la forme temporelle du courant en fonction de l'énergie peut être approximée comme constante. En raison de cette approximation, la densité de courant peut être réécrite comme :

$$j(t, \mathscr{E}_{opt}) \simeq j_{max}(\mathscr{E}_{opt}) J_{forme}(t) \tag{2.24}$$

avec $J_{forme}(t)$, la forme temporelle normalisée de la densité de courant, indépendante de l'énergie $\mathscr{E}_{opt}$.

La dérivée temporelle de la densité de courant $\frac{dj}{dt}$ est dès lors proportionnelle à $j_{max}(\mathscr{E}_{opt})$ tel que :

$$\frac{dj}{dt} \simeq j_{max}(\mathscr{E}_{opt}) \frac{dJ_{forme}}{dt} \tag{2.25}$$

De ce résultat, il est finalement possible d'exprimer la dépendance à la saturation du champ électrique THz lointain :

$$E_{THz}^{max} \propto \frac{dj}{dt} \propto E_{bias} \frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{opt} + \mathscr{E}_{sat}} \tag{2.26}$$

À plus forte saturation optique, la forme temporelle de la densité de courant $\frac{dJ_{forme}}{dt}$ devient dépendante de $\mathscr{E}_{opt}$ et l'approximation à une constante n'est plus valable. Le champ électrique lointain est alors décrit par (Équation 2.17) :

$$E_{THz}(t) \propto \frac{dj}{dt} \propto \frac{E_{bias}}{(\eta' \sigma(t) + 1)^2} \frac{d\sigma}{dt} \tag{2.27}$$

En développant la dérivée temporelle de la photo-conductivité :

$$\frac{d\sigma}{dt} = q\mu K \left[P_{opt}(t) - \frac{e^{\frac{-t}{\tau}}}{\tau} \int_{-\infty}^{t} P_{opt'}(t) e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \right] = q\mu K P_{opt}(t) - \frac{\sigma(t)}{\tau} \tag{2.28}$$

Alors l'amplitude maximale du champ électrique devient :

$$\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}^{max} \propto \max\left(\frac{\mathrm{E}_{bias}}{(\eta'\sigma(t)+1)^2}\left[q\mu\mathrm{K}\mathrm{P}_{opt}(t)-\frac{\sigma(t)}{\tau}\right]\right) \tag{2.29}$$

En considérant à nouveau une excitation optique gaussienne ultra-courte et en rappelant que $\mathrm{P}_{opt}(t)=\mathrm{P}_{opt}^{c}e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}$ et $\mathscr{E}_{opt}=\mathrm{P}_{opt}^{c}\sqrt{\frac{\pi t_\Delta^2}{4ln2}}$, l'expression se réécrit :

$$\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}^{max} \propto \max\left(\frac{\mathrm{E}_{bias}\mathscr{E}_{opt}\mathscr{E}_{sat}\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}}{\eta'\left(\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}\sigma_p(t)\mathscr{E}_{opt}+\mathscr{E}_{sat}\right)^2}\left[e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}-\frac{\sigma_p(t)}{\tau}\right]\right) \tag{2.30}$$

avec :

- $\sigma_p(t)=\frac{\sigma(t)}{\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}\mathscr{E}_{opt}}=e^{\frac{-t}{\tau}}\int_{-\infty}^{t}e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}e^{\frac{t'}{\tau}}dt'$, la photo-conductivité indépendante de l'énergie optique.
- $\mathscr{E}_{sat}=\frac{1}{\eta' q\mu\mathrm{K}}$.

À basse énergie optique $\mathscr{E}_{opt}$ par rapport à l'énergie de saturation $\mathscr{E}_{sat}$, le terme $\frac{\mathrm{E}_{bias}\mathscr{E}_{opt}\mathscr{E}_{sat}\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}}{\eta'\left(\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}\sigma_p(t)\mathscr{E}_{opt}+\mathscr{E}_{sat}\right)^2}$ peut être approximé à $\frac{\mathrm{E}_{bias}\mathscr{E}_{opt}\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}}{\eta'\mathscr{E}_{sat}}$ et évolue ainsi proportionnellement à $\mathscr{E}_{opt}$ sans dépendance au temps t. En conséquence, seul le terme $\left[e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}-\frac{\sigma_p(t)}{\tau}\right]$ évolue en fonction du temps et sa valeur maximale est ainsi constante quelle que soit l'énergie optique. L'amplitude du champ électrique suit donc bien l'expression obtenue par l'approximation (Équation 2.26).

Toutefois, la valeur maximale de la forme optique $e^{-4ln2\frac{t^2}{t_\Delta^2}}$ n'est pas atteinte au même instant que celle de la photo-conductivité $\frac{\sigma_p(t)}{\tau}$ (Figure 2.6.A). À plus haute énergie optique, le terme $\frac{\mathrm{E}_{bias}}{\eta'\left(\sqrt{\frac{4ln2}{\pi t_\Delta^2}}\sigma_p(t)\mathscr{E}_{opt}+\mathscr{E}_{sat}\right)^2}$ doit être pris en compte et apporte dès lors une dépendance supplémentaire à $\sigma_p(t)$ et donc au temps t. Cela implique un décalage en fonction de l'énergie optique $\mathscr{E}_{opt}$ de l'instant t_{THz}^{max} où $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}^{max}$ est atteint (Figure 2.6.B.a). L'expression de $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}^{max}$ en fonction de la saturation optique devient ainsi plus complexe à décrire analytiquement et une analyse par simulation est alors nécessaire (Figure 2.6.B.b). Comme attendu, l'amplitude THz simulée suit un comportement linéaire pour de basses énergies optiques, similairement à la formule approchée décrite à l'équation 2.26. À saturation optique, l'amplitude THz n'est en revanche pas correctement représentée par l'approximation, qui sous-estime la valeur réelle.

Malgré cette sous-estimation, l'amplitude simulée de l'impulsion THz suit bien une saturation pour de fortes énergies optiques. La génération de fortes puissances THz ne peut ainsi pas se faire par la simple augmentation de la puissance optique et nécessite d'autres approches telles que l'augmentation de la surface excitée du semi-conducteur ($\mathscr{E}_{sat}\propto \mathrm{L}l$) ou l'excitation cohérente de plusieurs antennes.

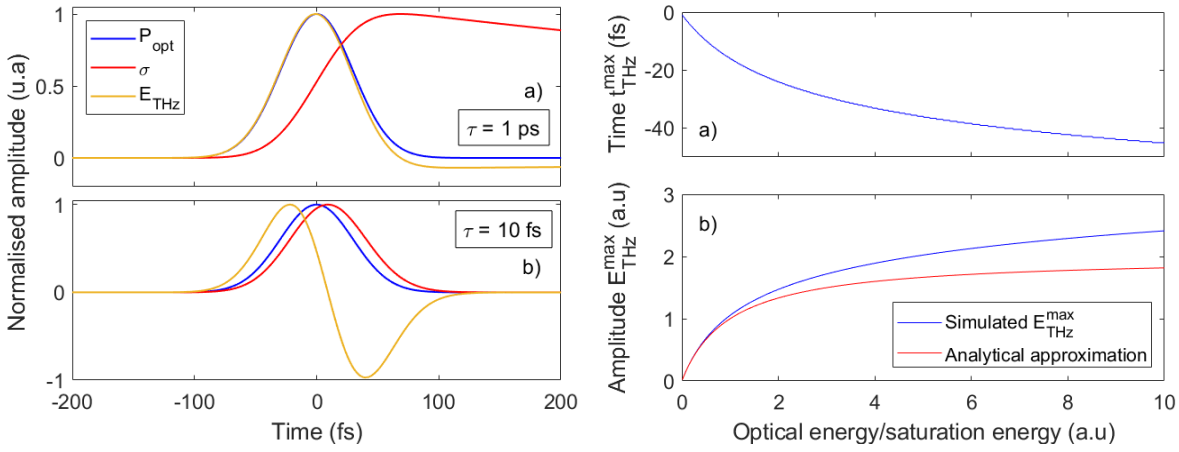


FIGURE 2.6 – A) Expressions normalisées en fonction du temps de la puissance optique P_{opt}, de la photo-conductivité σ et du champ électrique généré E_{THz} pour t_Δ = 70 fs et a) τ = 1 ps ou b) τ = 10 fs. L'énergie optique normalisée est fixée à $\frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{sat}} = 1$. B) a) Instant t_{THz}^{max} et amplitude E_{THz}^{max} b) en fonction de l'énergie optique normalisée $\frac{\mathscr{E}_{opt}}{\mathscr{E}_{sat}}$.

2.3 Montage expérimental

Le montage expérimental développé dans le cadre de ces travaux repose sur le principe de la spectroscopie dans le domaine temporel térahertz (THz-TDS), permettant une caractérisation temporelle et spectrale des impulsions THz. Dans un premier temps, nous présenterons l'architecture générale du montage, avant de détailler le rôle des différents éléments qui le constituent.

2.3.1 Montage général

Le montage optique (Figure 2.7) est construit autour d'une source laser femtoseconde dans l'infrarouge proche (≃1 µm). En sortie de la source, le faisceau laser est scindé en deux chemins distincts à l'aide d'un séparateur de faisceau polarisé. Ces deux branches constituent respectivement le chemin « pompe » et le chemin « sonde » utilisés dans le cadre de l'échantillonnage photo-conductif. Pour réaliser la mesure du signal THz, la synchronisation temporelle entre les impulsions des deux voies est nécessaire. La longueur des deux chemins optiques doit être équivalente pour que les impulsions arrivent simultanément sur l'antenne réceptrice et ainsi assurer la détection du champ électrique THz.

Le faisceau pompe est dirigé vers une antenne photo-conductrice émettrice, où l'impulsion optique induit la génération d'une impulsion THz. En sortie de la lentille silicium hyperhémisphérique attachée à l'antenne, l'onde électromagnétique est collimatée et focalisée par un jeu de quatre miroirs paraboliques pour assurer une propagation contrôlée, et faciliter l'interaction avec un potentiel échantillon pour la mise en œuvre d'une étude spectroscopique THz. La pompe termine ensuite son trajet focalisée sur l'antenne réceptrice.

Le chemin sonde, quant à lui, utilise une ligne à retard montée sur une platine de translation motorisée de 15 cm, permettant d'introduire un retard temporel variable entre les impulsions pompe et sonde. Le pas de la ligne à retard peut descendre jusqu'à 2 µm. Toutefois, un pas de 10 µm, ce qui correspond à une précision temporelle de 67 fs (équivalent à un spectre mesurable jusqu'à 7.5 THz), s'est avéré suffisant pour la mesure du signal et permet une meilleure reproductibilité du déplacement mécanique. Le faisceau sonde est ensuite focalisé sur l'antenne de détection, permettant d'échantillonner l'impulsion pompe THz réceptionnée simultanément.

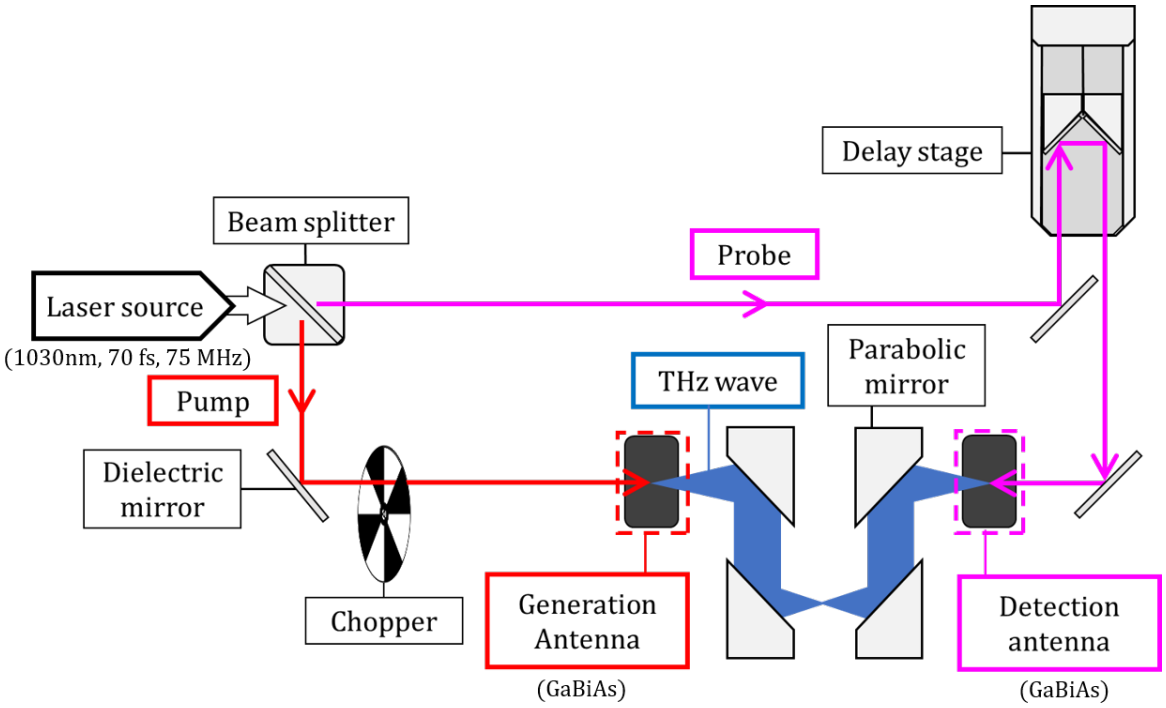
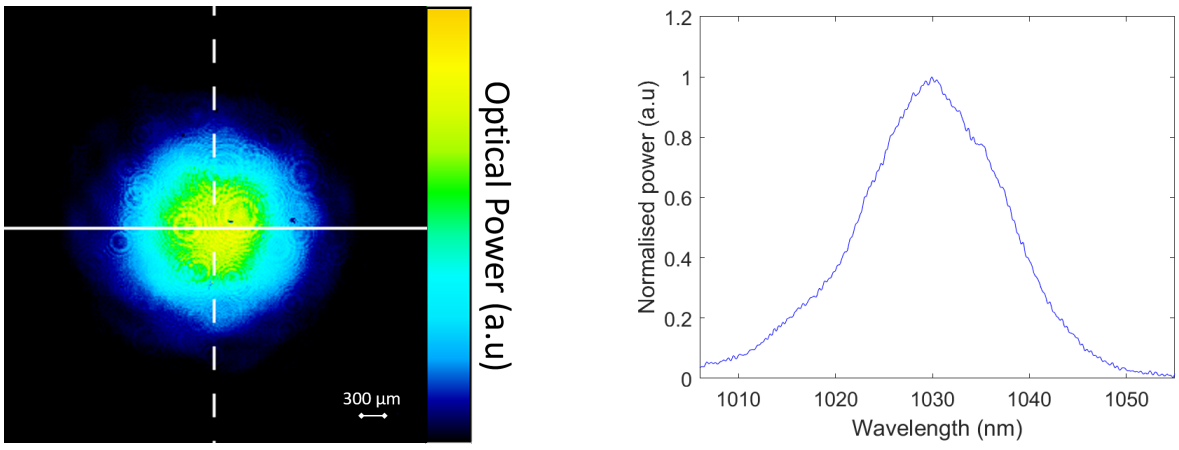


FIGURE 2.7 – Schéma du montage expérimental pour la génération d'impulsions THz ultra-courtes.

2.3.2 Source laser dopée à l'Ytterbium

La source utilisée dans ce montage est un laser femtoseconde infrarouge, modèle FLINT de chez LIGHT CONVERSION [61]. Il s'agit d'un laser dopé à l'ytterbium (Yb), émettant des impulsions ultra-courtes d'une durée à mi-hauteur (FWHM) de 70 fs, et à un taux de répétition de 75 MHz. La puissance moyenne délivrée est de 1,5 W, équivalente à une énergie par impulsion de 20 nJ. Les impulsions sont centrées à une longueur d'onde de 1028 nm, avec une largeur spectrale de 20 nm à mi-hauteur. Le profil spatial et spectral sont tous deux proches d'une forme gaussienne (Figure 2.8).



(a) (b)

FIGURE 2.8 – a) Profil spatial du faisceau optique. b) Spectre de l'impulsion optique.

Cette longueur d'onde autour de 1 µm reste encore aujourd'hui peu explorée pour les applications dans le domaine THz. En effet, les sources THz les plus matures sont optimisées pour

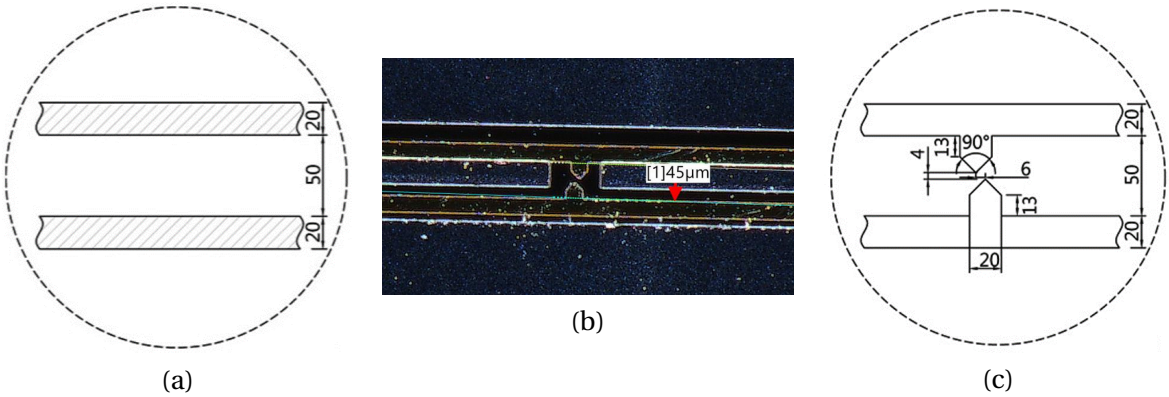
des longueurs d'onde proches de 800 nm ou de 1.5 µm. Malgré tout, pour approfondir à terme les avancées vers des sources THz à haute puissance, notre choix s'est tourné vers les fréquences à 1 µm, permettant l'utilisation de sources optiques robustes et délivrant de fortes puissances moyennes.

2.3.3 Antennes photo-conductrices GaBiAs

Pour la génération et la détection des impulsions THz, nous utilisons des antennes photo-conductrices fabriquées à partir de GaBiAs, développées par l'entreprise Teravil [62]. Ce composant présente des temps de vie de l'ordre de la picoseconde (avec des démonstrations entre 0.7 et 1.6 ps), des mobilités supérieures à 2000 $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$, et montre un fort potentiel pour l'optimisation de dispositifs fonctionnant autour de 1 µm [18, 37, 63–68], avec une variante ajoutant de l'indium pour la génération THz à 1.5 µm [69–72].

L'antenne réceptrice est conçue sur une géométrie d'antenne dipolaire (Figure 2.9.a et .b), tandis que deux structures pour l'antenne émettrice ont été utilisées, une dipôle (même structure que l'antenne réceptrice) et une à petite ouverture (Figure 2.9.c). Cette deuxième structure, bien que possédant une forme semblable à une antenne à large ouverture, présente une petite distance entre électrodes (50 µm $\Longleftrightarrow$ 6 THz). Cette petite dimension n'est pas très éloignée des longueurs d'ondes émises, ce qui peut potentiellement avoir un impact sur l'émission THz, similairement à une antenne dipôle.

Les deux structures utilisées, bien que simples, permettent l'émission et la réception d'une large bande passante, nécessaires à la génération et la détection d'impulsions THz ultra-courtes. Les dimensions actives des structures sont de l'ordre de quelques dizaines de microns : 80 × 50 µm pour la petite ouverture, et 6 × 4 µm pour le dipôle. En raison de ces faibles dimensions, il est nécessaire de focaliser le faisceau laser précisément sur la zone active. En conséquence, la puissance optique concentrée sur une très petite surface impose une limite de la puissance maximale utilisable pour éviter l'endommagement du photo-conducteur.



(a) (b) (c)

FIGURE 2.9 – a) Structure schématique de l'antenne large ouverture. b) Vue au microscope de l'antenne dipôle utilisée pour la détection du signal THz. c) Structure schématique de l'antenne dipôle.

L'antenne émettrice est polarisée par un générateur de tension continue, réglable entre 0 et 25 V. Le courant moyen généré par cette antenne est mesuré à l'aide d'un multimètre, pour différentes valeurs de puissance optique et de tensions d'alimentation, allant respectivement de 0 à 25 mW et de 0 à 25 V (Figure 2.10). Les ajustements à partir des formules analytiques prédisent une saturation du courant au-delà d'un certain seuil de puissance optique (courbes noires), phénomène dû à l'effet d'écran induit par le champ électrique THz en champ proche. Ici (Figure 2.10.a), la puissance de saturation P_{sat} est d'environ 8.5 mW. Cependant, le courant mesuré continue de

croître linéairement avec une pente plus faible. La présence de cette croissance malgré le phénomène de saturation pourrait être due à l'existence d'une composante (quasi) continue du courant. Comme nous pourrons le voir par la suite, cette composante continue ne résulte pas en l'émission d'une onde THz. Toutefois, l'augmentation du courant entraîne un échauffement supplémentaire de l'antenne et augmente ainsi les risques d'endommagement.

De plus, le courant devient instable (bruit élevé et comportement non reproductible après le blocage puis la réactivation de l'excitation optique) lorsque la puissance optique dépasse 20 mW en parallèle d'une tension appliquée dépassant également 20 V, probablement en raison de phénomènes de claquage local ou d'échauffement excessif. Afin d'éviter toute dégradation importante du matériau, la puissance optique incidente sur l'antenne émettrice est limitée à 25 mW.

Concernant la tension (Figure 2.10.b), le courant varie linéairement en fonction de celle-ci jusqu'à une tension d'environ 8 V. Au-delà, le courant ne suit plus le modèle théorique et adopte un comportement non linéaire, provoqué par des phénomènes non ohmiques [73].

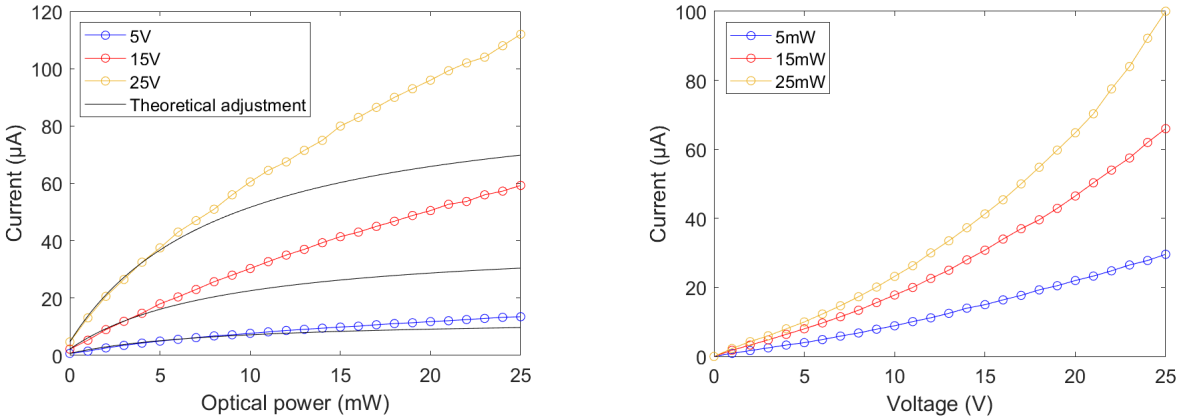


FIGURE 2.10 – Mesures du courant moyen généré au sein de l'antenne émettrice en fonction a) de la puissance optique et b) de la tension appliquées. Les courbes noires représentent les ajustements théoriques d'un régime saturé par effet d'écran.

Du côté sonde, la puissance optique incidente sur l'antenne réceptrice est maintenue entre 10 et 12 mW afin de maximiser la sensibilité de détection, tout en évitant un régime trop fortement saturé.

Pour réaliser la détection, l'antenne réceptrice est polarisée par l'onde THz, ce qui génère un courant transitoire proportionnel au champ électrique incident. Pour améliorer la dynamique du signal par rapport au bruit, le signal est amplifié et extrait du bruit grâce à une détection synchrone. La modulation à basse fréquence nécessaire à cette détection est réalisée à l'aide d'un hacheur mécanique positionné sur le chemin THz, à une fréquence de référence d'environ 320 Hz. Le temps d'intégration de la détection synchrone est fixé entre 10 et 300 µs selon l'amplitude du signal mesuré. Chaque point du signal temporel est ensuite enregistré en moyennant sur une durée équivalente à trois fois ce temps d'intégration.

2.4 Mesure d'une impulsion ultra-courte THz

2.4.1 Échantillonnage photo-conductif

La mesure du champ électrique THz est réalisée par un processus d'échantillonnage photo-conductif. L'excitation de l'antenne réceptrice par une impulsion optique (sonde) génère des por-

teurs de charge dans le semi-conducteur, qui produisent ensuite un courant par mise en mouvement des électrons via l'influence du champ électrique THz incident (pompe). Ce photo-courant prend la forme du produit entre le champ électrique THz E_{THz} et la photo-conductivité $\sigma_{det}(t)$, produite par la sonde optique temporellement superposée à la pompe :

$$i_{det}(t') \propto \sigma_{det}(t') E_{THz}(t') \tag{2.31}$$

Ce qui résulte en un photo-courant total :

$$I_{det} \propto \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{det}(t') E_{THz}(t') dt' \tag{2.32}$$

En ajoutant un retard relatif Δt entre la pompe et la sonde par le biais de la ligne à retard, on obtient un photo-courant total dépendant de ce retard relatif :

$$I_{det}(\Delta t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{det}(t' + \Delta t) E_{THz}(t') dt' \tag{2.33}$$

Si la photo-conductivité $\sigma_{det}(t'+\Delta t)$ présente une durée suffisamment courte, c'est-à-dire que l'impulsion optique sonde et le temps de vie des porteurs de charge sont suffisamment brefs par rapport aux variations de l'onde THz, alors $\sigma_{det}(t')$ peut être exprimé en une distribution de Dirac δ centré en $-\Delta t$. Le photo-courant mesuré permet alors de tracer le champ électrique en balayant le retard relatif pompe-sonde :

$$I_{det}(\Delta t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \delta(t' + \Delta t) E_{THz}(t') dt' = E_{THz}(\Delta t) \tag{2.34}$$

Cette mesure du photo-courant pour échantillonner le signal THz permet d'obtenir l'ensemble des informations de son champ électrique (amplitude et phase), hormis son amplitude réelle dont l'information est modifiée par les caractéristiques du circuit électrique utilisé pour la mesure du courant. Un calibrage est alors nécessaire pour éventuellement pouvoir déterminer l'amplitude du signal THz. Il est aussi à noter que la réponse fréquentielle de l'antenne réceptrice impose un filtre passe-bande sur le signal THz, réduisant son efficacité pour les très basses et hautes fréquences.

2.4.2 Mesure du signal THz

Une impulsion THz générée et détectée à partir du montage expérimental présenté précédemment donne lieu à un signal temporel représentant le champ électrique de l'impulsion THz (Figure 2.11). Cette impulsion présente une oscillation principale d'une durée crête à crête de 0,8 ps, suite à l'excitation ultra-rapide de l'antenne émettrice. Cette dernière est suivie d'oscillations de plus faible amplitude, s'étendant sur plusieurs dizaines de picosecondes, correspondant au temps de recombinaison des porteurs de charge après l'excitation optique, mais également à la précession libre due à la propagation de l'onde entre les deux antennes.

Une impulsion secondaire de faible amplitude est détectée à un temps précédant l'impulsion principale. Ce signal, supposé être un artefact, proviendrait d'une réflexion interne dans l'antenne réceptrice. Celle-ci présente des caractéristiques spectrales similaires à l'impulsion principale, mais peut malgré tout influencer légèrement sur les résultats de mesure spectrale.

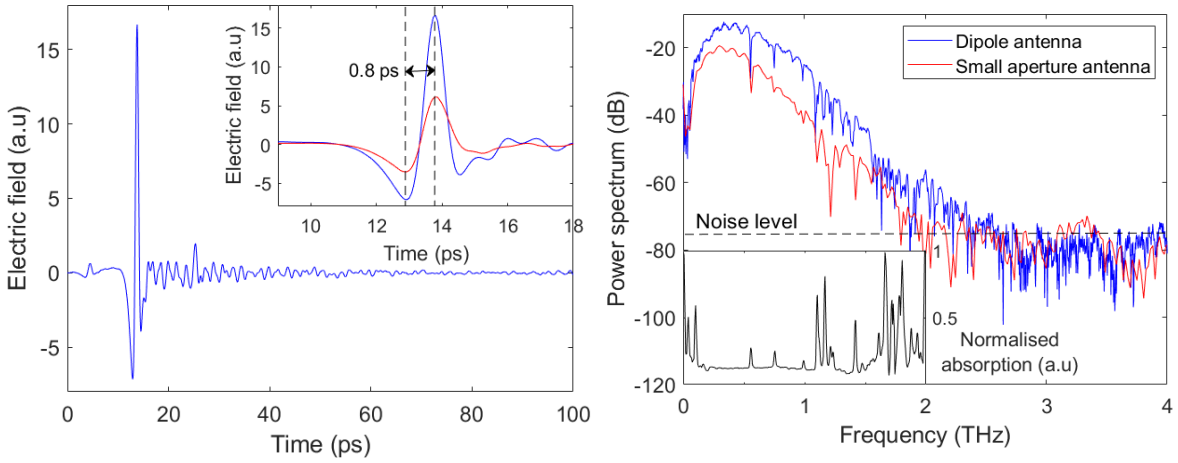


FIGURE 2.11 – a) Champ électrique temporel et b) puissance spectrale d'une impulsion THz ultra-courte générée avec une puissance optique de 15 mW et 15 V de tension. Signal obtenu avec l'antenne émettrice dipôle (bleu) ou à petite ouverture (rouge). L'antenne réceptrice est excitée par un faisceau optique de 12 mW. L'encart représente le coefficient normalisé de l'absorption de la vapeur d'eau (unités arbitraires).

La largeur spectrale obtenue après transformée de Fourier du signal atteint un peu plus de 2 THz, avec une dynamique d'environ 60 dB. Toutefois, au-delà de 2 THz, le spectre devient fortement dépendant de l'alignement du trajet THz. La complexité de cet alignement réduit la fiabilité des mesures à hautes fréquences. La pente de la décroissance spectrale, estimée à environ 25 GHz/dB, correspond aux données fournies par le fabricant, validant ainsi les performances du système dans la gamme 0 – 2 THz. D'autre part, des raies d'absorption, provoquées par la propagation du signal en air libre, peuvent être identifiées à 0.57, 0.75, 0.99, 1.1, 1.2 1.4, 1.6 et 1.8 THz. En guise de comparaison, le spectre d'absorption de la vapeur d'eau est tracé (encart) d'après les mesures réalisées par M. van Exter [74].

Enfin, l'amplitude et la dynamique du signal sont plus grandes pour l'émission THz via l'antenne dipôle (bleu) par rapport à l'antenne à petite ouverture (rouge). Cet écart peut signifier une différence d'efficacité de conversion optique - THz suivant la structure de l'antenne utilisée. Toutefois, cela pourrait également provenir d'une différence dans la directivité du rayonnement, dépendante de la distance entre les électrodes, et qui engendrerait une potentielle perte au niveau de la détection du signal.

Malgré cette plus faible efficacité, la suite des caractérisations expérimentales sont réalisées avec l'antenne à petite ouverture, pour cause d'un endommagement (claquage) de l'antenne dipôle utilisée pour l'émission THz.

2.4.3 Émission THz en fonction de la focalisation optique

L'efficacité de conversion optique - THz dépend directement du profil spatial optique incident sur l'antenne photo-conductrice. Ce profil est principalement déterminé par la lentille focale positionnée en amont de l'antenne photo-conductrice, qui conditionne la taille du faisceau optique et sa répartition sur la région active de l'antenne.

Un faisceau trop large ou avec un angle d'incidence non nul par rapport à la surface de l'antenne entraîne l'inefficacité d'une partie de sa puissance, soit car elle est réfléchie, soit car elle est absorbée hors de la zone de polarisation entre les électrodes, ce qui ne contribue pas à la génération du courant transitoire, et donc au rayonnement THz. À l'inverse, un faisceau fortement

focalisé entraîne une plus grande dépendance à l'alignement optique, et donc un risque supérieur d'instabilité du point focal.

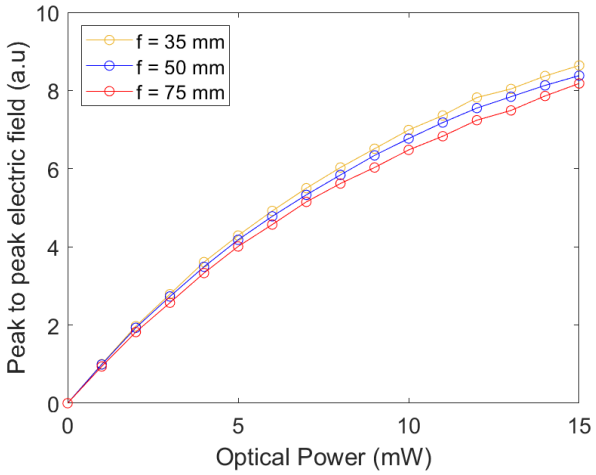


FIGURE 2.12 – Champ électrique THz crête à crête mesuré avec différentes focales utilisées pour focaliser la source optique sur l'antenne photo-conductrice. La tension de polarisation est appliquée à 25 V.

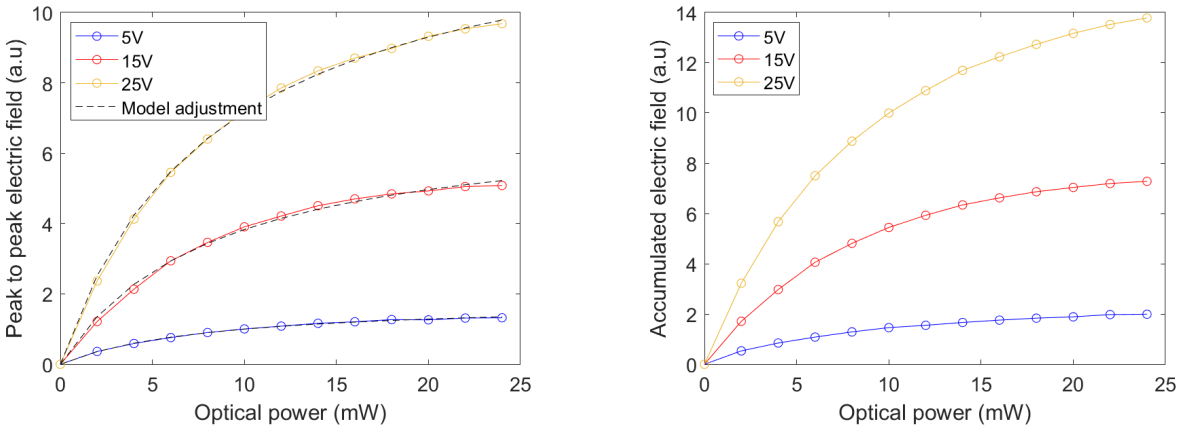
Pour évaluer ce compromis, des lentilles de différentes focales (35 mm, 50 mm 75 mm) ont été essayées expérimentalement (Figure 2.12), focalisant le faisceau gaussien, d'une largeur initiale d'environ 1.3 mm à mi-hauteur. Pour chaque lentille, le champ THz crête à crête à été mesuré en fonction de la puissance optique incidente. La lentille possédant une focale de 50 mm s'est révélée la plus adaptée pour l'obtention d'une conversion optique - THz efficace tout en conservant une robustesse de l'alignement optique. En comparaison, la lentille de 35 mm apporte des résultats d'émission THz légèrement supérieurs, mais introduit une instabilité notable sur l'alignement optique. D'autre part, la lentille de 75 mm ne maximise pas l'efficacité de conversion optique - THz, dû à un profil spatial trop large au point focal.

2.4.4 Émission THz en fonction de la puissance optique

Le champ électrique THz émis est ensuite étudié en fonction de deux paramètres distincts : la puissance optique incidente sur l'antenne émettrice et la tension de polarisation appliquée entre ses électrodes. Cette étude permet de caractériser le comportement non-linéaire de la génération THz, provenant notamment des phénomènes de saturation du courant.

La dépendance à la puissance optique montre l'impact de la saturation sur l'antenne (Figure 2.13) pour différentes valeurs de tension (5 V, 15 V et 25 V). Deux grandeurs sont extraites de la mesure du signal THz. La première, notée E_{p2p}, correspond à l'amplitude crête à crête du champ électrique temporel. Elle est définie comme la somme en valeur absolue du maximum et du minimum du signal mesuré. La deuxième grandeur, notée E_{tot}, correspond à l'intégrale temporelle du module du champ électrique $\int |E_{THz}| dt$. Contrairement à l'intégrale du module au carré $\int |E_{THz}|^2 dt$ représentant l'énergie, son évolution peut suivre les mêmes tendances que l'amplitude crête à crête, ce qui simplifie l'analyse du comportement en permettant une comparaison plus directe.

Ces deux grandeurs présentent un comportement similaire. En effet, la majorité de l'énergie est concentrée dans l'impulsion principale, et est donc grandement influencée par la saturation, dont l'effet est majoritairement présent au pic du signal. L'apport énergétique du reste de l'impulsion, bien que non saturé, ne joue pas un rôle notable sur l'énergie totale.



(a) (b)

FIGURE 2.13 – Mesures du champ électrique THz a) crête à crête et b) accumulé en valeur absolue, en fonction de la puissance optique pour différentes tensions de polarisation. Les courbes en tirets noirs représentent le modèle théorique ajusté aux mesures expérimentales.

À faible puissance optique, le champ THz suit une croissance linéaire, correspondant à une amplitude proportionnelle aux nombres de porteurs générés. Au-delà d'un seuil de puissance, comme décrit dans la partie théorique, l'effet d'écran induit une saturation progressive de la génération THz. Cela se manifeste par une limite de l'amplitude maximale pour de grandes puissances optiques. Ce comportement non-linéaire suit une courbe en accord avec l'ajustement aux valeurs expérimentales du modèle théorique en saturation faible (Équation 2.26), pour une puissance optique de saturation P_{sat} égale à 8.5 mW. Cette validité du modèle induit une différence entre les saturations réelles du courant (Figure 2.10) et de l'émission THz. Ce surplus de courant généré pour de hautes puissances optiques n'est donc pas une source d'émission THz, ce qui peut donc amener à conclure la présence d'un courant résiduel de longue durée.

2.4.5 Émission THz en fonction de la tension de polarisation

La dépendance du champ THz émis en fonction de la tension de polarisation appliquée entre les électrodes de l'antenne photoconductrice a également été étudiée (Figure 2.14) pour différentes valeurs de puissance optique (5 mW, 15 mW et 25 mW). Pour une meilleure lisibilité, les mesures du champ électrique sont également tracées en échelle logarithmique sur les deux axes (échelle log-log), ce qui permet de déterminer le degré de non-linéarité (valeur de la pente en échelle log-log).

À faible tension, jusqu'à environ 8 V, l'évolution observée de l'amplitude crête à crête est linéaire. Cette amplitude croît proportionnellement à la tension, ce qui est cohérent avec le principe de transport ohmique dans le semi-conducteur. À plus haute tension, une déviation du comportement linéaire est observée. Cette non-linéarité peut être décrite dans la documentation scientifique [73] par :

$$j = \frac{9}{8}\frac{QV^2}{d^3} \tag{2.35}$$

avec :
- $Q = q(\mu\tau + \mu_h\mu_h)\mu\mu_h g\frac{(\tau_h-\tau)}{\mu+\mu_h}$
- μ_h, la mobilité des trous.
- τ_h, le temps de vie des trous.
- g, le taux de photo-génération.

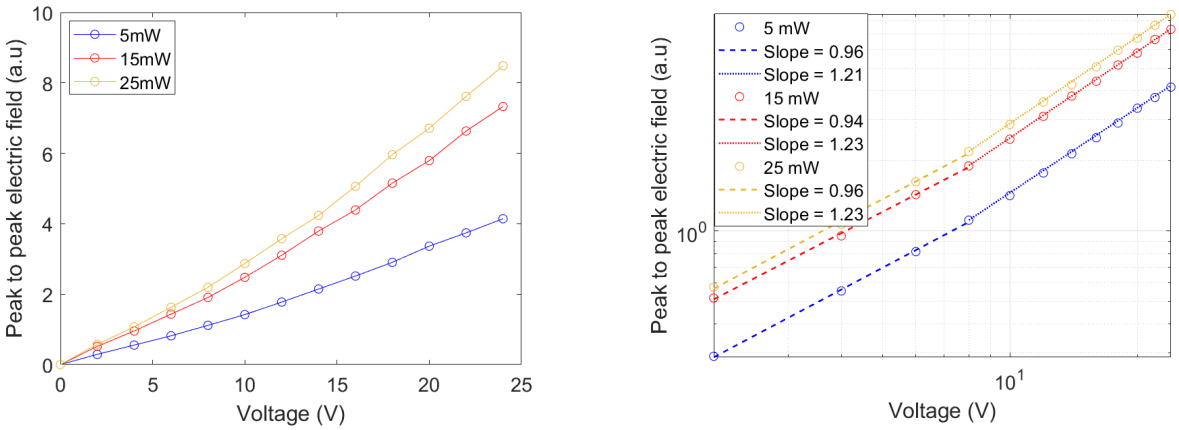


FIGURE 2.14 – Mesures du champ électrique THz crête à crête a) en échelle linéaire et b) en échelle log-log, en fonction de la tension pour différentes puissances optiques. Les courbes en pointillés et en tirets modélisent la pente ajustée aux mesures expérimentales, permettant d'obtenir leur degré de non-linéarité, dont la valeur est égale à celle de la pente.

Toutefois, la loi de puissance en tension de degré 2 n'est pas la même que celle observée ici, de degré 1.2. Cette différence pourrait être due au semi-conducteur utilisé, dont le dopage en bismuth et les défauts internes au semi-conducteur modifient ses caractéristiques. Une telle différence est expliquée dans le cas de la loi de Mott–Gurney [75], loi permettant de décrire le comportement du courant d'obscurité en fonction de la tension et de la mobilité des charges, et dont le comportement est similaire au phénomène observé.

Comme pour l'évolution en fonction de la puissance optique, celle en fonction de la tension diffère pour les hautes tensions entre photo-courant et amplitude du champ THz émis. Pour visualiser cette différence, les mesures du courant en fonction de la tension précédemment montrées en Figure 2.10 sont représentées en échelle log-log (Figure 2.15). L'ajustement linéaire pour les tensions élevées n'est ici plus en accord au courant obtenu pour les tensions les plus hautes, notamment pour des puissances optiques élevées. Cette déviation du courant, que l'on ne retrouve pas dans la mesure du champ électrique THz, indique que des phénomènes supplémentaires apportent la génération d'un courant à variation lente, et qui ne produit donc pas d'émission THz.

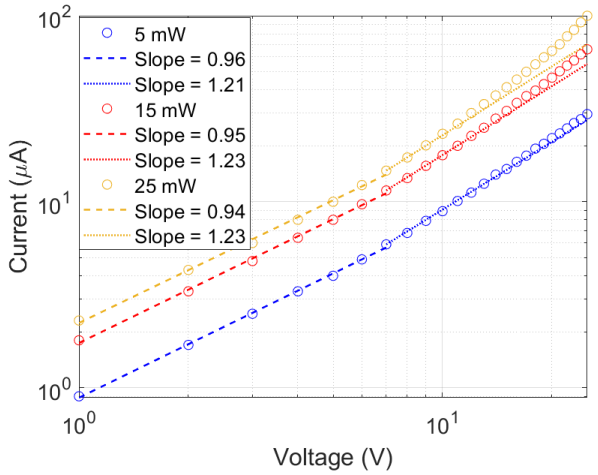


FIGURE 2.15 – Mesures du courant de l'antenne émettrice en fonction de la tension pour différentes puissances optiques. Les courbes en pointillés représentent les ajustements théoriques linéaires pour chaque loi de puissance.

2.5 Avantages et limitations

Les impulsions THz ultra-courtes présentées dans ce chapitre sont particulièrement intéressantes pour une large gamme d'applications. Leur faible durée permet un échantillonnage temporel haute résolution ainsi que des mesures THz-TDS rapides. Combiné à leur spectre large de plusieurs THz, cela confère aux impulsions THz ultra-courtes l'accès à des applications avancées d'imagerie et de spectroscopie. Notamment, ces caractéristiques rendent les impulsions THz idéales pour l'analyse de matériaux, l'identification de substances chimiques, ou encore l'imagerie biomédicale. Cependant, cette méthode de génération THz montre quelques limitations, ce qui restreint son utilisation dans certains contextes spécifiques.

Premièrement, la génération simultanée de l'ensemble du spectre THz (caractéristique d'une impulsion) implique une superposition temporelle des fréquences. Cette superposition temporelle empêche l'analyse isolée d'une seule fréquence dans le domaine temporel, et nécessite donc une analyse spectrale (via transformée de Fourier) pour extraire des informations sur les fréquences.

Deuxièmement, la durée ultra-courte des impulsions optiques utilisées pour l'excitation de l'antenne photo-conductrice induit en conséquence une puissance crête très élevée, même pour une puissance moyenne modérée. Cette forte puissance instantanée peut endommager les composants optiques sensibles tels que les fibres optiques et limite donc grandement la puissance moyenne utilisable.

Une autre limitation majeure est la saturation de l'antenne photo-conductrice pour de très faibles puissances optiques, ce qui impose un seuil maximal de puissance THz que l'antenne peut générer. Cette restriction peut être compensée par l'utilisation simultanée de plusieurs antennes en parallèle, afin de cumuler la puissance émise en une seule et intense onde THz. Toutefois, ces matrices d'antennes requièrent la distribution uniforme et simultanée de la source optique vers les antennes, via, par exemple, l'utilisation d'un réseau de démultiplexage (souvent fibré) [35]. Cela suppose une puissance initiale élevée avant la distribution optique, et donc un retour des risques d'endommagement liés à la forte puissance crête des impulsions.

Afin de pallier ces limitations, une méthode de génération THz alternative consiste à étirer temporellement les impulsions optiques. Cela apporte une réduction la puissance crête tout en maintenant l'énergie totale (et donc la puissance moyenne) constante. Toutefois, l'efficacité de génération THz dépend de la variation temporelle du courant photo-induit, ce que ne permet pas l'excitation lente d'une impulsion étirée temporellement. Pour conserver une efficacité élevée dans la gamme THz avec des impulsions longues, une technique de battement optique peut être utilisée. Deux impulsions optiques légèrement décalées en fréquence interfèrent sur l'antenne, et produisent une modulation rapide de l'intensité optique (et donc du courant), suffisante pour produire un rayonnement THz. Ce principe repose sur un mécanisme analogue au principe de photo-mélange utilisé dans les systèmes en régime continu. De plus, l'étirement de l'impulsion optique donne la possibilité de distribuer ses composantes fréquentielles temporellement. En conséquence, il est possible de produire un battement optique à fréquence temporellement modulable, ouvrant la voie à la génération d'une impulsion THz présentant une évolution temporelle de sa fréquence, et permettant ainsi une analyse directe des fréquences sans transformation vers le domaine spectral.

Dans le chapitre suivant, nous allons expliciter ce principe de photo-mélange, usuellement utilisé en régime continu, puis nous l'appliquerons à des impulsions longues en étudiant deux configurations différentes permettant la génération d'impulsions THz de longue durée présentant un spectre quasi-monochromatique ou à large bande.

2.6 Bibliography

[1] P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss. Subpicosecond photoconducting dipole antennas. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(2) :255–260, 1988. 19

[2] M. R. Stone, M. Naftaly, R. E. Miles, J. R. Fletcher, and D. P. Steenson. Electrical and radiation characteristics of semilarge photoconductive terahertz emitters. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 52(10) :2420–2429, 2004.

[3] M. Reid and R. Fedosejevs. Quantitative comparison of terahertz emission from (100) InAs surfaces and a GaAs large-aperture photoconductive switch at high fluences. *Applied Optics*, 44(1) :149–53, 2005.

[4] E. Isgandarov, X. Ropagnol, M. Singh, and T. Ozaki. Intense terahertz generation from photoconductive antennas. *Frontiers of Optoelectronics*, 14 :64–93, 2021. 19

[5] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis. Photomixing up to 3.8 THz in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 66 :285–287, 1995. 19

[6] S. Verghese, K. A. McIntosh, S. Calawa, W. F. Dinatale, and K. A. Duerr, E. K. and. Molvar. Generation and detection of coherent terahertz waves using two photomixers. *Applied Physics Letters*, 73 :3824–3826, 1998.

[7] S. Preu, G. H. Döhler, S. malzer, L. J. Wang, and A. C. Gossard. Tunable, continuous-wave terahertz photomixer sources and applications. *Journal of Applied Physics*, 109 :061301, 2011.

[8] N. Chimot, J. Mangeney, P. Crozat, J. M. Lourtioz, K. Blary, J. F. Lampin, G. Mouret, D. Bigourd, and E. Fertein. Photomixing at 1.55 µm in ion-irradiated $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ on InP. *Optics Express*, 14 :1856–1861, 2006.

[9] P. Ourednik, D. Theiner, G. Picco, K. Unterrainer, and M. Feiginov. Dynamic range limitations of non-coherent continuous-wave THz photomixing systems with broadband detectors. *Optics Express*, 32 :38344–38357, 2024. 19

[10] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, and C. Fattinger. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *Journal of the Optical Society of America B*, pages 2006–2015, 1990. 20

[11] M. Currie. 5 - low-temperature grown gallium arsenide (LT-GaAs) high-speed detectors. In *Photodetectors*, pages 121–155. Woodhead Publishing, 2016. 20

[12] S. Alfihed, I. G. Foulds, and J. F. Holzman. Characteristics of bow-tie antenna structures for semi-insulating GaAs and InP photoconductive terahertz emitters. *Sensors*, 21(9), 2021. 20

[13] X. Ropagnol, F. Blanchard, T. Ozaki, and M. Reid. Intense terahertz generation at low frequencies using an interdigitated ZnSe large aperture photoconductive antenna. *Applied Physics Letters*, 103(16) :161108, 2013. 20

[14] T. V. Kononenko, K. K. Ashikkalieva, V. V. Kononenko, E. V. Zavedeev, M. A. Dezhkina, M. S. Komlenok, E. E. Ashkinazi, V. V. Bukin, and V. I. Konov. Diamond photoconductive antenna for terahertz generation equipped with buried graphite electrodes. *Photonics*, 10(1), 2023. 20

[15] W. Shi, L. Hou, Z. Liu, and T. Tongue. Terahertz generation from SI-GaAs stripline antenna with different structural parameters. *Journal of the Optical Society of America B*, 26 :A107–A112, 2009. 21

[16] R. B. Kohlhaas, S. Breuer, L. Liebermeister, S. Nellen, M. Deumer, M. Schell, M. P. Semtsiv, W. T. Masselink, and B. Globisch. 637 µW emitted terahertz power from photoconductive antennas based on rhodium doped InGaAs. *Applied Physics Letters*, 117(13) :131105, 2020. 21

[17] S. Winnerl, F. Peter, S. Nitsche, A. Dreyhaupt, B. Zimmermann, M. Wagner, H. Schneider, M. Helm, and K. Kohler. Generation and detection of THz radiation with scalable antennas based on GaAs substrates with different carrier lifetimes. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 14(2) :449–457, 2008. 21

[18] K. Bertulis, A. Krotkus, G. Aleksejenko, V. Pačebutas, R. Adomavičius, G. Molis, and S. Marcinkevičius. GaBiAs : A material for optoelectronic terahertz devices. *Applied Physics Letters*, 88(20) :201112, 2006. 21, 33

[19] N. Chimot, J. Mangeney, P. Mounaix, M. Tondusson, K. Blary, and J. F. Lampin. Terahertz radiation generated and detected by Br_+-irradiated $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ photoconductive antenna excited at 800nm wavelength. *Applied Physics Letters*, 89(8) :083519, 2006. 21

[20] J. Mangeney, N. Chimot, L. Meignien, N. Zerounian, P. Crozat, K. Blary, J. F. Lampin, and P. Mounaix. Emission characteristics of ion-irradiated $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ based photoconductive antennas excited at 1.55 µm. *Optics Express*, 15(14) :8943–8950, 2007. 21

[21] A. E. Yachmenev, S. S. Pushkarev, R. R. Reznik, R. A. Khabibullin, and D. S. Ponomarev. Arsenides-and related III-V materials-based multilayered structures for terahertz applications : Various designs and growth technology. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 66(2) :100485, 2020. 21

[22] C. W. Berry, M. R. Hashemi, and M. Jarrahi. Generation of high power pulsed terahertz radiation using a plasmonic photoconductive emitter array with logarithmic spiral antennas. *Applied Physics Letters*, 104(8) :081122, 2014. 21

[23] H. Liu, S. Sun, L. Zheng, G. Wang, W. Tian, D. Zhang, H. Han, J. Zhu, and Z. Wei. Review of laser-diode pumped Ti= :sapphire laser. *Microwave and Optical Technology Letters*, 63(8) :2135–2144, 2021. 21

[24] S. Moon, A. Lin, B. H. Kim, P. R. Watekar, and W.-T. Han. Linear and nonlinear optical properties of the optical fiber doped with silicon nano-particles. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 354(2) :602–606, 2008. 21

[25] S. Barbieri, P. Gellie, G. Santarelli, L. Ding, W. Maineult, C. Sirtori, R. Colombelli, H. Beere, and D. Ritchie. Phase-locking of a 2.7-THz quantum cascade laser to a mode-locked erbium-doped fibre laser. *Nature Photon*, 4 :636–640, 2010. 21

[26] M. R. K. Soltanian, I. S. Amiri, S. E. Alavi, and H. Ahmad. Dual-wavelength erbium-doped fiber laser to generate terahertz radiation using photonic crystal fiber. *Journal of Lightwave Technology*, 33(24) :5038–5046, 2015. 21

[27] D. R. Zimmerman and L. H. Spiekman. Amplifiers for the masses :EDFA, EDWA, and SOA amplets for metro and access applications. *Journal of Lightwave Technology*, 22(1) :63, 2004. 21

[28] A. Sciuto, S. Libertino, S. Coffa, and G. Coppola. Miniaturizable Si-based electro-optical modulator working at 1.5 µm. *Applied Physics Letters*, 86(20) :201115, 2005. 21

[29] M. Martin and E. Brown. Critical comparison of GaAs and InGaAs thz photoconductors. *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 8261, 2012. 21

[30] A. Singh, A. Pashkin, S. Winnerl, M. Welsch, C. Beckh, P. Sulzer, A. Leitenstorfer, M. Helm, and H. Schneider. Up to 70 THz bandwidth from an implanted Ge photoconductive antenna excited by a femtosecond Er :fibre laser. *Light : Science & Applications*, 9 :30, 2020. 21

[31] M. S. Kong, J. S. Kim, S. P. Han, N. Kim, K. Moon, K. H. Park, and M. Y. Jeon. Terahertz radiation using log-spiral-based low-temperature-grown InGaAs photoconductive antenna pumped by mode-locked Yb-doped fiber laser. *Optics Express*, 24(7) :7037–7045, 2016. 21

[32] T. Vogel, S. Mansourzadeh, U. Nandi, J. Norman, S. Preu, and C. J. Saraceno. Performance of photoconductive receivers at 1030 nm excited by high average power THz pulses. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 14(2) :139–151, 2024.

[33] R. J. B. Dietz, R. Wilk, B. Globisch, H. Roehle, D. Stanze, S. Ullrich, S. Schumann, N. Born, M. Koch, B. Sartorius, and M. Schell. Low temperature grown Be-doped InGaAs/InAlAs photoconductive antennas excited at 1030 nm. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 34 :231–237, 2013. 21

[34] W. F. Krupke. Ytterbium solid-state lasers. the first decade. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 6(6) :1287–1296, 2000. 21

[35] A. Brahm, A. Wilms, R. J. B. Dietz, T. Göbel, M. Schell, G. Notni, and A. Tünnermann. Multichannel terahertz time-domain spectroscopy system at 1030 nm excitation wavelength. *Optics Express*, 22 :12982, 2014. 22, 40

[36] C. Baker, I. S. Gregory, W. R. Tribe, I. V. Bradley, M. J. Evans, E. H. Linfield, and M. Missous. Highly resistive annealed low-temperature-grown InGaAs with sub-500fs carrier lifetimes. *Applied Physics Letters*, 85(21) :4965–4967, 2004. 22

[37] V. Pačebutas, A. Bičiūnas, S. Balakauskas, A. Krotkus, G. Andriukaitis, D. Lorenc, A. Pugžlys, and A. Baltuška. Terahertz time-domain-spectroscopy system based on femtosecond Yb :fiber laser and GaBiAs photoconducting components. *Applied Physics Letters*, 97(3) :031111, 2010. 22, 33

[38] T. Vogel, S. Mansourzadeh, U. Nandi, J. Norman, S. Preu, and C. J. Saraceno. Performance of photoconductive receivers at 1030 nm excited by high average power THz pulses. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 14(2) :139–151, 2024. 22

[39] M. Khalili, T. Vogel, Y. Wang, S. Mansourzadeh, A. Singh, S. Winnerl, and C. J. Saraceno. Microstructured large-area photoconductive terahertz emitters driven at high average power. *Optics Express*, 32(13) :22955–22969, 2024. 22

[40] M. Khalili, Y. Wang, S. Winnerl, and C. J. Saraceno. High-power single-cycle THz emission from large-area photoconductive emitters at 400 kHz. *Optics Letters*, 50(7) :2141–2144, 2025. 22

[41] Y. He, Y. Chen, L. Zhang, S.-W. Wong, and Z. N. Chen. An overview of terahertz antennas. *China Communications*, 17(7) :124–165, 2020. 22

[42] I. Malhotra, K. R. Jha, and G. Singh. Terahertz antenna technology for imaging applications : a technical review. *International Journal of Microwave and Wireless Technologies*, 10(3) :271–290, 2018. 22

[43] E. Budiarto, N.-W. Pu, S. Jeong, and J. Bokor. Near-field propagation of terahertz pulses from a large-aperture antenna. *Optics Letters*, 23(3) :213–215, 1998. 22

[44] X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, and M. Reid. Towards high-power terahertz emitters using large aperture ZnSe photoconductive antennas. In *CLEO/QELS : 2010 Laser Science to Photonic Applications*, pages 1–2, 2010. 22

[45] T. K. Nguyen and I. Park. Effects of antenna design parameters on the characteristics of a terahertz coplanar stripline dipole antenna. *Progress In Electromagnetics Research M*, 28 :129–143, 2013. 22

[46] K. Ikamas, D. Čibiraitė, A. Lisauskas, M. Bauer, V. Krozer, and H. G. Roskos. Broadband terahertz power detectors based on 90-nm silicon CMOS transistors with flat responsivity up to 2.2 THz. *IEEE Electron Device Letters*, 39(9) :1413–1416, 2018. 23

[47] W. Guo, L. Wang, X. Chen, C. Liu, W. Tang, C. Guo, J. Wang, and W. Lu. Graphene-based broadband terahertz detector integrated with a square-spiral antenna. *Optics Letters*, 43(8) :1647–1650, 2018. 23

[48] M. Yu, H. Geng, S. Jiang, T. Hua, D. An, W. Xu, Z. N. Chen, J. Li, H. Wang, J. Chen, and P. Wu. Bowtie loaded meander antenna for a high-temperature superconducting terahertz detector and its characterization by the Josephson effect. *Optics Express*, 28(10) :14271–14279, 2020. 23

[49] R. Mendis, C. Sydlo, J. Sigmund, M. Feiginov, P. Meissner, and H. L. Hartnagel. Tunable cw-THz system with a log-periodic photoconductive emitter. *Solid-State Electronics*, 48(10) :2041–2045, 2004. 23

[50] M. Tonouchi and H. Saijo. Terahertz radiation from YBCO thin film log-periodic antennas. *Journal of Superconductivity*, 16 :867–871, 2003. 23

[51] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding. Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas. *Journal of the Optical Society of America B*, 13 :2424–2436, 1996. 23

[52] N. Khiabani, Y. Huang, Y.-C. Shen, and S. Boyes. Theoretical modeling of a photoconductive antenna in a terahertz pulsed system. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 61(4) :1538–1546, 2013. 23

[53] P. K. Benicewicz, J. P. Roberts, and A. J. Taylor. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased photoconductors. *Journal of the Optical Society of America B*, 11 :2533–2546, 1994. 25

[54] A. J. Taylor, P. K. Benicewicz, and S. M. Young. Modeling of femtosecond electromagnetic pulses from large-aperture photoconductors. *Optics Letters*, 18(16) :1340–1342, 1993. 25

[55] D. Liu and J. Qin. Carrier dynamics of terahertz emission from low-temperature-grown GaAs. *Applied Optics*, 42(18) :3678–3683, 2003.

[56] F. E. Doany, D. Grischkowsky, and C.-C Chi. Carrier lifetime versus ion-implantation dose in silicon on sapphire. *Applied Physics Letters*, 50 :460–462, 1987.

[57] S. Gupta, J. Pamulapati, J. Chwalek, P. K. Bhattacharya, and G. Mourou. Sub-picosecond photoconductivity in III-V compound semiconductors using low temperature MBE growth techniques. In *Ultrafast Phenomena*. Optica Publishing Group, 1990. 25

[58] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith. Picosecond photconducting hertzian dipoles. *Applied Physics Letters*, 45(3) :284–286, 1984. 25

[59] D. Liu and J. Qin. Carrier dynamics of terahertz emission from low-temperature-grown GaAs. *Applied Optics*, 42(18) :3678–3683, 2003. 27

[60] J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and J. D. Morse. Saturation properties of large-aperture photoconducting antennas. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(6) :1607–1616, 1992. 27

[61] LIGHT CONVERSION. FLINT high repetition rate lasers. *https ://lightcon.com/products/flint-high-repetition-rate-lasers/*. 32

[62] Teravil. Free space terahertz emitter. *https ://www.teravil.lt/emitter.php*. 33

[63] V. Pačebutas, K. Bertulis, G. Aleksejenko, and A. Krotkus. Molecular-beam-epitaxy grown GaBiAs for terahertz optoelectronic applications. *Journal of Materials Science : Materials in Electronics*, 20 :363–366, 2009. 33

[64] K. Radhanpura, S. Hargreaves, R. A. Lewis, and M. Henini. The role of optical rectification in the generation of terahertz radiation from GaBiAs. *Applied Physics Letters*, 94(25) :251115, 2009.

[65] A. Arlauskas, P. Svidovsky, K. Bertulis, R. Adomavičius, and A. Krotkus. GaAsBi photoconductive terahertz detector sensitivity at long excitation wavelengths. *Applied Physics Express*, 5(2) :022601, 2012.

[66] B. Heshmat, M. Masnadi-Shirazi, R. B. Lewis, J. Zhang, T. Tiedje, R. Gordon, and T. E. Darcie. Enhanced terahertz bandwidth and power from GaAsBi-based sources. *Advanced Optical Materials*, 1(10) :714–719, 2013.

[67] S. A. Savinov, K. K. Nagaraja, Yu. A. Mityagin, P. A. Danilov, S. I. Kudryashov, A. A. Ionin, I. P. Kazakov, V. I. Tsekhosh, R. A. Khmelnitsky, V. I. Egorkin, and M. P. Telenkov. Investigation of GaAsBi epitaxial layers for THz emitters pumped by long-wavelength fiber lasers. *Optical Materials*, 101 :109716, 2020.

[68] C. C. Bomberger, J. Nieto-Pescador, M. R. Lewis, B. E. Tew, Y. Wang, D. B. Chase, L. Gundlach, and J. M. O. Zide. Growth and characterization of ErAs :$GaBi_xAs_{1-x}$. *Applied Physics Letters*, 109(17) :172103, 2016. 33

[69] V. Pačebutas, S. Stanionytė, R. Norkus, A. Bičiūnas, A. Urbanowicz, and A. Krotkus. Terahertz pulse emission from GaInAsBi. *Journal of Applied Physics*, 125(17) :174507, 2019. 33

[70] Y. Zhong, P. B. Dongmo, J. P. Petropoulos, and J. M. O. Zide. Effects of molecular beam epitaxy growth conditions on composition and optical properties of $In_xGa_{1-x}Bi_yAs_{1-y}$. *Applied Physics Letters*, 100(11) :112110, 2012.

[71] V. Pačebutas, A. Urbanowicz, P. Cicėnas, S. Stanionytė, A. Bičiūnas, I. Nevinskas, and A. Krotkus. Growth and characterization of quaternary (GaIn)(AsBi) layers for optoelectronic terahertz detector applications. *Semiconductor Science and Technology*, 30(9) :094012, 2015.

[72] A. Urbanowicz, V. Pačebutas, A. Geižutis, S. Stanionytė, and A. Krotkus. Terahertz time-domain-spectroscopy system based on 1.55 µm fiber laser and photoconductive antennas from dilute bismides. *AIP Advances*, 6(2) :025218, 2016. 33

[73] E. R. Brown, K. A. McIntosh, F. W. Smith, K. B. Nichols, M. J. Manfra, C. L. Dennis, and J. P. Mattia. Milliwatt output levels and superquadratic bias dependence in a low-temperature-grown GaAs photomixer. *Applied Physics Letters*, 64(24) :3311–3313, 1994. 34, 38

[74] M. van Exter, C. Fattinger, and D. Grischkowsky. Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor. *Optics Letters*, 14(20) :1128–1130, 1989. 36

[75] J. A Röhr, D. Moia, S. A Haque, T. Kirchartz, and J. Nelson. Exploring the validity and limitations of the Mott–Gurney law for charge-carrier mobility determination of semiconducting thin-films. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 30(10) :105901, 2018. 39

Chapitre 3

Génération THz par Photo-mélange

3.1 Photo-mélange de lasers à ondes continues

Bien que le principe de photo-mélange ait été évoqué dès les années 60s [1], sa mise en œuvre pour la génération d'ondes THz prend ses racines vers les années 90s [2], quelques années après le développement de la génération THz par impulsions ultra-courtes. Ce processus de génération permet l'utilisation de lasers à ondes continues (CW pour continuous wave), étendant le champ d'application des antennes photo-conductrices [3–8].

Le principe de ce procédé repose sur la modulation de l'intensité optique incidente, de manière à imposer au courant une variation périodique rapide en temps. Pour ce faire, la superposition de deux lasers à ondes continues, dont la différence de pulsation $\omega = \omega_1 - \omega_2$ (avec $\omega_1 > \omega_2$) se situe dans le domaine THz, génère un battement optique au niveau de l'antenne. Ce battement entraîne une excitation périodique des électrons dans le semi-conducteur à cette fréquence THz, et l'émission du champ électrique qui en résulte est donc elle aussi modulée. L'onde THz est ainsi continue et monochromatique, et sa fréquence peut être ajustée en réglant celle de l'une des deux sources lasers.

Ces propriétés appartenant aux ondes continues offrent une excellente résolution spectrale, avec des démonstrations d'instabilité de fréquence (correspondant à la fraction de la fluctuation fréquentielle sur la fréquence centrale $\frac{\Delta f}{f}$) de seulement 4.4×10^{-15} pour 1 s d'intégration [9], ce qui équivaut à un bruit de mesure de 4.4 mHz pour une fréquence émise à 1 THz. De même pour l'accordabilité de la fréquence générée, avec des pas pouvant descendre à un ordre de grandeur de la dizaine de Hz [10], ce qui fait de ce processus de génération un choix particulièrement intéressant pour de la spectroscopie THz haute résolution.

Les source THz utilisées pour ce procédé, nommées photo-mélangeurs, sont similaires aux sources THz utilisées en régime impulsionnel, mais priorisent certaines caractéristiques telles que la faible accumulation de la température (importante dans le cas d'une excitation continue) ou la large bande spectrale pour permettre une grande accordabilité de la fréquence émise. Pour cela, certains éléments peuvent être cités comme les antennes à structure spirale [11], les diodes UTC [12] ou encore les composants à onde progressive [13, 14].

3.1.1 Théorie

La source optique incidente sur l'antenne pour le processus de photo-mélange est composée de deux champs électriques monochromatiques de même polarisation linéaire, $\mathrm{E}(t) = \mathrm{E}_1(t) + \mathrm{E}_2(t)$ tel que :

$$\mathrm{E}_1(t) = \mathrm{E}_1 cos(\omega_1 t) \tag{3.1}$$

$$E_2(t) = E_2 cos(\omega_2 t) \tag{3.2}$$

avec :
- ω_1 et ω_2, les pulsations respectives des deux sources.
- E_1 et E_2, les amplitudes respectives des deux champs électriques.

Cette source optique est traduite en une puissance optique sur l'antenne qui s'exprime via le vecteur de Poynting :

$$\vec{\Pi}(t) = \frac{\vec{E}(t) \wedge \vec{B}(t)}{\mu_0} = \frac{E(t)B(t)}{\mu_0}\vec{e_z} \qquad : \qquad [W.m^{-2}] \tag{3.3}$$

avec :
- $\vec{\Pi}(t)$, la densité surfacique de puissance à un instant t.
- $\vec{B}(t)$, le champ magnétique de l'onde.
- μ_0, la perméabilité du vide.

Les termes suivant peuvent être réécrits comme :

$$\begin{cases} E(t) = cB(t) \\ \mu_0 = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \end{cases} \tag{3.4}$$

Ce qui donne :

$$\Pi(t) = \epsilon_0 c|E(t)|^2 \tag{3.5}$$

En intégrant $\Pi(t)$ sur la surface totale du rayonnement Σ, la puissance optique $P_{opt}(t)$ est obtenue :

$$P_{opt}(t) = \int \Pi(t) d\Sigma = \epsilon_0 c \Sigma |E(t)|^2 \qquad : \qquad [W] \tag{3.6}$$

avec $d\Sigma$, la surface élémentaire du rayonnement.

Ici, la surface Σ effective est supposée égale aux dimensions de l'antenne Ll (Figure 2.3). Aussi, le champ électrique total $E(t)$ incident sur le photoconducteur est la somme des deux champs électrique $E_1(t)$ et $E_2(t)$, ce qui donne une puissance optique appliquée sur l'antenne :

$$P_{opt}(t) = \epsilon_0 c L l |E_1(t) + E_2(t)|^2 \tag{3.7}$$

Le terme $|E_1(t) + E_2(t)|^2$ peut ensuite être développé comme égal à :

$$E_1^2 \frac{1 + cos(2\omega_1 t)}{2} + E_2^2 \frac{1 + cos(2\omega_2 t)}{2} + E_1 E_2 cos\Big((\omega_1 + \omega_2) t\Big) + E_1 E_2 cos\Big((\omega_1 - \omega_2) t\Big) \tag{3.8}$$

Cette expression présente plusieurs termes modulés à différentes fréquences. La réponse du semi-conducteur filtre les modulations aux fréquences optiques ($2\omega_1, 2\omega_2$ et $\omega_1 + \omega_2$), ce qui permet d'écrire une simplification de la puissance optique :

$$P_{opt}(t) = \epsilon_0 c L l \Big[\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} + E_1 E_2 cos(\omega t) \Big] \tag{3.9}$$

avec $\omega = \omega_1 - \omega_2$, la pulsation du battement optique.

Ici, la puissance optique est composée d'un terme constant $\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2}$ et d'un terme oscillant à la fréquence THz, $E_1 E_2 cos(\omega t)$. Cette puissance optique, suite à son absorption par l'antenne photo-conductrice, génère une densité de porteurs de charge $n(t)$ (Équation 2.8) :

$$n(t) = K' e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} \left[\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} + E_1 E_2 cos(\omega t') \right] e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \qquad : \qquad [m^{-3}] \tag{3.10}$$

avec $K' = \epsilon_0 c L l K$: $[V^{-2} s^{-1}.m^{-1}]$.

En séparant les termes à intégrer, la composante constante devient :

$$K' e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} \left[\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} \right] e^{\frac{t'}{\tau}} dt' = K' e^{-\frac{t}{\tau}} \left[\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} \right] \tau e^{\frac{t}{\tau}} = \left[\frac{E_1^2}{2} + \frac{E_2^2}{2} \right] \tau \tag{3.11}$$

Pour la composante modulée, le cosinus peut être développé en utilisant les équations d'Euler :

$$K' e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} E_1 E_2 cos(\omega t') e^{\frac{t'}{\tau}} dt' = E_1 E_2 K' e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} \frac{e^{t(i\omega + \frac{1}{\tau})} + e^{t(-i\omega + \frac{1}{\tau})}}{2} dt' \tag{3.12}$$

$$= \frac{E_1 E_2 K' e^{-\frac{t}{\tau}}}{2(\frac{1}{\tau^2} + \omega^2)} \left[(-i\omega + \frac{1}{\tau}) e^{t(i\omega + \frac{1}{\tau})} + (i\omega + \frac{1}{\tau}) e^{t(-i\omega + \frac{1}{\tau})} \right] \tag{3.13}$$

$$= \frac{E_1 E_2 K'}{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2} \left[\frac{1}{\tau} cos(\omega t) + \omega sin(\omega t) \right]$$

Ces deux termes modulés peuvent ensuite être simplifiés en un seul cosinus :

$$\frac{1}{\tau} cos(\omega t) + \omega sin(\omega t) = \sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2} sin\left(\omega t + atan(\frac{1}{\omega \tau}) \right) \tag{3.14}$$

Une phase constante $atan(\frac{1}{\omega\tau})$ est dès lors introduite. La densité de porteurs de charge totale n(t) donne ainsi :

$$n(t) = K' \left[\tau \frac{E_1^2 + E_2^2}{2} + \frac{E_1 E_2}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} sin\left(\omega t + atan(\frac{1}{\omega \tau}) \right) \right] \tag{3.15}$$

Enfin, le champ électrique THz lointain $E_{THz}(t)$ étant proportionnel à la dérivée temporelle de la densité de porteurs de charge $\frac{dn(t)}{dt}$ (Équation 2.13), alors :

$$E_{THz} \propto \frac{\omega K' E_1 E_2}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\left(\omega t + atan(\frac{1}{\omega \tau}) \right) \tag{3.16}$$

Le rayonnement THz est ainsi décrit comme un signal continu et modulé à la pulsation ω, fréquence de battement entre les deux sources optiques.

Le facteur $\frac{\omega}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}}$ apporte un filtre passe-haut avec une fréquence angulaire de coupure $\omega_c = \frac{1}{\tau}$. En pratique, d'autres facteurs dépendants de τ peuvent potentiellement affecter l'efficacité

d'émission, voir endommager l'antenne (échauffement, courant continu, etc.), nécessitant alors un compromis avec un temps de vie plus court [15]. De même, cette composante se traduit également par un filtre passe-haut en fonction de la fréquence émise. Toutefois, la réponse du système (matériau, structure de l'antenne, etc.) applique également un filtre passe-bande, limitant la génération des hautes fréquences.

3.2 Façonnage de sources impulsionnelles

Bien qu'offrant une pureté spectrale élevée, les sources optiques à ondes continues ne permettent pas la génération d'un spectre large sur un temps court, caractéristique propre aux sources impulsionnelles. Certaines techniques basées sur le principe FMCW (Frequency-Modulated Continuous Wave) ont été développées comme alternative, ouvrant la voie à la génération THz de rampes de fréquences en fonction du temps [16–19]. Cette méthode consiste à faire varier temporellement la fréquence de l'une des deux sources optique continues, ce qui se répercute directement sur la fréquence THz du battement optique $\omega(t) = \omega_1 - \omega_2(t)$. Toutefois, les réalisations expérimentales actuelles sont limitées à des rampes de l'ordre de la milliseconde en termes de durée, temps encore long comparé au régime impulsionnel. De plus, la nécessité de combiner deux sources optiques pour la réalisation du photo-mélange complexifie la mise en place du système.

Une autre approche repose sur l'utilisation d'impulsions optiques au lieu d'ondes continues pour le processus de photo-mélange. Cette combinaison des deux méthodes de génération constitue un compromis entre les avantages et inconvénients des régimes continus et impulsionnels. Le processus de photo-mélange permet l'utilisation d'impulsions optiques étirées en temps, ce qui réduit leur puissance crête en amont de l'antenne, paramètre important pour réduire les risques d'endommagement du système optique, et permettre l'application de plus fortes énergies, et donc de puissances moyennes. Cet étirement temporel est réalisé par introduction d'une dérive de fréquence, permettant à la fois d'allonger l'impulsion et d'apporter une distribution temporelle aux composantes fréquentielles, condition nécessaire à la réalisation du processus de photo-mélange dans un régime impulsionnel large spectre pour la génération THz. Aussi, contrairement au régime continu, les deux impulsions optiques peuvent provenir d'une même source optique, ce qui simplifie l'accès à l'utilisation du processus de photo-mélange.

Au cours des vingt dernières années, quelques études ont exploré l'application du photo-mélange à des sources impulsionnelles [20–27]. Ces travaux, encore relativement peu nombreux, se focalisent sur la génération d'ondes THz quasi-continues quasi-monochromatiques, ce qui correspond à des impulsions THz de longues durées avec un spectre fin, centré sur la fréquence du battement optique.

Après avoir défini le concept de dérive de fréquences, les impulsions étirées en temps seront appliquées au processus de photo-mélange. En premier lieu, la génération d'impulsions THz quasi-continues et quasi-monochromatiques sera étudiée, permettant un comparatif avec le processus en régime continu, puis la génération d'impulsions quasi-continues à spectre large, semblables aux techniques FMCW, sera mise en œuvre.

3.2.1 Impulsions optiques à dérive de fréquence

Les impulsions optiques à dérives de fréquences ou, par anglicisme, impulsions optiques chirpées, sont des impulsions auxquelles est introduite une phase spectrale au champ électrique [28]. Le champ complexe de l'impulsion s'écrit ainsi :

$$E(\omega_{opt}) = \frac{E_\omega}{2} e^{\frac{-t_\Delta^2}{8ln2}(\omega_{opt}-\omega_0)^2} e^{-i\phi(\omega_{opt})} + CC \tag{3.17}$$

avec :
- CC, le conjugué complexe.
- E_ω, l'amplitude du champ électrique dans sa forme spectrale.
- $e^{\frac{-t_\Delta^2}{8ln2}(\omega_{opt}-\omega_0)^2}$, la forme spectrale gaussienne centrée à la fréquence ω_0.
- t_Δ, la durée de l'impulsion à mi-hauteur.
- $\phi(\omega_{opt})$, la phase spectrale en fonction de la pulsation ω_{opt}.

Cette phase spectrale se répercute sur l'amplitude et le déphasage temporels des différentes fréquences qui composent l'impulsion optique. Pour la décrire plus précisément, il est possible de faire un développement en série de Taylor :

$$\phi(\omega_{opt}) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\phi^{(k)}(\omega_0)}{k!} (\omega_{opt} - \omega_0)^k \tag{3.18}$$

Le déphasage se manifeste temporellement sous différentes caractéristiques en fonction de l'ordre k de la phase spectrale introduite :

- Une phase d'ordre 1 ajoute un retard indépendant de la fréquence. Cela résulte en l'apport d'un délai constant à l'enveloppe de l'impulsion. Ce phénomène est défini comme le retard de groupe et s'exprime :

$$\tau_g = \frac{d\phi}{d\omega_{opt}}(\omega_0) = \phi'(\omega_0) \qquad : \qquad [s] \tag{3.19}$$

- Une phase d'ordre 2 ajoute un retard proportionnel à la fréquence. Cet apport linéaire sépare les fréquences temporellement, et cause dès lors un étirement temporel de l'impulsion ainsi qu'une distribution temporelle des fréquences linéaires. Définie comme le retard de phase, son expression est donnée comme :

$$\tau_\phi = \frac{d\phi}{d\omega_{opt}}(\omega_0) = \phi''(\omega_0)(\omega - \omega_0) \qquad : \qquad [s] \tag{3.20}$$

- Une phase d'ordre 3 ou supérieure apporte une distribution non linéaire, d'un ordre k-1 par rapport à celui de la phase spectrale.

L'introduction d'une phase spectrale permet ainsi de façonner temporellement l'impulsion optique avec un contrôle sur la distribution des fréquences instantanées. Pour la suite, nous nous concentrerons sur des phases d'ordre 1 et 2 pour rester dans des configurations de distributions linéaires.

Temporellement, le champ complexe d'une impulsion optique gaussienne chirpée linéairement par une phase d'ordre 2, ϕ'', s'exprime :

$$E^+(t) = E e^{-\alpha t^2} e^{i\omega_0 t} e^{i(at^2-\epsilon)} \tag{3.21}$$

avec :

$$E = \frac{E_0}{2\gamma^{\frac{1}{4}}} \quad ; \quad \alpha = \frac{1}{4\beta\gamma} \quad ; \quad a = \frac{\phi''}{8\beta^2\gamma} \quad ; \quad \beta = \frac{t_\Delta^2}{8ln2} \quad ; \quad \gamma = 1 + \frac{\phi''^2}{4\beta^2} \quad ; \quad \epsilon = \frac{1}{2} arctan(\frac{\phi''}{2\beta}) \tag{3.22}$$

Le champ électrique est ainsi caractérisé par :
- E, l'amplitude du champ complexe étiré, proportionnelle à celle du champ initial E_0.
- $e^{-\alpha t^2}$, la forme gaussienne de l'enveloppe temporelle.
- $t_\Delta^{\phi''}$, la durée à mi-hauteur de l'impulsion gaussienne étirée temporellement tel que $t_\Delta^{\phi''} = \sqrt{\frac{2ln2}{\alpha}} = \sqrt{t_\Delta^2 + (4ln2\frac{\phi''}{t_\Delta})^2}$.
- $e^{i\omega_0 t}$, la porteuse, définie par la pulsation centrale ω_0 du champ électrique.
- $e^{i(at^2-\epsilon)}$, la distribution linéaire des fréquences apportée par la phase d'ordre 2.

Cette distribution des fréquences instantanées peut être déterminée temporellement par dérivation de la phase temporelle :

$$\omega_{opt}(t) = \frac{d(\omega_0 t + at^2 - \epsilon)}{dt} = \omega_0 + 2at \tag{3.23}$$

Son expression est composée de la pulsation centrale constante ω_0, et d'une variation linéaire dont la pente est égale à $2a$. Pour simplifier les analyses des mesures optiques, la pente de cette distribution peut aussi être exprimée en durée par longueur d'onde (ps/nm), telle que :

$$\frac{dt}{d\lambda} = -\frac{\pi c}{a\lambda^2} \simeq -\frac{\pi c}{a\lambda_0^2} \tag{3.24}$$

avec :
- $\lambda = \frac{c}{f} = \frac{2\pi c}{\omega_{opt}}$, la longueur d'onde.
- λ_0, la longueur d'onde centrale de l'impulsion.

Une fois l'impulsion étirée temporellement, celle-ci peut être dupliquée avec un retard relatif pour appliquer le processus de photo-mélange (Figure 3.1). Contrairement à deux lasers à ondes continues dont la fréquence est temporellement invariante, les impulsions linéairement chirpées présentent une évolution temporelle de leur fréquence. Cette caractéristique complémentée d'un retard relatif permet d'obtenir une différence de fréquences instantanées non nulle. Par exemple, si le chirp linéaire est identique pour les deux impulsions jumelles, l'interaction optique sur l'antenne résulte en un battement optique quasi-monochromatique ω dont la modulation ne dépend que du retard relatif entre les deux impulsions optiques :

$$\omega = \omega_1(t) - \omega_2(t) = \omega_1(t) - \omega_1(t - \Delta_t) \tag{3.25}$$

3.2.2 Façonneurs optiques

L'apport d'un chirp sur une impulsion optique peut être effectué via plusieurs méthodes différentes, qui agissent soit sur la phase spectrale par dispersion, soit sur l'amplitude du spectre par filtrage.

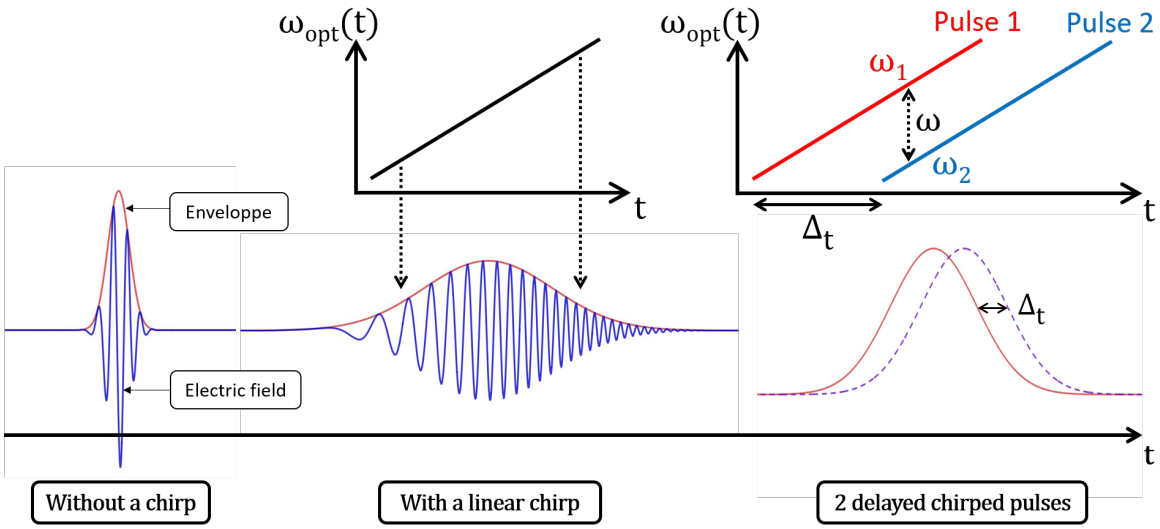


FIGURE 3.1 – Schéma illustratif de l'étirement d'une impulsion optique par l'introduction d'une phase spectrale d'ordre 2, ainsi que l'illustration de deux impulsions jumelles étirées temporellement avec un retard relatif Δ_t. La différence ω entre la fréquence instantanée des deux impulsions optique ω_1 et ω_2 résulte en un battement optique constant à la fréquence THz.

Fibre optique

La fibre optique présente une dispersion chromatique [29]. Cette dispersion se traduit en un indice de réfraction variant en fonction de la fréquence. Lors de la traversée d'une impulsion ultracourte dans la fibre, ses composantes spectrales initialement en phase se propagent à des vitesses différentes. Cela provoque un étirement de l'impulsion avec une distribution temporelle de ses fréquences dépendant du type de fibre utilisé et de sa longueur. Bien qu'apportant un profil spatial de qualité, l'utilisation de fibres peut introduire des phases spectrales d'ordre supérieur et des effets non-linéaires dans le cas de grandes puissances optiques.

Réseau de Bragg volumique

Le réseau de Bragg volumique (VBG) est un élément optique constitué d'une modulation périodique de son indice de réfraction à l'intérieur d'un bloc, souvent du verre [30]. Cette structure périodique, généralement réalisée par photo-inscription, réfléchit sélectivement une longueur d'onde du faisceau optique incident. Pour une incidence proche de l'angle normal, cette sélection suit la condition de Bragg tel que :

$$\lambda = 2 n_{ind} \Lambda \tag{3.26}$$

avec :
- n_{ind}, l'indice de réfraction du VBG.
- Λ, le pas (période) du réseau.

Dans un VBG chirpé, le pas du réseau $\Lambda(z)$, correspondant à la profondeur de chaque couche, varie suivant la profondeur z, de sorte que sa valeur soit adaptée à différentes longueurs d'ondes ciblées, ce qui provoque leur réflexion (Figure 3.2). Les composantes spectrales de l'impulsion optique incidente parcourent ainsi différentes distances z au sein du VBG, résultant en sortie à des retards relatifs distincts, et donc à leur distribution temporelle.

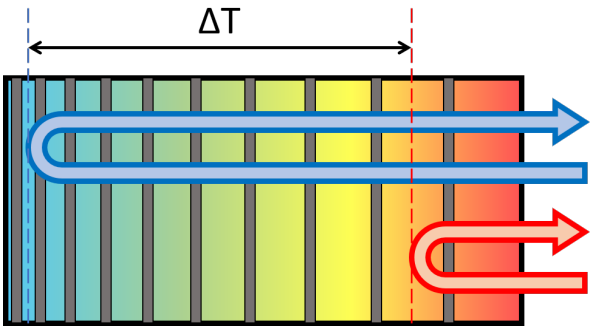


FIGURE 3.2 – Schéma de la structure d'un réseau de Bragg volumique. Le rayonnement incident est réfléchi à différentes profondeurs de propagation au sein du VBG en fonction de la longueur d'onde.

Réseaux dispersifs

Les réseaux dispersifs sont une catégorie de composants optiques formés d'un profil périodique en escalier permettant la diffraction réfléchie du faisceau incident [31, 32]. Ces marches (Figure 3.3), dont la longueur est de l'ordre de la longueur d'onde utilisée, diffractent le faisceau incident selon la loi de diffraction de Bragg :

$$\sin(\theta_{out}(\lambda)) + \sin(\theta_{in}) = k\frac{\lambda}{d_p} \quad (k \in \mathbb{Z}) \tag{3.27}$$

avec :
- λ, la longueur d'onde.
- θ_{in} et θ_{out}, respectivement l'angle incident et réfléchi de l'onde.
- d_p, la longueur du motif périodique.

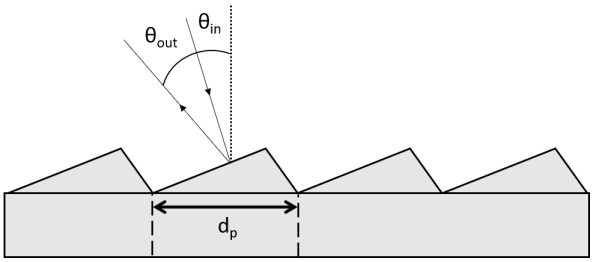


FIGURE 3.3 – Schéma de la structure d'un réseau dispersif.

Les différentes fréquences sont ainsi séparées spatialement, donnant la possibilité de manipuler respectivement leur chemin parcouru, afin d'introduire un retard relatif dépendant de la fréquence. Les configurations les plus courantes utilisent une paire de réseaux. Le premier diffracte le faisceau optique, tandis que le second collimate à nouveau le faisceau. Un double miroir en angle droit réfléchit ensuite les différentes composantes spectrales, séparées spatialement, à des positions distinctes, ce qui introduit un retard relatif entre elles. Enfin, le faisceau parcourt une seconde fois la paire de réseaux en sens inverse, ce qui permet de recombiner spatialement les fréquences.

Masque spectral

Une autre approche possible est de manipuler la phase dans le plan de Fourier. En utilisant des réseaux dispersifs, le profil spectral du faisceau optique est disposé spatialement (Figure 3.4). Au lieu d'introduire un retard relatif par réflexion, il est possible d'appliquer un masque au plan spectral pour filtrer, et ainsi façonner la forme spectrale. Cela peut notamment être réalisé à l'aide

d'un modulateur à cristaux liquides (LC-SLM) programmable [33–35]. Ce dispositif a la particularité de pouvoir être réglé librement par l'application d'un champ électrique externe qui oriente les molécules anisotropes du cristal liquide. En influant sur leur orientation, l'indice de réfraction du cristal est localement ajusté, ce qui forme le masque désiré. Cette technique permet ainsi un façonnage de l'impulsion avec une grande précision et liberté.

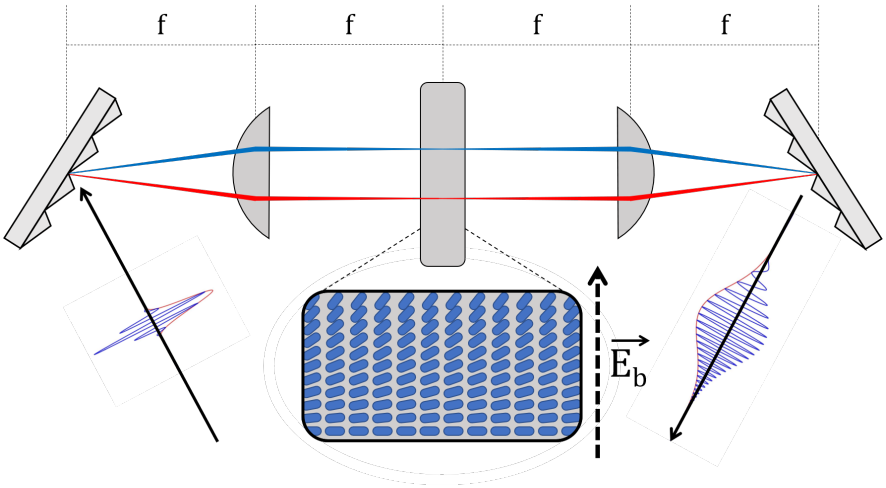


FIGURE 3.4 – Montage en configuration 4f (4 focales) composé de deux réseaux dispersifs, de deux lentilles focales et d'un modulateur à cristaux liquides (LC-SLM). Le LC-SLM, dont la structure moléculaire est paramétrée par un champ électrique de polarisation $\vec{E}_b$, est placé au plan de Fourier pour agir en tant que masque spectral sur l'impulsion optique.

Filtre dispersif programmable acousto-optique (AOPDF)

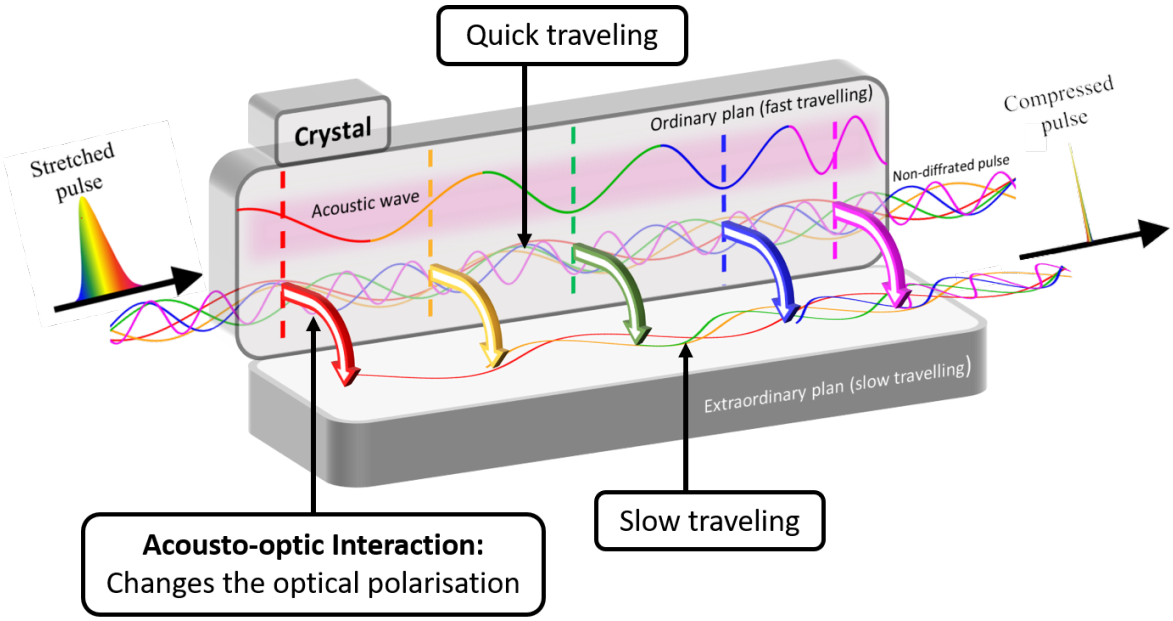


FIGURE 3.5 – Schéma explicatif d'un AOPDF

Une alternative pour le façonnage libre de l'impulsion optique est l'utilisation d'un filtre dispersif programmable acousto-optique (AOPDF) [36, 37]. Ce dispositif exploite l'interaction acousto-optique en générant une onde acoustique via un transducteur alimenté en RF (radiofréquence) afin de façonner la forme de l'impulsion optique. Pour cela, les deux ondes sont envoyées et superposées dans un cristal biréfringent (Figure 3.5). Lorsque l'onde acoustique se propage dans le

cristal, elle génère un réseau de modulation périodique de l'indice de réfraction le long du cristal. Ainsi, quand l'onde acoustique entre en phase avec l'une des composantes spectrales de l'impulsion optique, cette composante est diffractée et sa polarisation bascule dans le plan orthogonal du cristal. Elle se propage alors dans ce plan présentant un autre indice et sa vitesse diffère dès lors des autres composantes non diffractées. En configurant le chirp de l'onde acoustique, la position dans le cristal de l'interaction avec chaque composante spectrale peut être ajustée. Cela permet l'introduction contrôlable d'un retard relatif dépendant de la fréquence. Cette technique très efficace n'est principalement limitée que par la longueur du cristal qui fixe la fenêtre temporelle maximale pour l'introduction du retard relatif, et la vitesse de propagation de l'onde acoustique qui limite le taux de répétition du dispositif.

3.3 Réalisation expérimentale

Pour intégrer le processus de photo-mélange au montage expérimental précédemment utilisé en configuration d'impulsions ultra-courtes, un module supplémentaire est introduit sur le chemin optique de la pompe (Figure 3.6). Celui-ci a pour rôle de dédoubler et de façonner l'impulsion optique avant de focaliser le faisceau sur l'antenne émettrice pour la réalisation du processus de photo-mélange.

Deux modules différents sont mis en place, permettant l'étude de deux configurations de photo-mélange. Ces deux configurations ont pour objectif respectif de produire premièrement une impulsion THz quasi-continue (enveloppe gaussienne modulée par une porteuse proche d'une onde continue), et deuxièmement une impulsion THz de longue durée conservant le spectre large comme dans le cas des impulsions ultra-courtes.

Ces deux modules, qui seront détaillés ultérieurement, sont tous deux basés sur l'utilisation d'un façonneur optique. Nous avons choisi ici l'utilisation d'un VBG, garantissant la linéarité du chirp à forte puissance optique ainsi que la stabilité de l'alignement optique.

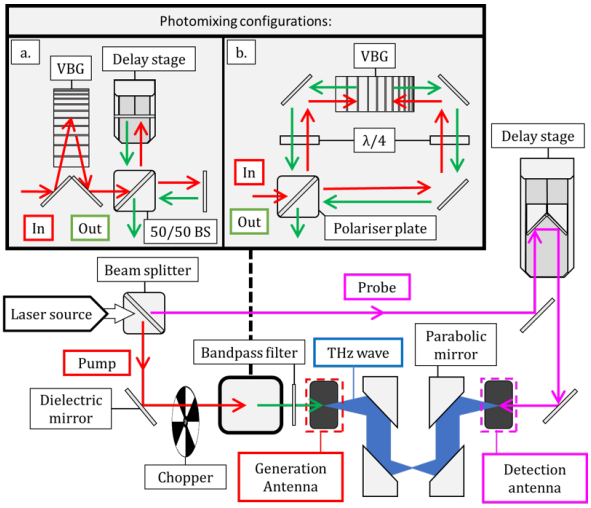


FIGURE 3.6 – Schéma illustratif du montage expérimental avec l'ajout d'un module sous deux variantes possibles a. et b. permettant la génération THz par photo-mélange.

3.3.1 Caractérisation du VBG

Le VBG a été caractérisé par interférométrie spectrale. Ce procédé consiste à échantillonner l'impulsion optique chirpée (pompe) par une impulsion optique ultra-courte et cohérente (sonde)

(Figure 3.7.a). La pompe et la sonde, superposées spatialement avec un retard relatif ajustable, sont focalisées dans un analyseur de spectre pour mesurer les interférences spectrales.

Dans le domaine fréquentiel, le champ complexe de la sonde E_s et celui de la pompe E_p sont exprimés :

$$E_s(\omega_{opt}) = E_\omega e^{\frac{-t_\Delta^2}{8ln2}(\omega_{opt}-\omega_0)^2} e^{-i(\phi_0+\phi'_s(\omega_{opt}-\omega_0))} \tag{3.28}$$

$$E_p(\omega_{opt}) = E_\omega e^{\frac{-t_\Delta^2}{8ln2}(\omega_{opt}-\omega_0)^2} e^{-i(\phi_0+\frac{1}{2}\phi''_p(\omega_{opt}-\omega_0)^2)} \tag{3.29}$$

avec :
- ϕ_0, la phase spectrale d'ordre 0, représentant la valeur de la phase en $\omega_{opt} = \omega_0$.
- ϕ'_s, la phase spectrale d'ordre 1, représentant le retard relatif pompe - sonde.
- ϕ''_p, la phase spectrale d'ordre 2, représentant l'étirement temporel des fréquences instantanées de la pompe.

L'intensité mesurée par l'analyseur de spectre s'écrit :

$$I(\omega_{opt}) \propto |E_s(\omega_{opt}) + E_p(\omega_{opt})|^2 = 2E_\omega^2 e^{\frac{-t_\Delta^2}{4ln2}(\omega_{opt}-\omega_0)^2}\left[1 + cos\left(\phi'_s(\omega_{opt}-\omega_0) - \frac{1}{2}\phi''_p(\omega_{opt}-\omega_0)^2\right)\right] \tag{3.30}$$

Par interférences, les deux impulsions provoquent des cannelures (franges d'interférence) dans le spectre observé par l'analyseur de spectre (Figure 3.7.b). Ces cannelures prennent la forme de modulations dont la période, décrite par le terme $\frac{1}{2}\phi''_p(\omega_{opt}-\omega_0)^2$, dépend de leur position spectrale. La fréquence centrale des cannelures, correspondant ici à une longueur d'onde de 1034 nm, est observable par la position de la modulation la plus lente. Celle-ci est initialement centrée en $\omega_{opt} = \omega_0$, puis est décalée dans le spectre par le retard relatif pompe - sonde représenté par le terme $\phi'_s(\omega_{opt}-\omega_0)$. En déterminant la position de cette modulation centrale, la fréquence instantanée de l'impulsion chirpée peut être tracée en fonction du retard relatif pompe-sonde, permettant de caractériser la distribution temporelle des fréquences apportée par le VBG (Figure 3.8.b).

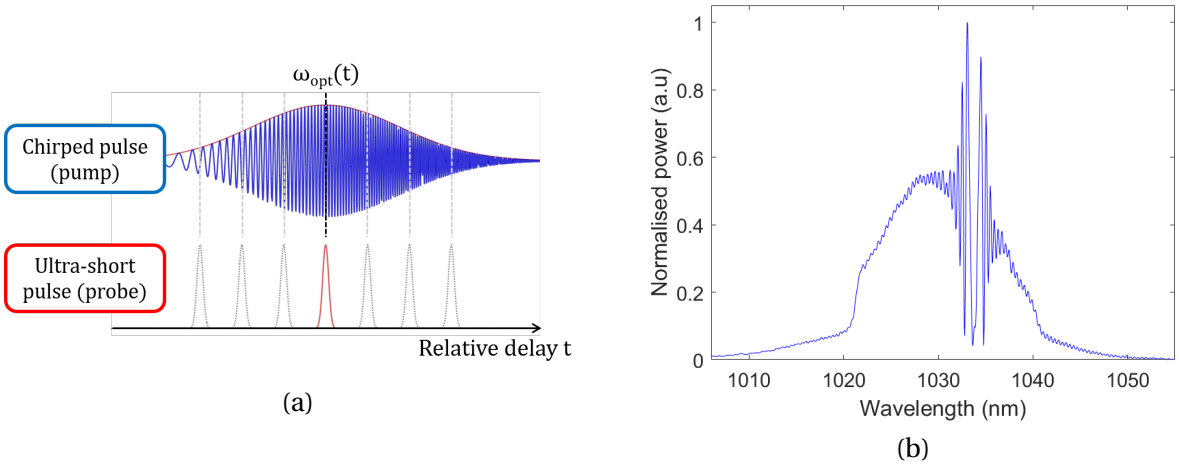


FIGURE 3.7 – a) Schéma illustrant l'échantillonnage d'une impulsion chirpée par une impulsion ultracourte. b) Spectre optique via interférométrie de l'impulsion optique chirpée par l'impulsion optique ultracourte. La longueur d'onde échantillonnée est ici environ égale à 1034 nm, représentée par la modulation centrale des interférences pompe - sonde.

Cette distribution est ici linéaire, que l'on fasse passer l'impulsion optique d'un côté ou de l'autre du VBG. La distribution est cependant croissante ou décroissante en fonction de quel côté

du VBG l'impulsion optique est réfléchie. Sa pente est de ±6.2 ps/nm avec une bande passante totale de 17 nm à mi-hauteur centré à 1030 nm. Cette bande passante, de forme approximativement carrée, est inférieure à la largeur spectrale de l'impulsion ultra-courte (20 nm) et donc coupe les basses et hautes longueurs d'onde du spectre. L'impulsion optique après étirement temporel présente une durée de 92 ps à mi-hauteur contre 70 fs avant son passage dans le VBG.

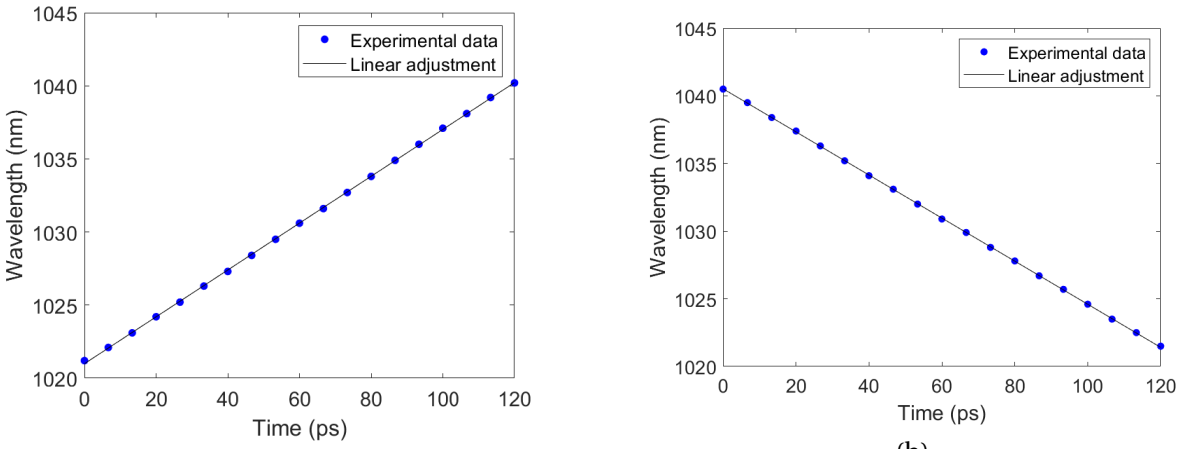


FIGURE 3.8 – Distribution temporelle des fréquences instantanées au sein d'une impulsion optique étirée respectivement d'un côté (a) et de l'autre (b) du VBG.

Le spectre de l'impulsion étirée est différent suivant le côté du VBG par lequel elle a été réfléchie (Figure 3.9). Cela est possiblement dû à une différence de revêtement entre les deux surfaces du VBG. Chaque fréquence étant liée à un temps différent, cette différence dans le spectre se traduit en une enveloppe temporelle elle aussi différente, ce qui influe sur la forme THz générée.

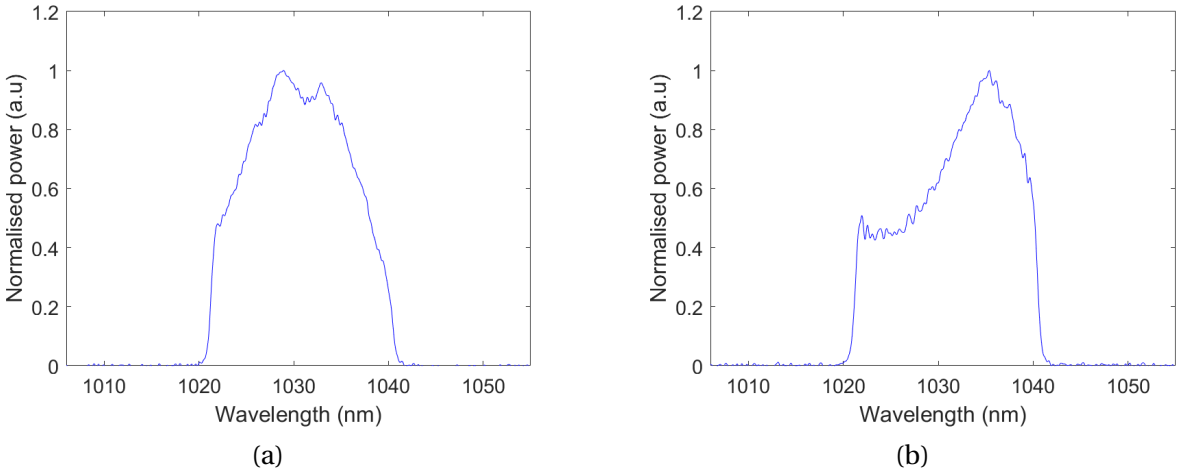


FIGURE 3.9 – Spectre d'une impulsion optique étirée respectivement d'un côté (a) et de l'autre (b) du VBG.

3.4 Photo-mélange d'impulsions optiques à chirps linéaires identiques

Dans cette première configuration pour le photo-mélange d'impulsions optiques, nous allons étudier la génération d'ondes THz quasi-continues (également quasi-monochromatiques), permettant de faire le parallèle avec le photo-mélange en régime continu et ainsi de simplifier la compréhension analytique. Nous comparerons également les phénomènes de saturation avec la génération THz par impulsions ultra-courtes.

3.4.1 Théorie

Pour réaliser cette configuration de photo-mélange, considérons 2 impulsions optiques linéairement chirpées de même amplitude E avec un retard relatif $\Delta_t = 2t_d > 0$:

$$\mathrm{E}_1(t) = \mathrm{E}e^{-\alpha(t+t_d)^2} cos\Big(\omega_0(t+t_d) + a(t+t_d)^2 - \epsilon\Big) \tag{3.31}$$

$$\mathrm{E}_2(t) = \mathrm{E}e^{-\alpha(t-t_d)^2} cos\Big(\omega_0(t-t_d) + a(t-t_d)^2 - \epsilon\Big) \tag{3.32}$$

La puissance optique appliquée sur l'antenne peut dès lors être calculée :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = \epsilon_0 c \mathrm{L} l |\mathrm{E}_1(t) + \mathrm{E}_2(t)|^2 \tag{3.33}$$

Le module du champ électrique total au carré se développe ensuite en négligeant à nouveau les modulations aux fréquences optiques tel que :

$$|\mathrm{E}_1(t) + \mathrm{E}_2(t)|^2 = e^{-2\alpha(t-t_d)^2} + e^{-2\alpha(t+t_d)^2} + 2e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} cos\Big(\Delta_t(\omega_0 + 2at)\Big) \tag{3.34}$$

La puissance optique obtenue est alors composée d'un terme à variation lente et d'un terme modulé :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = \epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 \Big[\mathrm{P}_{\mathrm{DC}}(t) + 2e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}})\Big] \tag{3.35}$$

avec :

$$\mathrm{P}_{\mathrm{DC}}(t) = e^{-2\alpha(t-t_d)^2} + e^{-2\alpha(t+t_d)^2} \quad ; \quad \omega = 2a\Delta_t \quad ; \quad \Phi_{\mathrm{THz}} = \Delta_t \omega_0 \tag{3.36}$$

Cette expression peut également se réécrire sous la forme suivante :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = 2\epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} \Big[cosh(2\alpha\Delta_t t) + cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}})\Big] \tag{3.37}$$

Le terme de modulation est apporté par le battement optique à la pulsation $2a\Delta_t$. Ce battement est constant et dépend directement du retard relatif Δ_t entre les deux impulsions optiques ainsi que de la valeur du chirp a. Cette configuration est ainsi similaire au photo-mélange CW, avec comme principale différence l'introduction d'une enveloppe gaussienne $e^{-2\alpha t^2}$. Aussi, l'interaction entre les deux impulsions étant limitée à la zone de recouvrement temporelle, cette limitation s'exprime par le terme $e^{-2\alpha t_d^2}$ qui décroît en fonction du retard relatif t_d. Concernant le terme à variation lente, celui-ci décrit la forme gaussienne des deux impulsions optiques sans considération de leur interaction. Enfin, la puissance crête est égale à $\mathrm{P}_{opt}^c = 2\epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 e^{-2\alpha t_d^2}$.

Génération des porteurs de charge

L'absorption de cette source optique par l'antenne photo-conductrice génère des porteurs de charge (Équation 2.8) tel que :

$$n(t) = 2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} e^{-2\alpha(t'^2+t_d^2)} \Big[cosh(2\alpha\Delta_t t') + cos(\omega t' + \Phi_{\mathrm{THz}}) \Big] e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \tag{3.38}$$

avec pour rappel $\mathrm{K}' = \epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{K}$.

En considérant les termes d'enveloppe $e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}$ et $e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} cosh(2\alpha\Delta_t t)$ variant lentement par rapport au terme de modulation $cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}})$ et au terme $e^{\frac{t}{\tau}}$, ils peuvent être approximés constants et donc être sortis de l'intégrale :

$$n(t) = \mathrm{K}' 2\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} \Big[cosh(2\alpha\Delta_t t)\tau + e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} cos(\omega t' + \Phi_{\mathrm{THz}}) e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \Big] \tag{3.39}$$

En utilisant les équations d'Euler, la partie modulée peut être développée :

$$\begin{aligned} e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} cos(\omega t' + \Phi_{\mathrm{THz}}) e^{\frac{t'}{\tau}} dt' &= e^{-\frac{t}{\tau}} \frac{1}{2} \Big[\frac{e^{i(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}}) + \frac{t}{\tau}}}{i\omega + \frac{1}{\tau}} + \frac{e^{-i(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}}) + \frac{t}{\tau}}}{-i\omega + \frac{1}{\tau}} \Big] \\ &= \frac{1}{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2} \Big[\frac{1}{\tau} cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}}) + \omega sin(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}}) \Big] \end{aligned} \tag{3.40}$$

Ce qui peut se réécrire :

$$= \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}} - atan(\omega\tau) \Big) \tag{3.41}$$

En combinant les deux développements, la densité de porteurs de charge $n(t)$ s'écrit au final :

$$n(t) = 2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} \Big[\tau cosh(2\alpha\Delta_t t) + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}} - atan(\omega\tau) \Big) \Big] \tag{3.42}$$

Composée d'une partie à variation lente :

$$n_{\mathrm{DC}}(t) = 2\mathrm{K}'\tau\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} cosh(2\alpha\Delta_t t) \tag{3.43}$$

Et une partie modulée :

$$n_{mod}(t) = 2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 \frac{e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}} - atan(\omega\tau) \Big) \tag{3.44}$$

Ce terme modulé présente une structure similaire au terme modulée présent pour un régime continu avec une constante de phase Φ_{THz} supplémentaire (Équation 3.15). Contrairement au régime continu, la pulsation du battement $\omega = 2a\Delta_t$ dépend ici du retard relatif entre les deux impulsions optiques. Le régime impulsionnel apporte également un terme d'enveloppe gaussien $e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}$, limitant la modulation THz à la durée d'interaction entre les deux impulsions. Ainsi, plus le retard relatif entre les impulsions est important, plus la fréquence de la modulation est rapide, mais plus son amplitude est petite (Figure 3.10).

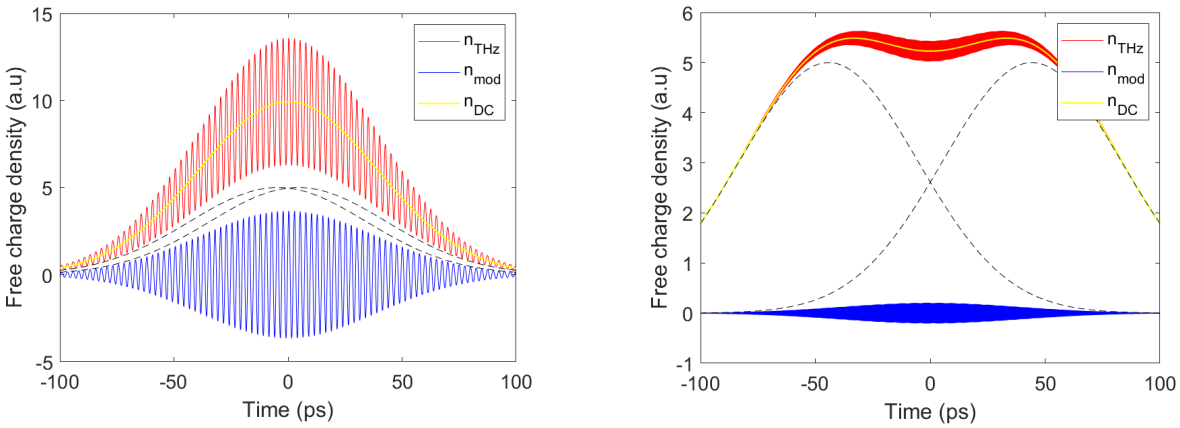


FIGURE 3.10 – Simulation temporelle de la densité de porteurs de charge $n(t)$ et de ses composantes lente $n_{\mathrm{DC}}(t)$ et modulée $n_{mod}(t)$. Les deux courbes en pointillés représentent $n(t)$ dans le cas d'une excitation par une seule des deux impulsions. a) Simulation avec un retard relatif $\Delta_t = 8.8$ ps, correspondant à un battement d'environ 0.4 THz. b) Simulation avec $\Delta_t = 88$ ps, correspondant à environ 4 THz. Les paramètres de simulations sont $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

Champ électrique THz

En calculant la dérivée temporelle de la densité de porteurs, ses composantes lentes et modulées s'expriment :

$$\frac{dn_{\mathrm{DC}}}{dt} = 8\mathrm{K}'\tau\mathrm{E}^2\alpha e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}\Big[-tcosh(2\alpha\Delta_t t) + t_d sinh(2\alpha\Delta_t t)\Big] \tag{3.45}$$

et

$$\frac{dn_{mod}}{dt} = -2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2\frac{e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}\Big[4\alpha t cos\Big(\omega t+\Phi_{\mathrm{THz}}-atan(\omega\tau)\Big)+\omega sin\Big(\omega t+\Phi_{\mathrm{THz}}-atan(\omega\tau)\Big)\Big] \tag{3.46}$$

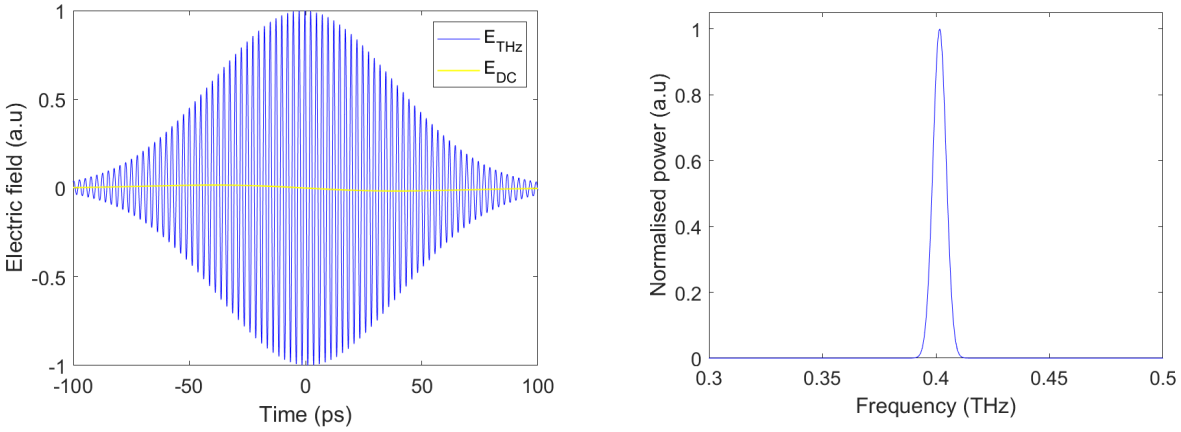
Dont l'expression peut être réécrite telle que :

$$\frac{dn_{mod}}{dt} = -2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}\sqrt{\frac{(4\alpha t)^2+\omega^2}{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}cos\Big(\omega t+\Phi_{\mathrm{THz}}-atan(\omega\tau)-atan2(\omega,4\alpha t)\Big) \tag{3.47}$$

$$\text{avec } atan2(\omega,4\alpha t) = \begin{cases} atan(\frac{\omega}{4\alpha t}) & \text{si } t>0 \\ \frac{\pi}{2} & \text{si } t=0 \\ atan(\frac{\omega}{4\alpha t})+\pi & \text{si } t<0 \end{cases}.$$

L'introduction d'une enveloppe temporelle complexifie grandement l'expression du champ THz émis $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}(t) \propto \frac{dn}{dt}$. Toutefois, certaines approximations peuvent être réalisées. Premièrement la dérivée de la composante à variation lente $n_{\mathrm{DC}}(t)$ (courbe jaune) se traduit en une faible contribution sur l'émission THz (Figure 3.11) et peut donc être négligée.

Du côté de la composante modulée $\frac{dn_{mod}}{dt}$, pour un chirp d'un ordre de grandeur similaire aux valeurs obtenues expérimentalement ($\alpha \simeq 166$ ns^{-2}), le terme $4\alpha t$ ($\simeq 66.4$ GHz à $t = 100$ ps) est petit par rapport à la pulsation ω (dans la gamme THz) durant toute la durée de l'impulsion



(a) (b)

FIGURE 3.11 – a) Simulation temporelle du champ électrique normalisé $E_{THz}(t)$ (bleu) et de sa composante à variation lente $E_{DC}(t)$ pour un retard relatif $\Delta_t = 8.8$ ps. b) Spectre normalisé correspondant au champ électrique E_{THz}. Les paramètres de simulation sont $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

définie par son enveloppe $e^{-2\alpha t^2}$ (de l'ordre de la centaine de picosecondes). De plus, les valeurs les plus grandes de $4\alpha t$ sont atteintes aux extrémités de l'impulsion, là où l'amplitude du signal, et donc sa contribution, est minimale. Le terme $(4\alpha t)^2$ peut donc être négligé et $atan2(\omega, 4\alpha t) \simeq \frac{\pi}{2}$. Il reste alors l'expression simplifiée du champ électrique THz :

$$E_{THz} \propto e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)} \frac{2\omega K' E^2}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}} cos\left(\omega t + \Phi_{THz} + atan(\frac{1}{\omega\tau})\right) \tag{3.48}$$

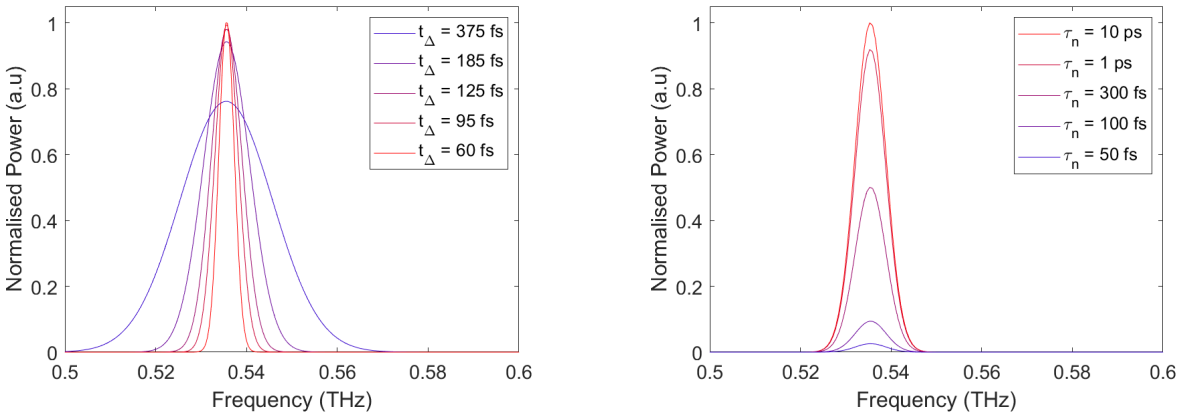
Cette expression du champ électrique THz généré par photo-mélange d'impulsions jumelles à chirps linéaires se trouve être proportionnelle au champ THz généré par photo-mélange dans un régime continu (Équation 3.16 à une phase Φ_{THz} près) multiplié par l'enveloppe du battement optique :

$$E_{THz}(t) \propto e^{-2\alpha t^2} E^{CW}_{THz}(t) \propto e^{-2\alpha t^2} cos\left(\omega t + \Phi_{THz} + atan(\frac{1}{\omega\tau})\right) \tag{3.49}$$

La simulation du spectre THz émis est ensuite réalisée (Figures 3.12 et 3.13) en faisant varier à chaque fois un paramètre différent, les valeurs des autres paramètres étant respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, $\Delta_t = 12$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

Contrairement à la génération en régime ultra-court, la fréquence émise est ici imposée par le battement optique ω et la durée initiale de l'impulsion optique t_Δ n'impacte donc plus directement la bande passante THz. D'autre part, pour une phase ϕ'' fixée à une valeur assez grande, l'étirement temporel $t_\Delta^{\phi''} = \sqrt{t_\Delta^2 + (4ln2\frac{\phi''}{t_\Delta})^2} \simeq 4ln2\frac{\phi''}{t_\Delta}$ est inversement proportionnel à la durée initiale t_Δ. Cela signifie que la largeur du spectre THz (qui est inversement proportionnelle à la durée de l'excitation optique) présente une proportionnalité à la durée initiale t_Δ (Figure 3.12.a), tendance opposée au comportement en régime ultra-court. De plus, à énergie optique constante, la diminution de la durée t_Δ engendre également une plus grande amplitude maximale du spectre THz.

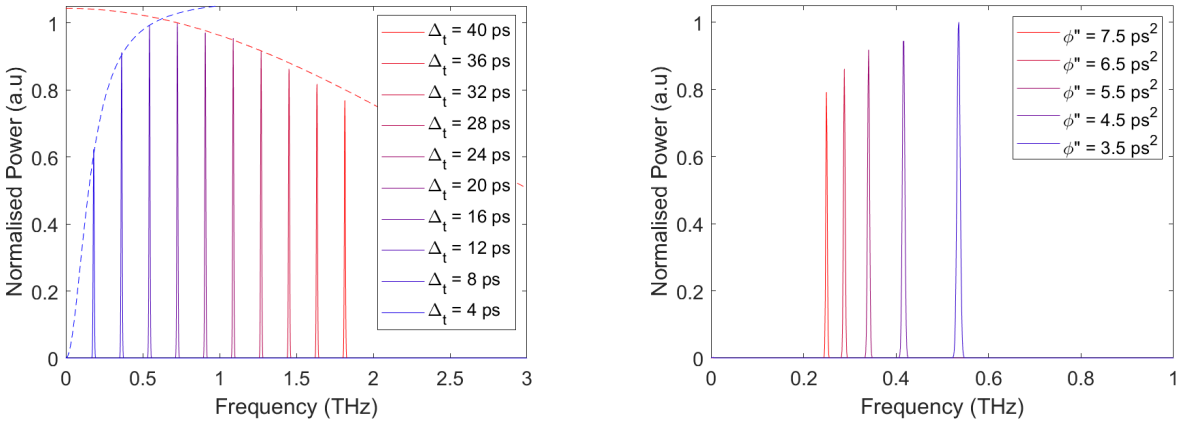
Concernant, le temps de vie τ des porteurs de charge, il n'impacte dans le spectre THz que sur son amplitude et non plus sur sa largeur ou sa fréquence centrale (Figure 3.12.b). En effet, similairement à la génération THz en régime continu, le terme $\frac{\omega}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}$ agit comme un filtre passe-haut



(a) (b)

FIGURE 3.12 – Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange quasi-continu pour a) différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique avant étirement temporel avec $\tau = 1$ ps. b) différents temps de vie τ des porteurs de charge avec $t_\Delta = 70$ fs. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $\Delta_t = 12$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

en τ pour une pulsation ω fixée. L'influence d'autres paramètres (échauffement, courant continu, structure d'antenne, etc.) impose cependant un compromis en limitant des valeurs trop élevées du temps de vie et de la fréquence.



(a) (b)

FIGURE 3.13 – Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange quasi-continu pour a) retards relatifs Δ_t entre les deux impulsions optiques avec $\phi'' = 3.5$ ps^2. b) différentes phases spectrales d'ordre deux ϕ'' avec $\Delta_t = 12$ ps. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs et $\tau = 1$ ps. Les courbes en tirets représentent respectivement le filtre $\frac{\omega}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}$ (bleu) et le coefficient $e^{-2\alpha t_d^2}$ (rouge).

Le retard relatif Δ_t apporte quant à lui le contrôle sur la fréquence centrale générée tel que $\omega = 2a\Delta_t$ (Figure 3.13.a). L'amplitude spectrale suit, à basse fréquence, le comportement imposé par le filtre passe haut $\frac{\omega}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}$ (courbe en tirets bleus). À haute fréquence, le retard relatif devient conséquent, ce qui réduit la qualité de la superposition temporelle des deux impulsions optiques. La réalisation du battement optique n'est dès lors plus optimale, ce qui réduit l'efficacité totale de l'émission THz suivant le terme $e^{-2\alpha t_d^2}$ (courbe en tirets rouges).

Enfin, la valeur de la phase spectrale d'ordre deux ϕ'' agit sur deux paramètres (Figure 3.13.b). Premièrement, elle impacte directement la durée après étirement des impulsions optiques $t_\Delta^{\phi''} =$

$\sqrt{t_\Delta^2 + (4ln2\frac{\phi''}{t_\Delta})^2}$, et donc celle de l'impulsion THz émise. Deuxièmement, pour un retard relatif Δ_t fixé, la phase ϕ'' définie la pente de la distribution temporelle des fréquences instantanées $a(\phi'')$ avec une dépendance en $\frac{1}{\phi''}$ (Équation 3.22). En conséquence, la pulsation $\omega = 2a\Delta_t$ présente la même dépendance en $\frac{1}{\phi''}$.

Effet de saturation

Sous l'effet de saturation introduit par le champ électrique proche, comme vu dans le chapitre 2 (Équation 2.17), le courant s'exprime :

$$j(t) = \frac{E_{bias}\sigma(t)}{\eta'\sigma(t)+1} \tag{3.50}$$

Dans le cadre d'une excitation par photo-mélange d'impulsions jumelles linéairement chirpées, la photo-conductivité s'exprime comme :

$$\sigma(t) \simeq q\mu n(t) = 2q\mu K' E^2 e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}\left[\tau cosh(2\alpha\Delta_t t) + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}} cos\left(\omega t + \Delta_t\omega_0 - atan(\omega\tau)\right)\right] \tag{3.51}$$

Pour décrire la photo-conductivité maximale, l'enveloppe peut être considérée comme lentement variable par rapport à la modulation THz. À $t \simeq 0$, les approximations peuvent alors être faites tels que $e^{-2\alpha t^2} \simeq 1$, $cos(\omega t + \Delta_t\omega_0 - atan(\omega\tau)) \simeq 1$, et, pour de petits retards Δ_t, $e^{-2\alpha t^2} cosh(2\alpha\Delta_t t) \simeq 1$. L'amplitude maximale de la photo-conductivité est ainsi exprimée comme :

$$\sigma_{max} \simeq 2q\mu K' E^2 e^{-2\alpha t_d^2}\left[\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}\right] \tag{3.52}$$

Ce qui donne un courant maximal :

$$j_{max} \simeq \frac{E_{bias}}{\eta'} \frac{P^c_{opt}}{P^c_{opt} + \frac{1}{\eta' q\mu K\left[\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}\right]}} \tag{3.53}$$

avec pour rappel :
- $K' = \epsilon_0 cLlK$.
- $P^c_{opt} = 2\epsilon_0 cLlE^2 e^{-2\alpha t_d^2}$.

Sachant que l'énergie de saturation dans une configuration d'excitation ultra-courte (Équation 2.21) est définie comme $\mathscr{E}^{sat}_{SP} = \frac{1}{\eta' q\mu K}$, la puissance optique crête de saturation dans une configuration de photo-mélange quasi-continu est alors définie par :

$$P^{sat}_{opt} = \frac{\mathscr{E}^{sat}_{SP}}{\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}}} \quad : \quad [W] \tag{3.54}$$

Pour des retards relatifs petits par rapport aux durées des impulsions optiques chirpées, la forme de l'excitation optique (Équation 3.37) peut être considérée comme gaussienne. L'énergie optique de l'impulsion est alors définie comme :

$$\mathscr{E}_{opt} = \int \mathrm{P}_{opt}(t)dt = \mathrm{P}^{c}_{opt} \int e^{-2\alpha t^2} \Big[cosh(2\alpha\Delta_t t) + cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}}) \Big] dt \tag{3.55}$$

Le terme oscillant à la pulsation ω résulte en une contribution négligeable. Le terme à variation lente peut quant à lui être réécrit tel que :

$$e^{-2\alpha t^2} cosh(2\alpha\Delta_t t) = \frac{1}{2} e^{-2\alpha t^2} \left(e^{2\alpha\Delta_t t} + e^{-2\alpha\Delta_t t} \right) = \frac{1}{2} e^{2\alpha t_d^2} \left(e^{-2\alpha(t-t_d)^2} + e^{-2\alpha(t+t_d)^2} \right) \tag{3.56}$$

Le développement de l'énergie optique donne alors :

$$\mathscr{E}_{opt} = \mathrm{P}^{c}_{opt} \frac{e^{2\alpha t_d^2}}{2} \int e^{-2\alpha(t-t_d)^2} + e^{-2\alpha(t+t_d)^2} dt = \sqrt{\frac{\pi}{2\alpha}} e^{2\alpha t_d^2} \mathrm{P}^{c}_{opt} \quad : \quad [\mathrm{J}] \tag{3.57}$$

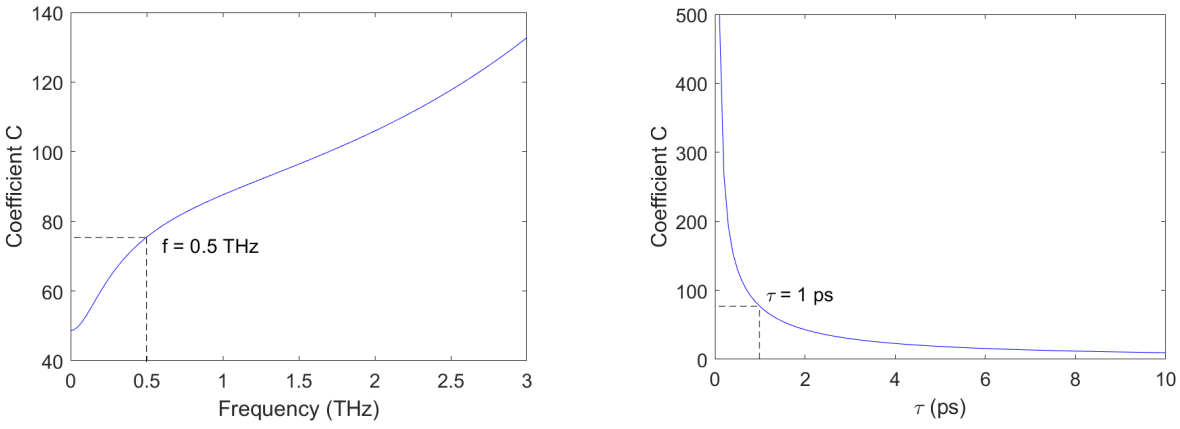
L'énergie de saturation en photo-mélange quasi-continu peut ainsi être exprimée :

$$\mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{PM}cw} = \frac{\sqrt{\frac{\pi}{2\alpha}} e^{2\alpha t_d^2} \mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{SP}}}{\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}}} = \mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw} \mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{SP}} \quad : \quad [\mathrm{J}] \tag{3.58}$$

avec $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw} = \frac{\sqrt{\frac{\pi}{2\alpha}} e^{2\alpha t_d^2}}{\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}}}$.

Cette énergie de saturation est proportionnelle à l'énergie de saturation dans le cadre d'une excitation par impulsion ultra-courte $\mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{SP}}$. Le facteur $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ introduit quant à lui une dépendance linéaire à la durée à mi-hauteur $t_\Delta^{\phi''}$ de l'impulsion optique chirpée :

$$\sqrt{\frac{1}{\alpha}} = \frac{t_\Delta^{\phi''}}{\sqrt{2ln2}} \tag{3.59}$$



(a) (b)

FIGURE 3.14 – Simulation de la variation du facteur de saturation $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ en fonction de la pulsation du battement optique (a) et du temps de vie des porteurs de charge (b). Les valeurs sont respectivement fixées à τ = 1 ps (a) et $f = \frac{\omega}{2\pi} = 0.5$ THz (b), avec $t_\Delta = 70$ fs, et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

Le facteur $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ introduit également une dépendance à la pulsation du battement optique ω et au temps caractéristique de vie des porteurs de charge τ (Figure 3.14). La saturation optique apparaît notamment à plus haute énergie optique pour des fréquences hautes d'émission THz et des temps de vie τ courts. En effet, un temps de vie court permet la recombinaison rapide des porteurs

de charge, ce qui limite l'accumulation du courant sur une longue durée d'excitation optique. De même, une haute fréquence du battement optique permet de réduire la durée de chaque période d'excitation. De plus, le coefficient de recouvrement temporel $e^{2\alpha t_d^2}$ amplifie cette tendance en réduisant la puissance crête du photo-mélange optique, ce qui implique également une énergie de saturation plus haute pour les hautes fréquences. Pour une durée réaliste du temps de vie τ égale à 1 ps et une fréquence à 0.5 THz, l'émission THz devrait saturer à une énergie environ 75 fois plus grande en photo-mélange qu'en excitation optique ultra-courte. Cette moins grande sensibilité à la saturation optique offre la possibilité d'augmenter la puissance moyenne utilisée en amont de l'antenne photo-conductrice, et permettant de compenser une plus faible puissance optique crête qu'en régime ultra-court.

3.4.2 Résultats expérimentaux

Module de façonnage optique

La configuration du photo-mélange pour l'émission d'une impulsion THz quasi-continue est mise en place par le module expérimental schématisé dans la Figure 3.15. L'étirement de l'impulsion optique est apporté par l'utilisation du VBG étudié dans la section 3.3.1. L'impulsion chirpée (étirement de 70 fs à 93 ps à mi-hauteur) est ensuite amenée dans un interféromètre de Michelson pour la dédoubler en introduisant un retard relatif entre les deux impulsions jumelles. Ce retard est ajustable par une ligne à retard manuelle.

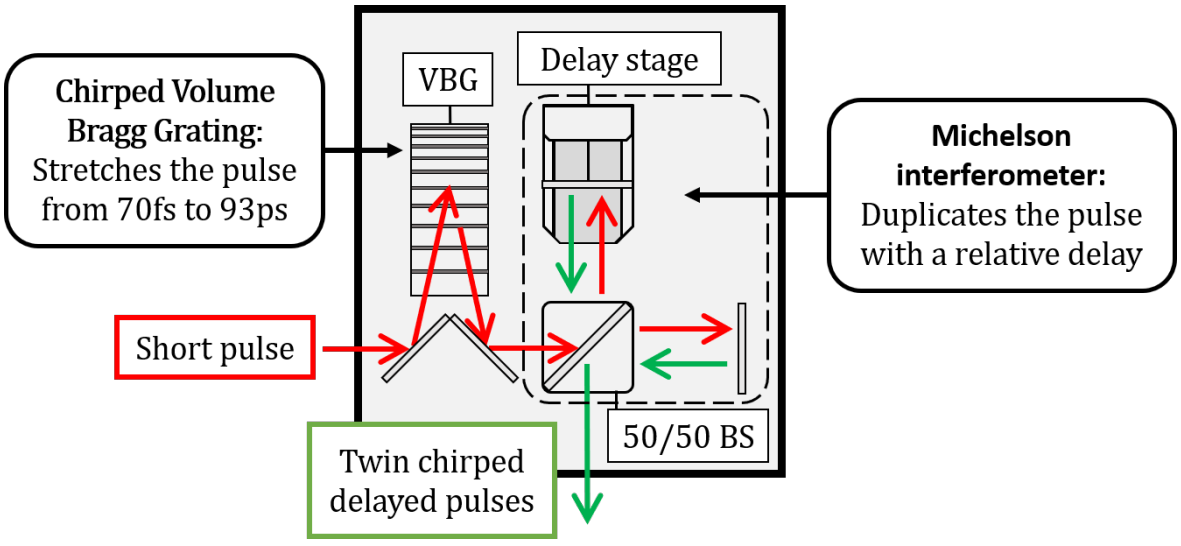


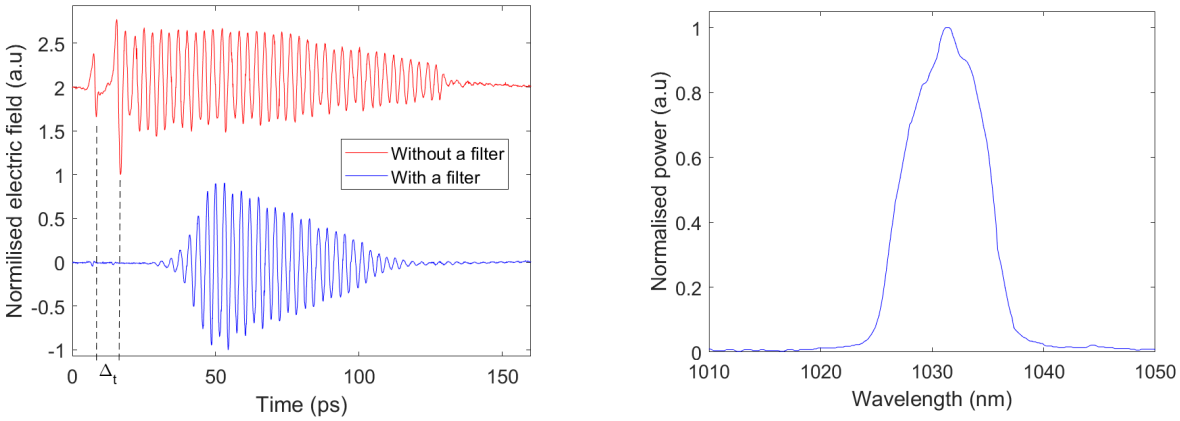
FIGURE 3.15 – Schéma du module expérimental pour la mise en place d'une double impulsion optique linéairement chirpée, avec l'introduction d'un retard relatif modulable entre les deux impulsions.

Mesure d'une onde THz quasi-continue

L'impulsion THz émise par photo-mélange dans la configuration quasi-continue est mesurée via échantillonnage photo-conductif par une impulsion sonde ultra-courte et cohérente. Le signal mesuré donne une forme de longue durée oscillant à une fréquence constante (Figure 3.16a, courbe rouge). Ici, la période de l'oscillation est de 3 ps, correspondant à une fréquence de 0.33 THz.

Deux impulsions courtes sont présentes en amont de l'impulsion principale. Celles-ci sont générées par une réflexion de l'impulsion optique ultra-courte sur la surface du VBG, et qui n'est

donc pas chirpée. Malgré la présence d'un revêtement anti-réflexion pour réduire sa puissance optique, l'efficacité bien supérieure de l'antenne pour les impulsions ultra-courtes résulte en l'émission d'une impulsion THz non négligeable. Le passage de cette réflexion dans l'interféromètre de Michelson provoque l'apparition d'une deuxième impulsion courte THz. Bien que non souhaitable pour l'analyse de l'impulsion THz quasi-continue, la présence de ces deux impulsions courtes permet de mesurer précisément le retard relatif apporté par la ligne à retard qui est ici de 7.2 ps, ce qui correspond à un battement à 0.33 THz.



(a) (b)

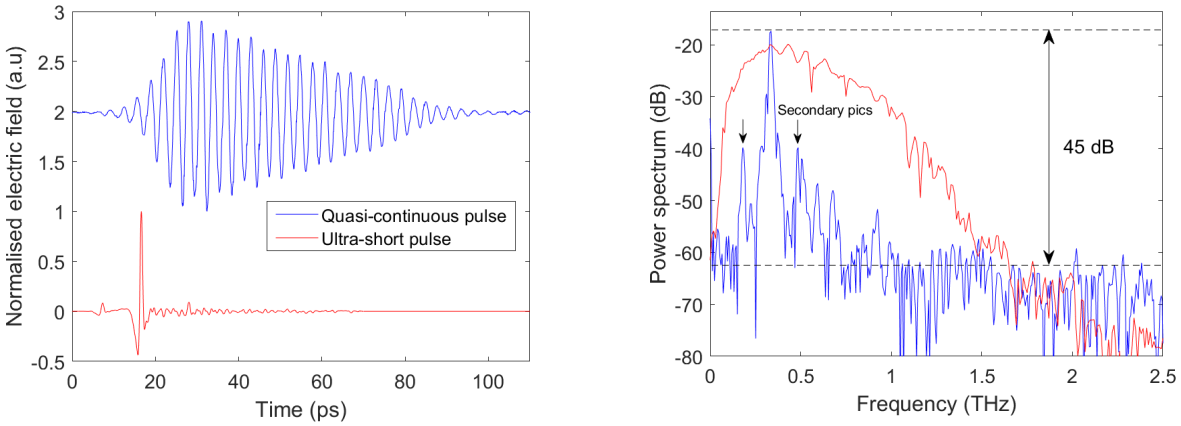
FIGURE 3.16 – a) Signal THz mesuré, généré par l'antenne dipôle avec (bleu) et sans (rouge) filtre passe-bande pour un retard relatif correspondant à une fréquence de battement $f = 0.33$ THz. b) Spectre de l'impulsion optique après passage au travers du filtre passe-bande de 10 nm. Le spectre initial de l'impulsion est présenté en Figure 2.8.b.

Pour réduire l'amplitude de ces impulsions courtes (courbe bleue), un filtre passe-bande de 10 nm de largeur et centré à 1030 nm est introduit sur le chemin optique de la pompe. La réduction de la largeur spectrale des impulsions ultra-courtes (Figure3.16.b) augmente leur durée temporelle et réduit ainsi leur efficacité de conversion optique - THz, sans empêcher le processus de photo-mélange pour les impulsions chirpées. Ce filtre impose également une forme plus régulière au spectre des impulsions optiques chirpées, et donc indirectement à leur enveloppe temporelle. Cela résulte en la génération d'une impulsion THz dont la structure temporelle est simplifiée, et donc plus aisée à caractériser et à confronter au modèle analytique.

À titre de comparaison, cette impulsion THz quasi-continu est présentée aux côtés d'une impulsion THz générée par excitation optique ultra-courte (Figure 3.17). La durée du signal est la différence la plus notable. Le photo-mélange résulte en une impulsion THz de plusieurs dizaines de picosecondes (53 ps à mi-hauteur, et 79 ps sans le filtre passe-bande), là où l'impulsion THz ultra-courte est de l'ordre de la picoseconde (1.7 ps à mi-hauteur). Comme attendu, l'impulsion quasi-continue est quasi-monochromatique, ce qui se confirme par son spectre fin centré à 0.33 THz. La largeur du spectre à mi-hauteur environ égale à 18 GHz correspondant à l'inverse d'une durée d'impulsion de 56 ps, en accord avec sa durée réelle. D'autre part, la dynamique de mesure est inférieure pour le signal quasi-continu (environ 45 dB contre 60 dB). Cette plus faible efficacité peut signifier que l'antenne est plus adaptée pour une excitation ultra-courte, réduisant l'efficacité de l'excitation par photo-mélange.

D'autre part, des pics secondaires sont présents dans le spectre, espacés d'environ 0.15 THz de la fréquence centrale, espacement fixe, quelle que soit la fréquence du battement optique. Ces pics secondaires sont probablement provoqués par une réflexion de l'impulsion optique avant l'excitation de l'antenne photo-conductrice, introduisant un artefact optique avec un retard relatif aux impulsions principales d'environ 6.7 ps. Cet artefact pourrait expliquer la présence de faibles mo-

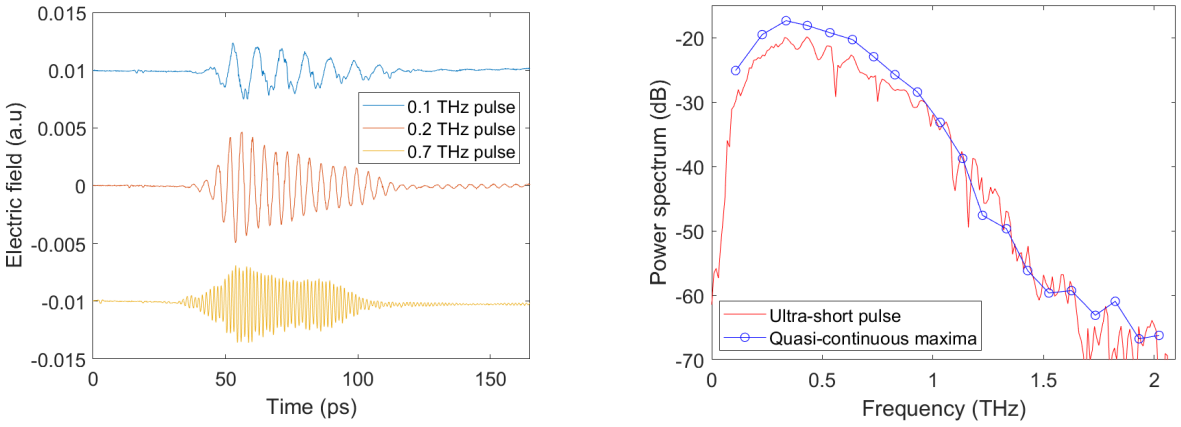
dulations dans le spectre THz généré par excitation optique ultra-courte, cependant la période de la modulation (≃ 0.1 THz) ne correspond pas exactement à la configuration de photo-mélange.



(a) (b)

FIGURE 3.17 – Émission THz via l'antenne dipôle. a) Forme temporelle normalisée du champ électrique et b) Spectre d'une impulsion THz ultra-courte (rouge) et d'une impulsion THz quasi-continue générée à une fréquence de 0.33 THz (bleu).

En ajustant le retard relatif entre les deux impulsions optiques utilisées pour le photo-mélange, la fréquence THz générée peut être modifiée (Figure 3.18). En mesurant le spectre pour différentes fréquences, le maximum du spectre suit le comportement du spectre large obtenu par l'émission d'une impulsion THz ultra-courte. La réponse du signal en fonction de la fréquence est donc similaire pour les deux procédés de génération. Pour les hautes fréquences, la plus faible dynamique du signal généré par photo-mélange limite la génération THz à environ 2 THz.



(a) (b)

FIGURE 3.18 – a) Signal THz quasi-continu généré par antenne dipôle pour différentes fréquences de battement. b) Maxima du spectre quasi-continu (bleu) pour différentes fréquences de battement optique, allant de 0.1 THz à 2 THz. En rouge le spectre d'une impulsion THz courte.

Caractérisation en fonction de la puissance optique et de la tension

De même que pour la configuration ultra-courte, la caractérisation en régime de saturation a été réalisée avec l'antenne à petite ouverture. Le signal THz généré par cette antenne dans cette configuration est similaire à celui généré par l'antenne dipôle, avec une dynamique du signal sur bruit légèrement moins bonne, d'environ 5 dB (Figure 3.19).

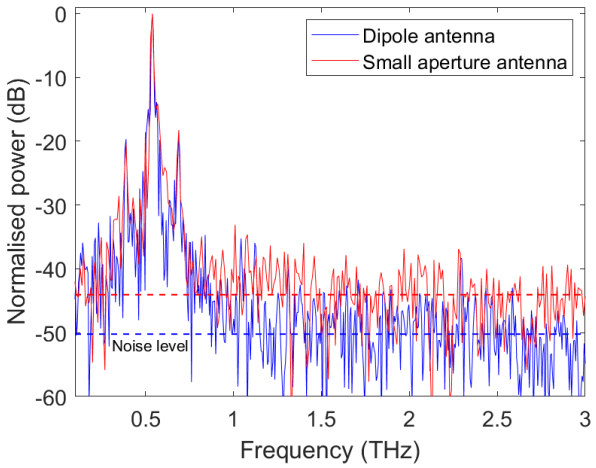
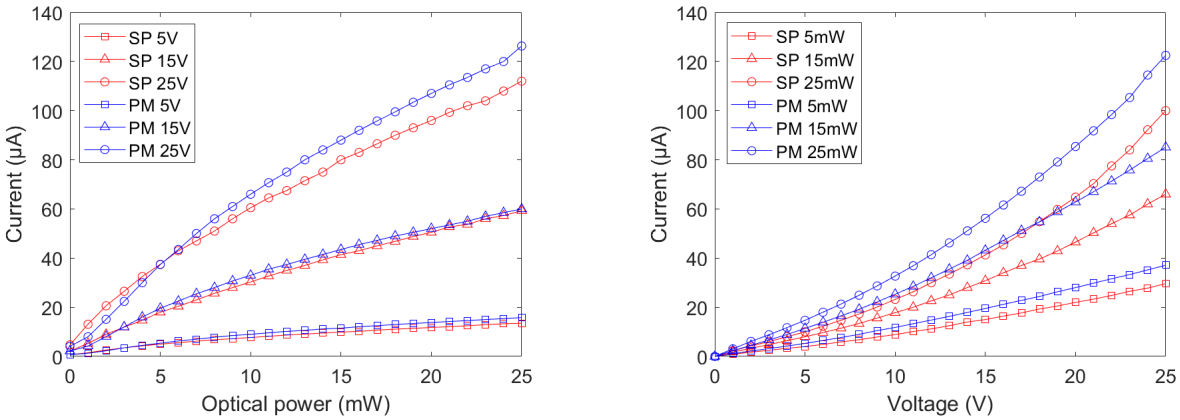


FIGURE 3.19 – Spectre mesuré du signal THz émis par photo-mélange quasi-continu sur antenne dipôle (bleu) ou sur antenne à petite ouverture (rouge). Le niveau de bruit est illustré en tirets.

Comme vu dans la partie théorique 3.4.1, les comportements de saturation de l'antenne photoconductrice présentent en théorie un comportement similaire entre une excitation par impulsion ultra-courte et une par photo-mélange d'impulsions à chirps identiques. La différence principale se retrouve dans la valeur de la puissance crête de saturation, qui est plus élevée pour l'excitation par photo-mélange.



(a) (b)

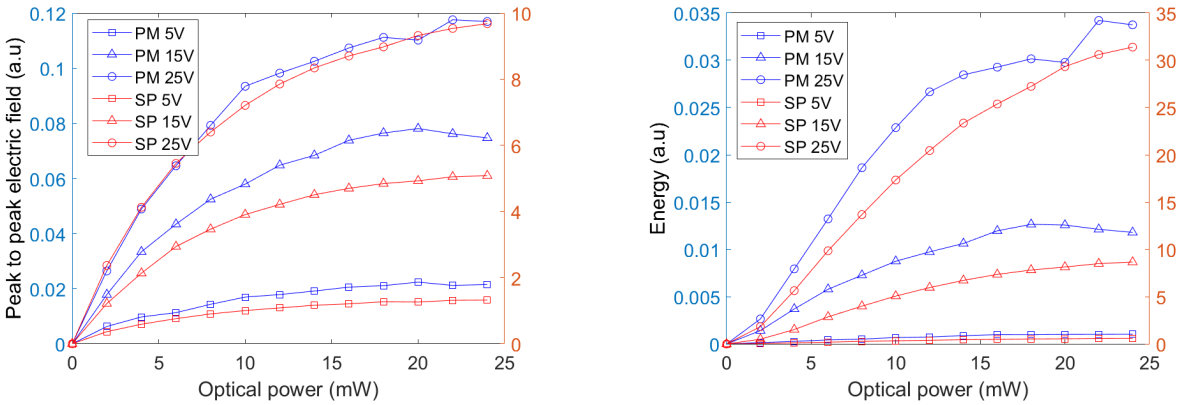
FIGURE 3.20 – a) Mesure du courant moyen généré dans l'antenne émettrice en fonction de la puissance optique incidente pour différentes tensions (5 V, 15 V et 25 V), avec une excitation par impulsion ultra-courte (rouge, SP) ou par photo-mélange d'impulsions avec chirps identiques (bleu, PM). b) Mesure du courant moyen en fonction de la tension pour différentes valeurs de puissance optique (5 mW, 15 mW et 25 mW).

Expérimentalement, le courant de l'antenne émettrice a été mesuré en fonction de la puissance optique et de la tension de polarisation (Figure 3.20). Dans le cas d'une excitation par photo-mélange (PM), les mesures montrent des résultats similaires à celles dans le cas d'une excitation par impulsion ultra-courte (SP), bien qu'une légère différence de courbure est notable. Il a été montré dans la partie 2.3.3 que le courant mesuré ne suit pas le phénomène de saturation attendu, ce qui rend difficile d'expliquer les faibles différences expérimentales entre les deux configurations d'excitation.

Pour une meilleure confrontation des mesures, il est nécessaire d'étudier l'évolution du champ électrique THz en fonction des paramètres de génération (Figure 3.21.a). Premièrement, l'amplitude crête à crête du champ est plus petite dans le cadre du photo-mélange d'un rapport entre

55 et 90 (dépendant de la puissance optique et de la tension). Cette diminution est attendue car les impulsions optiques sont étirées dans le temps, ce qui réduit la puissance crête de l'excitation. Cependant, comme décrit analytiquement dans la partie 3.4.1, cette réduction de la puissance crête augmente aussi en théorie la valeur de l'énergie optique, et donc de la puissance optique moyenne, à laquelle l'antenne se met à saturer, phénomène qui n'est expérimentalement pas observé. D'autres études [22, 38] montrent des mesures expérimentales cohérentes avec la démonstration théorique, ce qui signifie sûrement la présence d'une autre limitation dans notre approche expérimentale.

Du côté de l'énergie totale de l'impulsion THz (Figure 3.21.b), effectuée par intégration temporelle du module au carré du champ électrique $\int |E_{THz}|^2 dt$, l'impulsion THz générée par photo-mélange présente également une réduction, d'un facteur compris entre 300 et 1000. La durée plus longue de l'impulsion ne permet donc pas de compenser la perte d'amplitude et l'émission par photo-mélange résulte dès lors en une efficacité de conversion optique - THz plus faible que pour l'émission THz ultra-courte.



(a) (b)

FIGURE 3.21 – a) Mesure de l'amplitude crête à crête maximale du champ électrique THz émis en fonction de la puissance optique, avec une excitation par impulsion ultra-courte (rouge, SP) ou par photo-mélange d'impulsions avec chirps identiques (bleu, PM). b) Mesure de l'énergie d'une impulsion THz émise en fonction de la puissance optique.

3.5 Photo-mélange d'impulsions à chirps linéaires opposés

L'émission d'impulsions THz quasi-continues permet l'excitation des antennes à plus basse puissance crête, réduisant les risques d'endommagement du matériel optique en amont de l'antenne photo-conductrice. Cependant, son caractère quasi-monochromatique empêche la génération d'un spectre large, paramètre caractéristique des spectromètres TDS à impulsion ultra-courte. Cette deuxième configuration a pour objectif de réaliser la génération d'une impulsion THz à spectre large par photo-mélange d'impulsions temporellement étirées, et donc à basse puissance crête.

Pour générer un spectre large, cette configuration consiste à faire apparaître un battement optique dont la fréquence évolue en temps. Le principe se base sur la superposition spatiale et temporelle de deux impulsions optiques chirpées dont la distribution des fréquences est temporellement différente. Dans cette étude, nous nous concentrerons sur des chirps linéaires, mais opposés (Figure 3.22). Cela se traduit en une première impulsion (bleu) présentant ses basses fréquences avant ses hautes fréquences, et inversement pour la deuxième impulsion (rouge). La différence de fréquence entre les deux impulsions optiques n'est dès lors plus constante en fonction du temps :

$$\omega(t) = \omega_2(t) - \omega_1(t) = 2at \tag{3.60}$$

Ce battement optique présente une pulsation $\omega(t)$ variant linéairement en temps avec une fréquence nulle au centre de l'interférence, et une pente fréquence - temps égale au double de la pente du chirp optique $|a|$ (identique pour les deux impulsions à l'exception du signe). Ainsi, le spectre large du battement est composé temporellement de fréquences basses en son centre et de fréquences hautes sur ses extrémités.

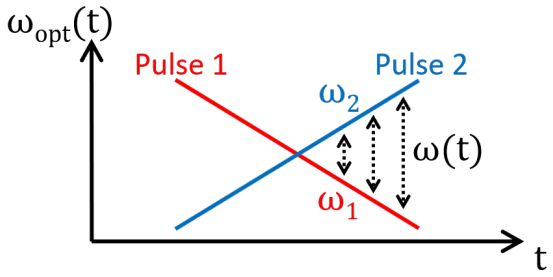


FIGURE 3.22 – Schéma de la distribution temporelle des fréquences pour deux impulsions optiques à chirps linéaires opposées. $\omega(t) = \omega_2(t) - \omega_1(t)$ représente la fréquence du battement optique généré par l'interaction entre les deux impulsions optiques.

3.5.1 Théorie

Développement analytique

L'excitation optique pour le photo-mélange à spectre large est réalisée à partir de deux impulsions optiques présentant un chirp linéaire opposé. En développant les termes suivant :

$$\gamma(-\phi'') = \gamma(\phi'') \quad ; \quad \alpha(-\phi'') = \frac{1}{4\beta\gamma(-\phi'')} = \alpha(\phi'') \tag{3.61}$$

$$a(-\phi'') = \frac{-\phi''}{8\beta^2\gamma(-\phi'')} = -a(\phi'') \quad ; \quad \epsilon(-\phi'') = \frac{1}{2}arctan(\frac{-\phi''}{2\beta}) = -\epsilon(\phi'') \tag{3.62}$$

Le champ électrique des deux impulsions avec un chirp linéairement opposé et un retard relatif Δ_t peut être exprimé comme :

$$\mathrm{E}_1(t) = \mathrm{E}e^{-\alpha t^2} cos\Big(\omega_0 t + at^2 - \epsilon\Big) \tag{3.63}$$

$$\mathrm{E}_2(t) = \mathrm{E}e^{-\alpha(t+\Delta_t)^2} cos\Big(\omega_0(t+\Delta_t) - a(t+\Delta_t)^2 + \epsilon\Big) \tag{3.64}$$

L'addition de ces deux composantes résulte ensuite en une puissance optique totale :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = \epsilon_0 c \mathrm{L} l |\mathrm{E}_1(t) + \mathrm{E}_2(t)|^2 \tag{3.65}$$

Dont le développement donne, en négligeant les modulations aux fréquences optiques :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = \epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 \left[e^{-2\alpha t^2} + e^{-2\alpha(t+\Delta_t)^2} + 2e^{-\alpha(2t^2+\Delta_t^2+2\Delta_t t)} cos(2at^2 + a\Delta_t^2 + \Delta_t(2at - \omega_0) - 2\epsilon) \right] \quad (3.66)$$

Ce qui se simplifie en :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = 2\epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 e^{-\alpha(2t^2+\Delta_t^2+2\Delta_t t)} \left[\mathrm{P}_{\mathrm{DC}}(t) + \mathrm{P}_{mod}(t) \right] \quad (3.67)$$

Cette expression est à nouveau composée d'un terme à variation lente P_{DC} et d'un terme modulé P_{mod} :

$$\mathrm{P}_{\mathrm{DC}}(t) = cosh(\Delta_t^2 + 2\Delta_t t) \quad (3.68)$$

$$\mathrm{P}_{mod}(t) = cos(2at^2 + \omega_{\mathrm{CW}} t + \phi_{\mathrm{THz}}) \quad (3.69)$$

Avec :
- $\omega_{\mathrm{CW}} = 2a\Delta_t$.
- $\phi_{\mathrm{THz}} = a\Delta_t^2 - \omega_0\Delta_t - 2\epsilon$.

Dans le cas où le retard relatif Δ_t entre les deux impulsions est nul, alors cette expression devient :

$$\mathrm{P}_{opt}(t) = 2\epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2 e^{-2\alpha t^2} \left[1 + cos(2(at^2 - \epsilon)) \right] \quad (3.70)$$

Contrairement à l'excitation pour le photo-mélange continue décrite par une modulation $cos(\omega t + \Phi_{\mathrm{THz}})$, Le terme temporellement modulé varie ici non linéairement en fonction de t^2, ce qui implique une évolution croissante et linéaire de la pulsation du battement $\omega(t) = 2at$ en s'éloignant du centre temporel du battement optique.

La détermination analytique de la densité de porteurs de charge $n(t)$ dans le semi-conducteur est ici plus complexe, due à la présence d'une non linéarité dans le cosinus à intégrer. En supposant que l'enveloppe $e^{-2\alpha t'^2}$ varie lentement et en intégrant la composante à variation lente, la densité de porteurs (Équation 2.8) est exprimée comme :

$$n(t) = 2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha t^2} \left[\tau + e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} cos(\omega(t')t' - 2\epsilon) e^{\frac{t'}{\tau}} dt' \right] \quad (3.71)$$

Le développement direct du terme à intégrer nécessite l'utilisation de fonctions mathématiques comme par exemple la fonction d'erreur complexe, et devient alors plus difficile à décrire analytiquement. Une autre approche consiste alors à approximer le développement de l'intégrale dans un régime linéaire permettant une simplification de l'intégration. Pour cela, l'équation est d'abord réécrite avec les formules d'Euler :

$$n(t) = 2\mathrm{K}'\mathrm{E}^2 e^{-2\alpha t^2} \left[\tau + \frac{1}{2} e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} e^{i(\omega(t')t' - 2\epsilon) + \frac{t'}{\tau}} + e^{-i(\omega(t')t' - 2\epsilon) + \frac{t'}{\tau}} dt' \right] \quad (3.72)$$

Ici, le terme exponentiel $e^{\frac{t'}{\tau}}$ localise la contribution de l'intégrande à des temps t' proches de t, tel que $t - t' \ll \tau$. Sur cet intervalle de temps $t' \simeq t$, le terme d'oscillation $\omega(t) = 2at$ peut être considéré quasi-monochromatique. Le terme $\varphi(t') = \omega(t')t'$ peut alors être développé en série de Taylor à l'ordre 1 autour de $t' = t$:

$$\varphi(t') = \varphi(t) + \varphi'(t)(t' - t) = \omega(t)t + 2\omega(t)(t' - t) = 2\omega(t)t' - \omega(t)t \tag{3.73}$$

Cette approximation est valide si les deux conditions suivantes sont atteintes :

- $\omega(t) \gg \frac{1}{\tau}$, la pulsation est suffisamment élevée pour que plusieurs oscillations aient lieu sur l'intervalle de temps τ.

- $\omega'(t) = 2a \ll \frac{1}{\tau^2}$, la dérivée temporelle de la fréquence est suffisamment lente pour considérer l'oscillation quasi-monochromatique sur cet intervalle de temps, ce qui correspond à pouvoir négliger le terme quadratique de la série de Taylor, $\frac{1}{2}\varphi''(t)\tau^2 = 2a\tau^2 \ll 1$.

L'expression approchée de la densité de porteurs devient dès lors :

$$n_\sim(t) = 2K'E^2 e^{-2\alpha t^2}\left[\tau + \frac{1}{2}e^{-\frac{t}{\tau}}\left(e^{i(-\omega(t)t-2\epsilon)}\int_{-\infty}^{t} e^{i2\omega(t)t'+\frac{t'}{\tau}}dt' + e^{-i(-\omega(t)t-2\epsilon)}\int_{-\infty}^{t} e^{-i2\omega(t)t'+\frac{t'}{\tau}}dt'\right)\right] \tag{3.74}$$

Le développement de l'intégrale est ici linéaire et donne :

$$n_\sim(t) = 2K'E^2 e^{-2\alpha t^2}\left[\tau + \frac{1}{2}\left(\frac{e^{i(\omega(t)t-2\epsilon)}}{i2\omega(t)+\frac{1}{\tau}} + \frac{e^{-i(\omega(t)t-2\epsilon)}}{-i2\omega(t)+\frac{1}{\tau}}\right)\right] \tag{3.75}$$

L'expression de $n_\sim$ est très similaire à celle étudiée en configuration quasi-continue (Équation 3.40). La suite du développement est alors le même, avec finalement, la densité de porteurs de charge $n_\sim$ s'exprimant :

$$n_\sim(t) = 2K'E^2 e^{-2\alpha t^2}\left[\tau + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + (2\omega(t))^2}}cos\left(\omega(t)t + \Phi_{THz}^{opp} - atan(2\omega(t)\tau)\right)\right] \tag{3.76}$$

avec :

- $\Phi_{THz}^{opp} = -2\epsilon$.
- $\omega(t) = 2at$.

Contrairement à l'expression quasi-continue, $\omega(t)$ devient ici dépendant de t, et non plus du retard relatif Δ_t fixé à une valeur nulle. La phase temporelle est ainsi non linéaire, avec une fréquence augmentant proportionnellement à $|t|$. En comparant à une résolution numérique de $n(t)$ à partir de l'équation 3.72 (Figure 3.23.a), cette approximation est valide pour des temps $|t| \gg 0$, où la pulsation ω devient suffisamment élevée $\omega \gg \frac{1}{\tau}$. Au centre de la forme temporelle, l'amplitude de $n(t)$ subit des variations qui ne sont pas modélisées par l'approximation. Toutefois, l'impact de ce comportement est directement dépendant du temps de vie des porteurs de charge τ (Figure 3.23.b), et devient négligeable pour de petites valeurs de τ. D'autre part, les valeurs maximales de la densité de porteurs sont également atteintes aux alentours du centre de l'impulsion, ce qui empêche d'utiliser cette expression approchée pour l'étude des comportements en régime saturé. Une approche par simulation numérique est alors nécessaire.

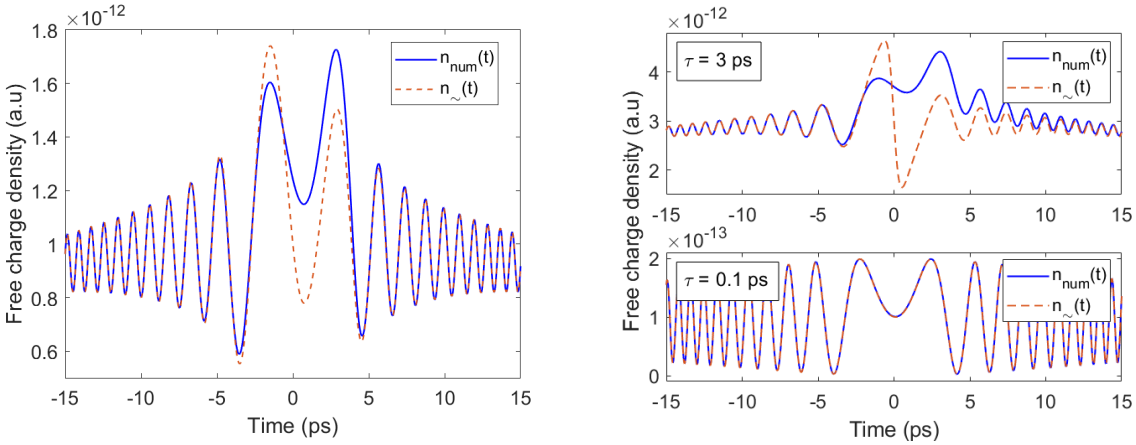


FIGURE 3.23 – a) Simulation numérique $n_{num}(t)$(bleu) et approximation analytique $n_{\sim}(t)$ (rouge) de l'évolution temporelle de la densité de porteurs de charge n en configuration de photo-mélange à spectre large. les paramètres sont fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. b) Simulation pour $\tau = 3$ ps (haut) et pour $\tau = 0.1$ ps (bas).

Simulation de l'impulsion THz émise et de l'effet de saturation

Le champ électrique THz émis en champ lointain est calculé numériquement par dérivation temporelle de $n(t)$ (Équation 2.13). La forme temporelle de cette impulsion THz générée par une telle configuration de photo-mélange est présentée en Figure 3.24.a. Elle est composée d'une enveloppe et d'une modulation à fréquence variable, ce qui se traduit en un spectre large (Figure 3.24.c). À basse fréquence, l'amplitude du spectre est réduite par un filtre $\frac{2\omega(t))}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+(2\omega(t))^2}}$, avec néanmoins une plus forte amplitude aux fréquences très proches de 0. L'évolution dans le temps des fréquences instantanées est quant à elle caractérisée via la réalisation d'un spectrogramme numérique (Figure 3.24.b). Pour cela, la transformée de Fourier rapide (FFT) est calculée localement en limitant sa plage temporelle à une porte, ici de forme carrée et de 4 ps de durée. En échantillonnant le champ électrique de l'impulsion par cette FFT localisée, la fréquence instantanée de l'impulsion peut être retracée en fonction du temps.

L'impulsion présente ainsi une rampe de fréquence linéaire dans le temps, correspondant à la fréquence du battement optique $\omega(t) = 2at$. Cette distribution présente une symétrie temporelle en $t = 0$ ps, avec la fréquence nulle se situant au centre de l'impulsion. Cela est dû à la configuration opposée des chirps pour le photo-mélange, sans introduction de retard relatif entre les deux impulsions optiques. Aussi, cette symétrie implique la présence d'une pulsation instantanée ω_{mod} égale à deux temps différents. Cette double présence produit une modulation dans le spectre de l'impulsion (Figure 3.24.b). La période F_{mod} de cette modulation dépend de la durée $T_{mod} = t_1(\omega_{mod}) - t_2(\omega_{mod})$ entre la double présence de cette même pulsation ω_{mod}. La distribution temps - fréquence étant connue ($\omega(t) = 2at$), la période F_{mod} peut être directement exprimée en fonction de ω :

$$F_{mod}(\omega) = \frac{1}{T_{mod}} = \frac{\omega}{a} \tag{3.77}$$

La présence de ces modulations n'est pas un obstacle systématique pour l'étude spectroscopique. De plus, elle peut être évitée numériquement en calculant le spectre de la moitié temporelle de l'impulsion THz (courbe rouge) pour empêcher la double présence des fréquences instantanées. Les faibles modulations résiduelles dans le spectre de la moitié temporelle proviennent de la constante de phase temporelle de l'impulsion THz, ce qui brise légèrement sa symétrie, en parti-

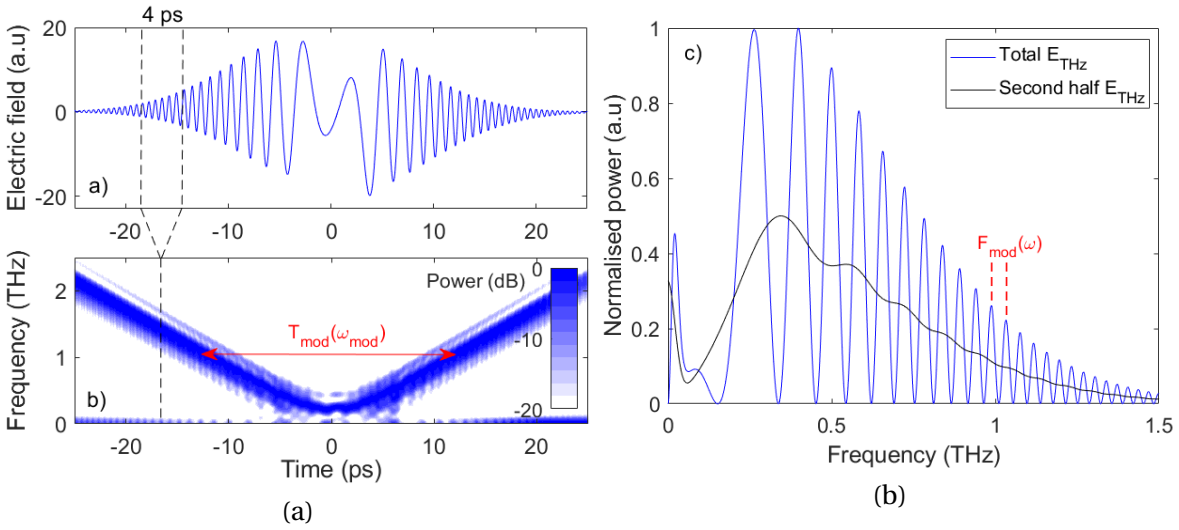


FIGURE 3.24 – Simulation d'une impulsion THz émise par photo-mélange à spectre large. a) Signal temporel et b) son spectrogramme calculé avec une porte glissante de 4 ps de durée. c) Spectre de l'impulsion complète (bleu) et de la deuxième moitié temporelle du signal (noir). Les paramètres sont fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 50$ fs, $\tau = 1$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

culier sur les basses fréquences proches de $t = 0$.

Le spectre de cette impulsion THz est ensuite simulé en faisant varier à chaque fois un paramètre différent (Figures 3.25 et 3.26). Ceux-ci sont, quand ils sont fixés, égaux respectivement à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, $\Delta_t = 0$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2. Les spectres présentés représentent l'enveloppe du spectre THz (courbe en grise), qui est calculée numériquement par interpolation des maxima locaux du spectre THz (points sur les courbes). À noter qu'aux basses fréquences, les modulations spectrales plus lentes qu'à haute fréquence provoquent une faible densité de maxima locaux, et donc une imprécision de l'interpolation.

Comme vu précédemment pour la génération THz quasi-continue, la durée à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique avant étirement temporel, qui est liée à la largeur du spectre optique, impacte la durée de l'impulsion après étirement pour une phase ϕ'' fixée. Toutefois, contrairement au photo-mélange quasi-continu, dont un t_Δ court signifie la génération d'un spectre THz fin, le photo-mélange d'impulsions à chirps opposés implique une relation directe entre largeur de spectre optique et largeur de spectre THz émis (Figure 3.25.a). Une durée t_Δ courte avant étirement se traduit ainsi en un spectre THz large, similairement à une excitation optique ultra-courte. Néanmoins, à énergie optique constante, une plus courte durée t_Δ de l'impulsion avant étirement signifie en échange une plus basse amplitude crête du spectre THz, contrairement aux deux autres configurations. Un compromis est alors à faire, où notamment, la génération d'un spectre THz adaptée à la réponse de l'antenne permet l'optimisation de l'efficacité de conversion optique - THz tout en maximisant la largeur du spectre généré.

Une autre similarité du comportement avec la configuration ultra-courte se retrouve dans le rôle du temps de vie des porteurs de charge τ, qui agit sur la fréquence THz principale émise (Figure 3.25.b). Plus ce temps est court, plus le spectre THz émis est centré à une fréquence élevée, au détriment de l'efficacité de conversion optique - THz. Là encore, ce résultat ne prend pas en compte certains paramètres précisés dans l'étude continue, pouvant réduire l'efficacité réelle pour des temps de vie τ élevés.

Enfin, la phase spectrale d'ordre deux ϕ'' modifie la pente temps-fréquence $a(\phi'')$ du chirp linéaire. Ainsi, les fréquences instantanées THz se retrouvent réparties différemment en fonction de

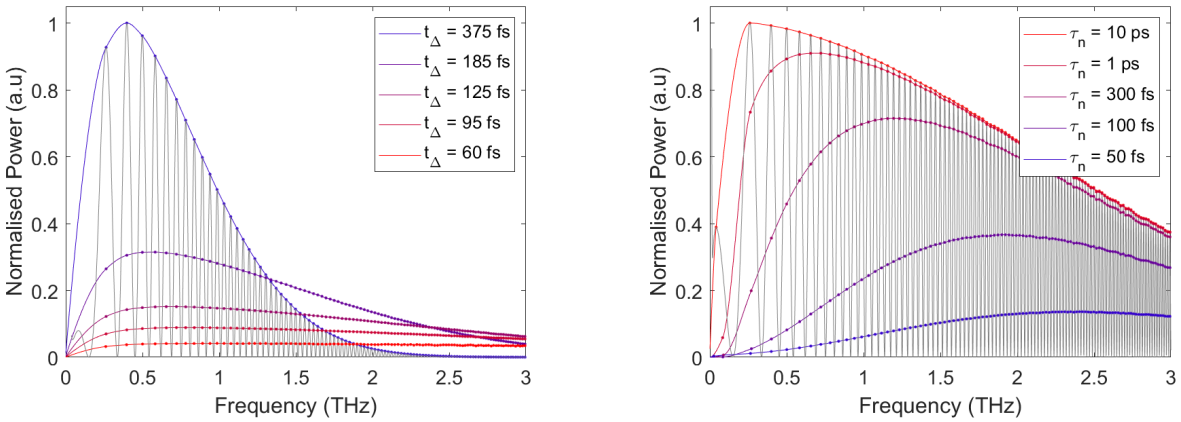


FIGURE 3.25 – Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange à spectre large pour a) différentes durées à mi-hauteur t_Δ de l'impulsion optique avant étirement temporel avec $\tau = 1$ ps. b) différents temps de recombinaison τ des porteurs de charge avec $t_\Delta = 70$ fs. Les courbes en couleur représentent l'enveloppe du spectre modulé (gris) pour chaque paramètre. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $\Delta_t = 0$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

la valeur de ϕ''. Cela impacte la période de la modulation spectrale F_{mod}, mais aussi la durée totale de l'impulsion THz émise, ce qui modifie l'efficacité totale de l'émission (Figure 3.26). L'étirement temporel de l'impulsion amoindri ainsi l'efficacité de conversion optique - THz, ce qui limite la génération de très longues impulsions THz à spectre large.

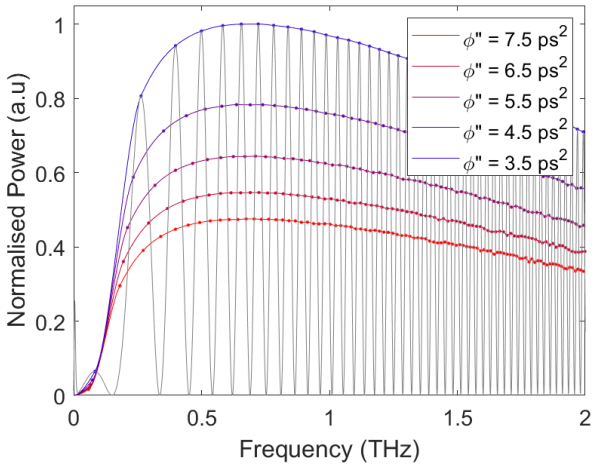


FIGURE 3.26 – Simulation du spectre THz émis dans une configuration de photo-mélange à spectre large pour différentes phases spectrales d'ordre deux ϕ''. Les courbes en couleur représentent l'enveloppe du spectre modulé (gris) pour chaque paramètre. Les valeurs sont normalisées par la plus grande amplitude des différentes courbes. Les autres paramètres sont respectivement fixés à $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\Delta_t = 0$ ps et $\tau = 1$ ps.

Concernant le comportement de saturation optique, la photo-conductivité maximale peut être exprimée en reprenant la forme non développée de $n(t)$ (Équation 3.71) :

$$\sigma_{max} = q\mu \max(n(t)) = 2q\mu K' E^2 \left[\tau + \max\left(e^{-2\alpha t^2} e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} cos(\omega(t')t' - 2\epsilon) e^{\frac{t'}{\tau}} dt'\right)\right] \tag{3.78}$$

En reprenant les équations de la partie 3.4.1, la densité de photo-courant maximale sous l'effet de saturation peut alors être décrite comme :

$$j_{max} \simeq \frac{\mathrm{E}_{bias}}{\eta'} \frac{\mathrm{P}^{c}_{opt}}{\mathrm{P}^{c}_{opt} + \frac{1}{\eta' q \mu \mathrm{K}[\tau + \max(\mathrm{A}(t))]}} \tag{3.79}$$

avec :
- $\mathrm{P}^{c}_{opt} = 2\epsilon_0 c \mathrm{L} l \mathrm{E}^2$, la puissance optique crête.
- $\mathrm{A}(t) = e^{-2\alpha t^2} e^{-\frac{t}{\tau}} \int_{-\infty}^{t} cos(\omega(t')t' - 2\epsilon) e^{\frac{t'}{\tau}} dt'$

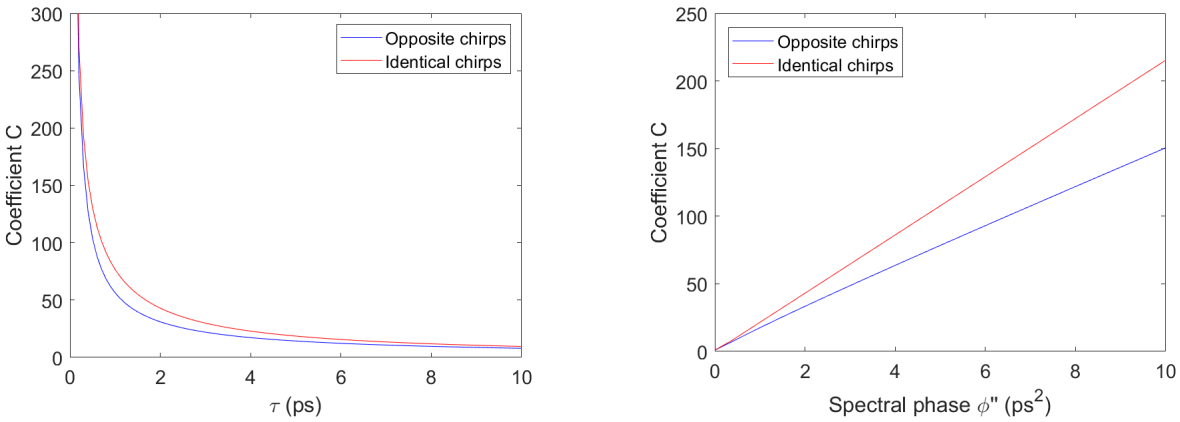
Cette expression met en avant une puissance crête de saturation égale à :

$$\mathrm{P}^{sat}_{opt} = \frac{\mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{SP}}}{\tau + \max(\mathrm{A}(t))} \quad : \quad [\mathrm{J}.s^{-1}] \tag{3.80}$$

Qui se traduit en une énergie par impulsion $\mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{PM}opp}$:

$$\mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{PM}opp} = \mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}opp} \mathscr{E}^{sat}_{\mathrm{SP}} \tag{3.81}$$

avec $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}opp} = \frac{\sqrt{\frac{\pi}{2\alpha}}}{\tau + \max(\mathrm{A}(t))}$



(a) (b)

FIGURE 3.27 – Coefficient $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}opp}$ (bleu) et $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ (rouge) en fonction a) du temps de recombinaison τ. b) de la phase d'ordre deux ϕ″. Les valeurs sont respectivement fixées à $\phi'' = 3.5$ ps^2 (a) et à $\tau = 1$ ps (b), avec $t_\Delta = 70$ fs, et $f = \frac{\omega}{2\pi} = 0.5$ THz pour la fréquence émise en photo-mélange quasi-continu.

Ce coefficient $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}opp}$ présente un comportement similaire au coefficient $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw}$ obtenu en configuration de photo-mélange quasi-continu (Figure 3.27), avec dans l'ensemble des valeurs légèrement plus petites. Cela signifie que l'émission THz en configuration de photo-mélange à spectre large sature en théorie à énergie optique moins haute qu'en photo-mélange quasi-continu, d'autant plus si la fréquence émise en photo-mélange quasi-continue est haute. Cela est expliqué principalement par la présence du coefficient de recouvrement temporel $e^{2\alpha t_d^2}$ en configuration quasi-continue, qui est égal à 1 dans la configuration à spectre large. Pour une durée réaliste du temps de vie τ égale à 1 ps, une phase spectrale $\phi'' = 3.5$ ps^2 et une fréquence d'émission $f = \frac{\omega}{2\pi} = 0.5$ THz en photo-mélange quasi-continu, la valeur des coefficients est respectivement égale à $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}cw} = 76.7$ et $\mathrm{C}^{sat}_{\mathrm{PM}opp} = 56.3$.

3.5.2 Résultats expérimentaux

Module de façonnage optique

Le module utilisé pour la production de cette configuration tire parti de l'asymétrie de la structure périodique du VBG (Figure 3.28). En séparant l'impulsion optique ultra-courte en deux chemins optiques dirigés respectivement vers un côté opposé du VBG, une distribution temporelle des fréquences présentant une pente opposée leur est introduite. Mise à part la différence de forme spectrale (et donc temporelle) vue dans la partie 3.3.1, ces deux impulsions possèdent les mêmes caractéristiques, ce qui simplifie l'étude comportementale du photo-mélange.

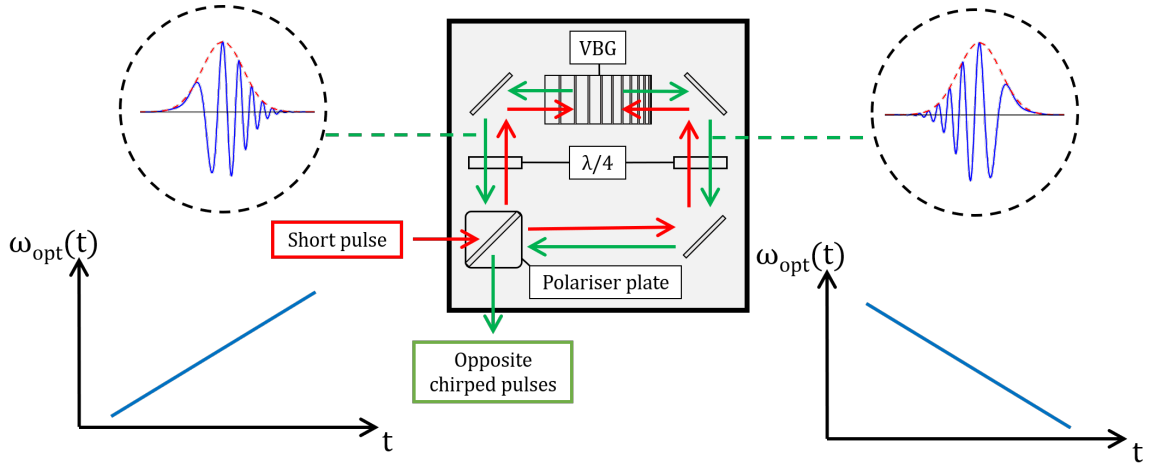


FIGURE 3.28 – Schéma du module expérimental pour la mise en place d'une double impulsion optique linéairement chirpée, les deux impulsions présentant un chirp opposé.

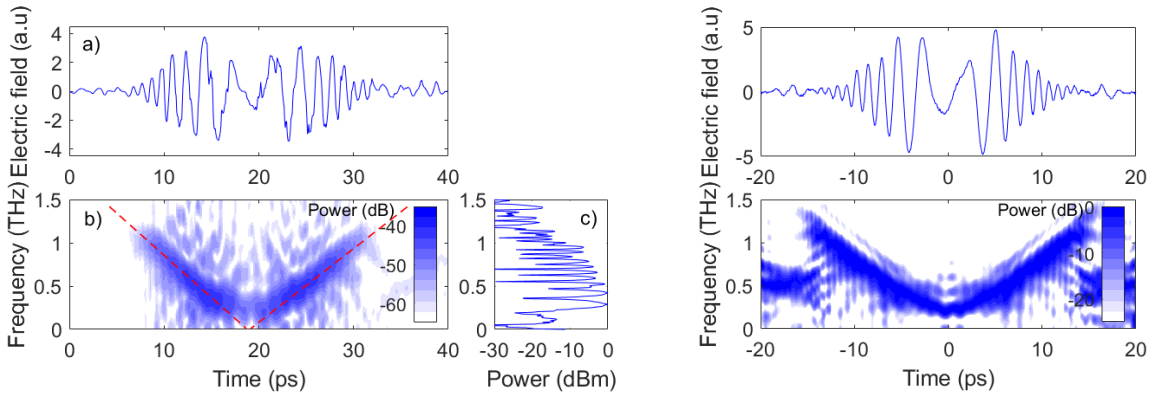
Pour optimiser les pertes optiques au sein du module, les faisceaux optiques sont séparés puis recombinés à l'aide d'un polariseur associé avec deux lames quart-d'onde ($\lambda/4$). Après séparation par un polariseur, les deux faisceaux optiques passent dans une $\lambda/4$ une première fois avant, puis une deuxième fois après réflexion dans le VBG. La polarisation des deux faisceaux est alors tournée de 90°, ce qui permet leur recombinaison vers le chemin de sortie via le polariseur.

Il est à noter que le VBG laisse passer au travers une partie de la puissance optique de l'impulsion (environ 50%), correspondant principalement aux fréquences en dehors de la bande de réflexion du VBG. Il est important que ce résidu non chirpé ne se retrouve pas impliqué dans l'excitation optique de l'antenne photo-conductrice. Pour cela, les deux faisceaux ne sont pas superposés au niveau du VBG, afin qu'en sortie du module, le résidu optique suive un trajet parallèle (et non pas superposé) au faisceau principal et puisse donc être filtré spatialement par l'utilisation d'un iris.

Mesure d'une onde THz de longue durée à spectre large

Via l'excitation par photo-mélange à spectre large de l'antenne photo-conductrice, la génération d'une impulsion THz longue est générée avec un champ électrique symétrique autour du centre de l'impulsion (Figure 3.29.A.a). La puissance optique et la tension de polarisation ont été respectivement fixées à 15 mW et 25 V. Le motif oscillatoire de l'impulsion temporelle indique clairement que la fréquence évolue au cours du temps.

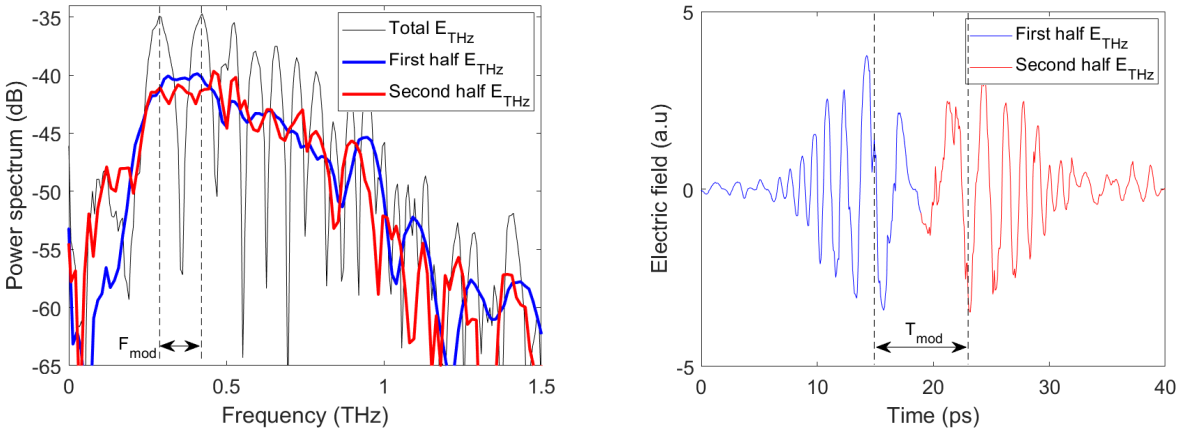
Cette évolution est confirmée en réalisant le spectrogramme numérique de l'impulsion (Figure 3.29.A.b) avec une porte glissante d'une durée de 4 ps. La distribution temporelle des fréquences



(A) (B)

FIGURE 3.29 – A) Signal mesuré d'une impulsion THz émise par photo-mélange à spectre large sur l'antenne dipôle pour une puissance optique de 15 mW et une tension de 25 V. a) Signal temporel. b) Spectrogramme de l'impulsion. c) Spectre de l'impulsion. Les tirets en rouge illustrent la pente de 90 GHz/ps. B) Impulsion THz simulée avec l'introduction du spectre optique expérimental et d'un bruit simulé ajusté à -20 dB, les autres paramètres étant fixés tels que $\lambda_0 = 1028$ nm, $t_\Delta = 70$ fs, $\tau = 1$ ps, $\Delta_t = 0$ ps et $\phi'' = 3.5$ ps^2.

présente une variation linéaire, semblable à une impulsion THz chirpée, avec une rampe d'environ ±90 GHz/ps (tirets rouges). À titre comparatif, l'impulsion THz émise dans cette configuration est simulée numériquement (Figure 3.29.B). Pour cela, deux paramètres expérimentaux sont introduits à la simulation, le spectre optique des deux impulsions chirpées, le filtre passe-bande correspondant à la réponse des antennes, et un bruit simulé. Ce dernier est introduit par l'ajout d'une variable aléatoire dont la valeur maximale correspond au bruit expérimental mesuré ici à -20 dB. La réponse des antennes est quant à elle estimée comme équivalente au spectre normalisé du signal THz émis puis détecté par excitation ultra-courte (Figure 2.11.b). La forme temporelle simulée et sa distribution des fréquences instantanées présentent une bonne correspondance avec le signal mesuré expérimentalement, ce qui conforte la validité de cette génération THz par photo-mélange à spectre large. À noter que le signal visible à environ 0.5 THz sur les extrémités temporelles du spectrogramme de l'impulsion THz simulée est dû à un artefact de simulation.



(a) (b)

FIGURE 3.30 – Mesure respectivement de la première (bleu) et deuxième (rouge) moitié temporelle du signal THz émis par photo-mélange à spectre large. a) Spectre des deux moitiés temporelles et de l'impulsion complète (noir). b) Signal temporel.

De par la symétrie temporelle du photo-mélange, la fréquence la plus basse est émise au centre de l'impulsion, tandis que les fréquences plus élevées sont générées aux extrémités. Cette symé-

trie entraîne la génération d'une même fréquence THz à deux instants différents, ce qui provoque une modulation spectrale observable dans le spectre du champ électrique complet (Figure 3.30.a). Pour exemple, la modulation spectrale de période F_{mod} = 0.13 THz et centrée à ω_{mod} = 0.35 THz, correspond à une durée T_{mod} = 7.69 ps entre les deux fréquences instantanées égales (Figure 3.30.b). À titre de comparaison, les deux moitiés de la trace temporelle ont été séparées numériquement pour supprimer cette double présence d'une même fréquence, et leur spectre correspond à celui de l'impulsion complète sans les modulations spectrales.

Bien que cette modulation spectrale n'impacte pas systématiquement les mesures spectroscopiques, elle pourrait être évitée en utilisant d'autres configurations optiques, comme l'utilisation de deux réseaux de Bragg différents. De plus, le profil spectral obtenu avec la moitié de l'impulsion chirpée montre un comportement similaire à celui du spectre pour une impulsion ultra-courte jusqu'à environ 1.2 THz. Cependant, sa dynamique plus faible (≃20 dB) limite la détection des fréquences supérieures à 1 THz, ce qui se traduit également en une forme temporelle plus courte d'environ 12 ps à mi-hauteur, confirmant que les hautes fréquences aux bords de l'impulsion n'ont pas été détectées. Cette dynamique, inférieure à celle obtenue en photo-mélange quasi-continu (≃ 45 dB), peut être due à une génération temporellement localisée pour chaque fréquence instantanée. Là où une même fréquence est générée sur plusieurs dizaines de picosecondes en photo-mélange continu, sa génération en photo-mélange à spectre large ne se fait qu'à un instant t très court. L'énergie émise consacrée à chaque fréquence THz est dès lors très faible.

Caractérisation en fonction de la puissance optique et de la tension

L'antenne à petite ouverture utilisée pour la caractérisation du signal présente un champ électrique THz similaire à celui émis par l'antenne dipôle (Figure 3.31.a), avec une distribution fréquence - temps égale, mais dont le spectre est fortement bruité (Figure 3.31.b). Cette faible dynamique (entre 10 et 15 dB) introduit une difficulté supplémentaire pour la caractérisation du signal ainsi qu'une réduction de la fréquence maximale détectée à 1 THz au lieu de 1.2 THz. Toutefois, le comportement global du signal émis reste cohérent entre les deux formes d'antenne.

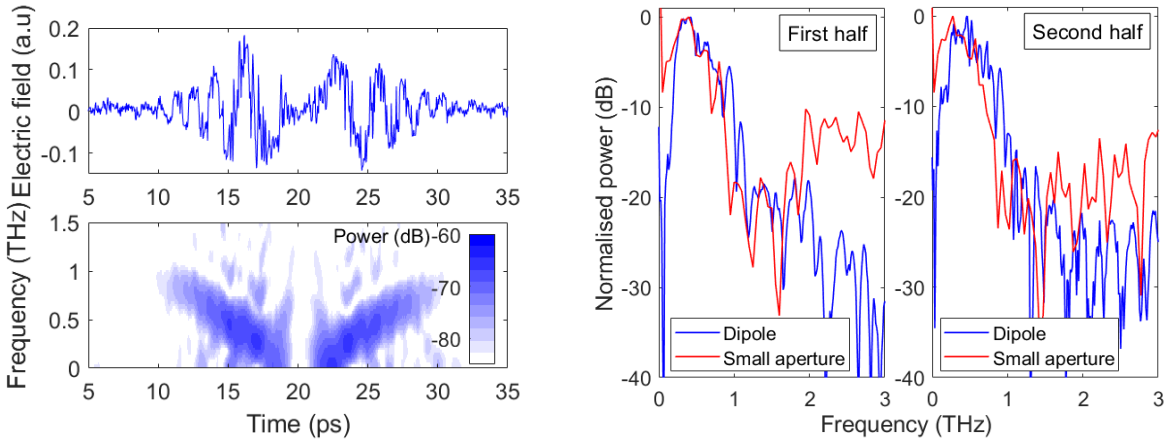


FIGURE 3.31 – a) Signal THz émis par l'antenne à petite ouverture via photo-mélange à spectre large pour une puissance optique de 15 mW et une tension de 25 V. (haut) Champ électrique temporel. (bas) Spectrogramme numérique correspondant. b) Spectre THz de chaque moitié temporelle du signal émis par l'antenne dipôle (bleu) ou par l'antenne à petite ouverture (rouge)

La mesure du courant moyen dans l'antenne à petite ouverture en fonction de la puissance optique et de la tension montre un comportement très similaire pour les deux configurations de

photo-mélange (Figure 3.32). L'écart des valeurs est supposé provenir d'une différence dans l'alignement optique, dont le profil spatial, après réflexion dans le VBG, ne présente pas la même déformation suivant le coté du VBG utilisé. Cela provoque un recouvrement spatial potentiellement moins optimal entre les deux impulsions optiques, et donc un alignement optique sur l'antenne moins efficace.

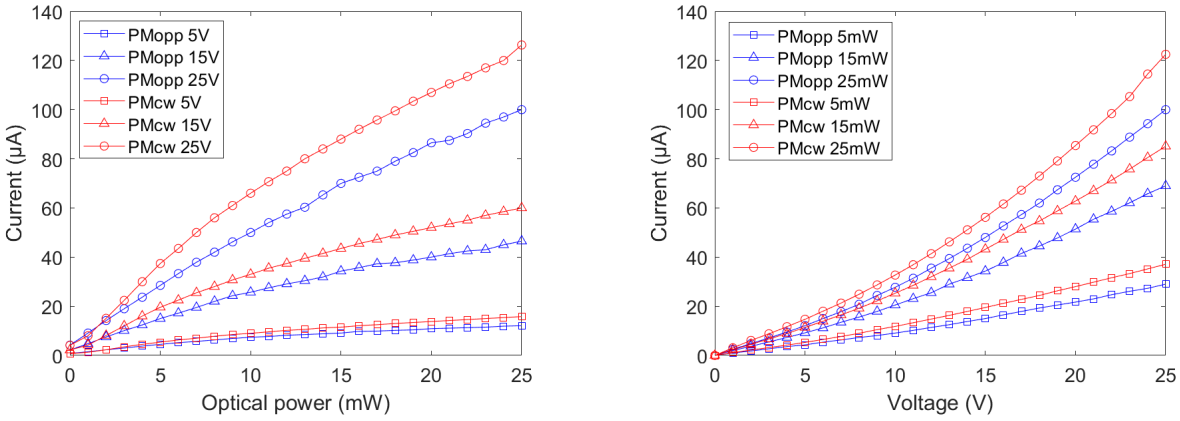


FIGURE 3.32 – a) Mesure du courant moyen généré dans l'antenne émettrice en fonction de la puissance optique incidente pour différentes tensions (5 V, 15 V et 25 V), avec une excitation par photo-mélange quasi-continu (rouge, PMcw) ou à spectre large (bleu, PMopp). b) Mesure du courant moyen en fonction de la tension pour différentes valeurs de puissance optique (5 mW, 15 mW et 25 mW).

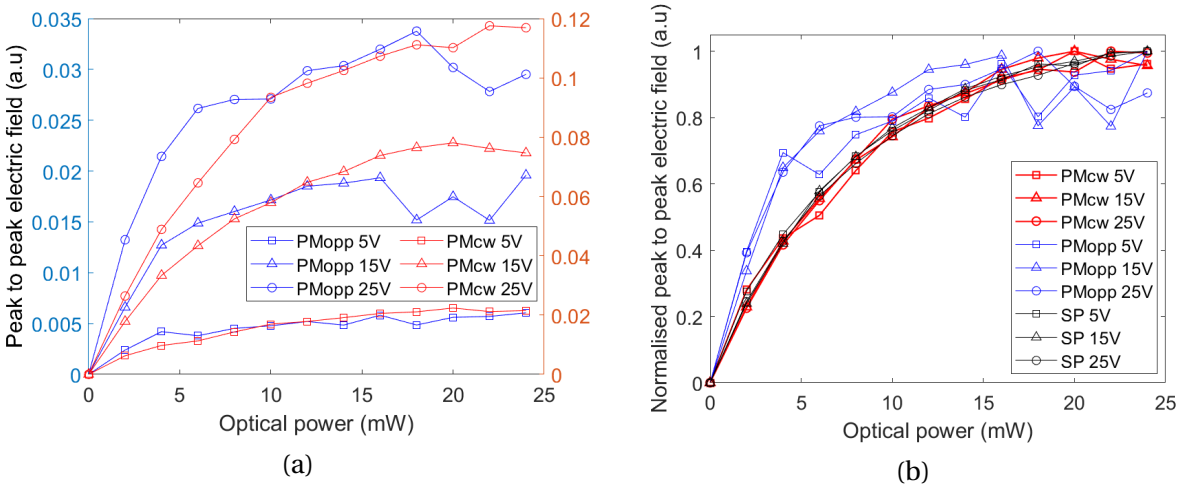


FIGURE 3.33 – a) Mesure de l'amplitude crête à crête maximale du champ électrique THz émis en fonction de la puissance optique, avec une excitation par photo-mélange quasi-continu (rouge, PMcw) ou à spectre large (bleu, PMopp). b) Mesures normalisées. La génération THz par excitation ultra-courte est représentée en noir (SP).

Cette perte d'efficacité se voit d'autant plus du côté de l'émission THz, où l'amplitude crête à crête du champ électrique diminue d'un facteur 4 par rapport à une émission via photo-mélange quasi-continu (Figure 3.33.a). De plus, en normalisant les courbes (Figure 3.33.b), l'émission THz via photo-mélange à spectre large montre une saturation à plus basse puissance optique. Cette saturation apparaît à environ 2.7 mW, contrairement aux deux autres configurations (photo-mélange quasi-continu et excitation ultra-courte) où elle apparaît à une puissance d'environ 8.5 mW. Une diminution de cette valeur était attendue par rapport au photo-mélange quasi-continu, cependant elle devrait être en théorie bien supérieure à la valeur de saturation en régime ultra-court, ce qui n'est pas le cas ici. En plus d'une amplitude plus petite, l'impulsion THz émise via photo-

mélange à spectre large présente également une durée plus courte que celle émise par photo-mélange quasi-continu dû à la faible dynamique des hautes fréquences. Ces différences résultent ici en une énergie par impulsion plus faible en utilisant les impulsions à chirps opposés pour le photo-mélange.

3.6 Conclusion

Basé sur l'étirement temporel des impulsions optiques par l'introduction d'un chirp linéaire, l'émission et la détection d'impulsions THz via le processus de photo-mélange ont été démontrées pour deux configurations d'excitation optique.

La première, réalisant un battement optique entre deux impulsions à chirps linéaires identiques, permet la génération d'une onde THz quasi-continue (quasi-monochromatique), caractérisée par une longue durée et un spectre fin, dont la fréquence centrale est ajustable par l'écart temporel entre les deux impulsions optiques. Sa forme temporelle est ainsi identifiable au produit d'une enveloppe avec une onde THz émise par photo-mélange en régime continu. Les simulations montrent que la largeur du spectre THz est principalement définie par la durée des impulsions optiques chirpées, qui elle dépend de la durée initiale de l'impulsion et de la phase spectrale introduite.

La deuxième configuration permet, via le photo-mélange d'impulsions à chirps opposés, de générer une impulsion THz toujours de longue durée, mais avec un spectre large et une distribution temporelle des fréquences THz. Les simulations ont montré un comportement du spectre globalement similaire à celles pour l'impulsion ultra-courte, avec néanmoins un compromis à faire entre spectre large et amplitude spectrale THz pour une énergie d'excitation optique constante. Également, il a été montré que l'étirement temporel de l'impulsion amoindri l'efficacité de conversion optique - THz, ce qui limite la génération de très longues impulsions THz à spectre large.

Ces démonstrations valident l'utilisation d'impulsions optiques de longues durées pour la génération d'impulsions THz via antennes photo-conductrices, permettant la réduction de la puissance crête de la source optique ainsi qu'un contrôle plus libre sur le spectre THz émis et sur sa distribution temporelle.

En contrepartie, la puissance et la dynamique du signal émis se retrouvent fortement diminuées par rapport à une émission THz ultra-courte. Cette limitation peut trouver compensation grâce à l'utilisation d'une matrice d'antenne de plus grandes dimensions (permise par la puissance optique crête plus petite), mais également par la conception d'antennes plus adaptées à la génération par photo-mélange, avec notamment une ouverture plus grande, permettant d'élargir la zone d'excitation optique et donc de limiter l'échauffement local du semi-conducteur sous de plus grandes puissances moyennes. Enfin, certains phénomènes de saturations demeurent dans la nécessité d'être mieux compris pour potentiellement trouver des solutions aux limitations rencontrées expérimentalement.

3.7 Bibliography

[1] F. Zernike and P. R. Berman. Generation of far infrared as a difference frequency. *Physical Review Letters*, 15 :999–1001, 1965. 47

[2] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis. Photomixing up to 3.8 THz in low-temperature-grown GaAs. *Applied Physics Letters*, 66(3) :285–287, 1995. 47

[3] A. Stöhr and D. Jäger. THz photomixers : an overview. In *Millimeter-Wave and Terahertz Photonics*, volume 6194, page 61940D. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2006. 47

[4] S. Preu, G. H. Döhler, S. Malzer, L. J. Wang, and A. C. Gossard. Tunable, continuous-wave terahertz photomixer sources and applications. *Journal of Applied Physics*, 109(6) :061301, 2011.

[5] E. Pliński. Terahertz photomixer. *Bulletin of the Polish Academy of Sciences Technical Sciences*, 58(No 4) :463–470, 2010.

[6] E. Peytavit, G. Ducournau, and J.-F. Lampin. THz photomixers. In *Fundamentals of terahertz devices and applications*. Wiley, 2021.

[7] E. Peytavit. *Génération et Propagation aux fréquences Terahertz*. Theses, Université des Sciences et Technologie de Lille - Lille I, 2002.

[8] S. Matton. *Génération de rayonnement terahertz par photomélange et développement d'une détection homodyne : application à la caractérisation de polluants atmosphériques et de milieux diélectriques*. Theses, 2004. 47

[9] D.-C. Shin, B. S. Kim, H. Jang, Y.-J. Kim, and S.-W. Kim. Photonic comb-rooted synthesis of ultra-stable terahertz frequencies. *Nature Communications*, 14 :790, 2023. 47

[10] W. Wang, P.-K. Lu, A. K. Vinod, D. Turan, J. F. McMillan, H. Liu, M. Yu, D.-L. Kwong, M. Jarrahi, and C. W. Wong. Coherent terahertz radiation with 2.8-octave tunability through chip-scale photomixed microresonator optical parametric oscillation. *Nature Communications*, 13 :5123, 2022. 47

[11] S.-H. Yang and M. Jarrahi. Frequency-tunable continuous-wave terahertz sources based on GaAs plasmonic photomixers. *Applied Physics Letters*, 107 :131111, 2015. 47

[12] H. Ito, F. Nakajima, T. Furuta, and T. Ishibashi. Continuous THz-wave generation using antenna-integrated uni-travelling-carrier photodiodes. *Semiconductor Science and Technology*, 20(7) :S191, 2005. 47

[13] E. A. Michael, B. Vowinkel, R. Schieder, M. Mikulics, M. Marso, and P. Kordoš. Large-area traveling-wave photonic mixers for increased continuous terahertz power. *Applied Physics Letters*, 86(11) :111120, 2005. 47

[14] E. A Michael. Travelling-wave photonic mixers for increased continuous-wave power beyond 1 THz. *Semiconductor Science and Technology*, 20(7) :S164, 2005. 47

[15] I. S. Gregory, C. Baker, W. R. Tribe, I. V. Bradley, M. J. Evans, E. H. Linfield, A. G. Davies, and M. Missous. Optimization of photomixers and antennas for continuous-wave terahertz emission. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 41(5) :717–728, 2005. 50

[16] L. Liebermeister, S. Nellen, R. B. Kohlhaas, S. Lauck, M. Deumer, S. Breuer, M. Schell, and B. Globisch. Optoelectronic frequency-modulated continuous-wave terahertz spectroscopy with 4 THz bandwidth. *Nature communications*, 12 :1071, 2021. 50

[17] P.-K. Lu and M. Jarrahi. Frequency-domain terahertz spectroscopy using long-carrier-lifetime photoconductive antennas. *Optics Express*, 31(6) :9319–9329, 2023.

[18] C. Marc, B. Marcon, L. Denaud, and S. Girardon. Non-destructive wood analysis dataset : Comparing X-ray and terahertz imaging techniques. *Data*, 9(11), 2024.

[19] B. Carré, A. Chopard, J.-P. Guillet, F. Fauquet, P. Mounaix, and P. Gellie. Terahertz nondestructive testing with ultra-wideband FMCW radar. *Sensors*, 23(1) :187, 2023. 50

[20] A. S. Weling, B. B. Hu, N. M. Froberg, and D. H. Auston. Generation of tunable narrow-band THz radiation from large aperture photoconducting antennas. *Applied Physics Letters*, 64(2) :137–139, 1994. 50

[21] A. S. Weling and D. H. Auston. Novel sources and detectors for coherent tunable narrow-band terahertz radiation in free space. *Journal of the Optical Society of America B*, 13(12) :2783–2792, 1996.

[22] Y. Liu, S.-G. Park, and A. M. Weiner. Enhancement of narrow-band terahertz radiation from photoconducting antennas by optical pulse shaping. *Optics Letters*, 21(21) :1762–1764, 1996. 70

[23] J. Y. Sohn, Y. H. Ahn, D. J. Park, E. Oh, and D. S. Kim. Tunable terahertz generation using femtosecond pulse shaping. *Applied Physics Letters*, 81(1) :13–15, 2002.

[24] J. Stigwall and A. Wiberg. Tunable terahertz signal generation by chirped pulse photomixing. *IEEE Photonics Technology Letters*, 19(12) :931–933, 2007.

[25] J. Adamonis, N. Rusteika, R. Danilevičius, and A. Krotkus. A compact terahertz burst emission system driven with 1µm fiber laser. *Optics Communications*, 293 :61–64, 2013.

[26] S. Kamada, S. Murata, and T. Aoki. On the chirp of narrowband terahertz pulses generated by photomixing with nonlinearly chirped laser pulse pairs. *Applied Physics Express*, 6(3) :032701, 2013.

[27] Y.-R. Huang, P.-C. and. Chyi. J.-I Chiu, and C.-K. Sun. A study on the fiber dispersion effect for the generation of quasi-sinusoidal terahertz modulations on optical pulses. *Journal of Lightwave Technology*, 33(23) :4899–4907, 2015. 50

[28] M. Wollenhaupt, A. Assion, and T. Baumert. Femtosecond laser pulses : Linear properties, manipulation, generation and measurement. In *Springer Handbook of Lasers and Optics*, pages 937–983. Springer New York, 2007. 50

[29] A. Zeitouny, S. Stepanov, O. Levinson, and M. Horowitz. Optical generation of linearly chirped microwave pulses using fiber Bragg gratings. *IEEE Photonics Technology Letters*, 17(3) :660–662, 2005. 53

[30] O. Mhibik, M. Yessenov, L. Mach, L. Glebov, A. F. Abouraddy, and I. Divliansky. Rotated chirped volume Bragg gratings for compact spectral analysis. *Optics Letters*, 48(5) :1180–1183, 2023. 53

[31] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank. Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation. *Optics Letters*, 12(7) :483–485, 1987. 54

[32] E. Treacy. Optical pulse compression with diffraction gratings. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 5(9) :454–458, 1969. 54

[33] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert. Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128-element liquid crystal phase modulator. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(4) :908–920, 1992. 55

[34] G. Stobrawa, M. Hacker, T. Feurer, D. Zeidler, M. Motzkus, and F. Reichel. A new high-resolution femtosecond pulse shaper. *Applied Physics B*, 72 :627–630, 2001.

[35] T. Tanigawa, Y. Sakakibara, S. Fang, T. Sekikawa, and M. Yamashita. Spatial light modulator of 648 pixels with liquid crystal transparent from ultraviolet to near-infrared and its chirp compensation application. *Optics Letters*, 34(11) :1696–1698, 2009. 55

[36] F. Verluise, V. Laude, J.-P. Huignard, P. Tournois, and A. Migus. Arbitrary dispersion control of ultrashort optical pulses with acoustic waves. *Journal of the Optical Society of America B*, 17(1) :138–145, 2000. 55

[37] P. Tournois. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems. *Optics Communications*, 140(4) :245–249, 1997. 55

[38] A. S. Weling and T. F. Heinz. Enhancement in the spectral irradiance of photoconducting terahertz emitters by chirped-pulse mixing. *Journal of the Optical Society of America B*, 16(9) :1455–1467, 1999. 70

Chapitre 4

Spectroscopie et détection homodyne

Dans ce dernier chapitre, les deux configurations de photo-mélange ainsi que la configuration d'excitation ultra-courte sont mises en pratique dans un cas simple de spectroscopie. Deux échantillons solides sont étudiés, composés respectivement de Silicium et de téflon. Cette étude a pour objectif la mise en évidence des potentielles limites expérimentales à l'utilisation de ces configurations photo-mélange. Notamment, la démonstration d'une non-reproductibilité de la mesure concernant la phase temporelle du signal THz amène à l'introduction d'une méthode de détection homodyne du signal pour apporter une solution à cette problématique.

4.1 Spectroscopie d'échantillons

La spectroscopie est une méthode de mesure permettant l'analyse spectrale d'un échantillon [1–16]. Certaines caractéristiques peuvent en être extraites telles que le spectre d'absorption et/ou de réflexion du matériau échantillonné, ainsi que son indice de réfraction en fonction de la fréquence. Les deux régimes THz, continu et impulsionnel ultra-court, sont utilisés suivant le besoin expérimental. Le spectre large des impulsions ultra-courtes [17–22] permet l'analyse d'échantillons avec une acquisition rapide à haut taux de répétition, permettant des mesures en quasi-temps réel, notamment pour l'étude de phénomènes non reproductibles [23, 24]. Les sources CW [25–31] offrent quant à elles une grande résolution spectrale (de l'ordre du MHz ou inférieur contre l'ordre du GHz pour le régime impulsionnel), nécessaire par exemple pour la caractérisation précise de raies d'absorption, en échange d'un temps d'acquisition plus long (de l'ordre du dixième de seconde) pour réaliser l'accordabilité large spectre de la source.

Le procédé est basé sur une analyse comparative entre une mesure dite de référence du champ électrique THz $\mathrm{E}^{r}_{\mathrm{THz}}$ et une mesure de l'échantillon par le champ électrique $\mathrm{E}^{e}_{\mathrm{THz}}$ [32]. Leur expression peut être décrite par l'introduction respective d'une fonction de transfert H_r et H_e au champ électrique lointain $\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}$ émis par l'antenne émettrice :

$$\mathrm{E}^{r}_{\mathrm{THz}}(\omega) = \mathrm{H}_r(\omega)\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}(\omega) \tag{4.1}$$

$$\mathrm{E}^{e}_{\mathrm{THz}}(\omega) = \mathrm{H}_e(\omega)\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}(\omega) \tag{4.2}$$

Ces fonctions de transfert décrivent la phase introduite et l'absorption lors de la propagation de l'onde THz dans le milieu entre l'émetteur et le récepteur :

$$\mathrm{H}_r(\omega) = \mathrm{A}_{\mathrm{T}}(\omega)e^{i\phi_{\mathrm{T}}(\omega)}\mathrm{A}_r(\omega)e^{i\phi_r(\omega)} \tag{4.3}$$

$$\mathrm{H}_e(\omega) = \mathrm{A}_{\mathrm{T}}(\omega)e^{i\phi_{\mathrm{T}}(\omega)}\mathrm{A}_e(\omega)e^{i\phi_e(\omega)} \tag{4.4}$$

avec :

- $A_{T,e,r}(\omega)$, l'absorption due à la propagation de l'onde, respectivement, entre l'émetteur et le récepteur, dans l'échantillon, et sur la distance équivalente à l'épaisseur d_e de l'échantillon sans sa présence.

- $\phi_{T,e,r}(\omega)$, la phase spectrale associée.

Les caractéristiques de l'échantillon peuvent ainsi être déterminées en extrayant la fonction de transfert des mesures. Pour cela, le rapport entre la mesure de référence et celle de l'échantillon est réalisé :

$$R = \frac{E^e_{THz}(\omega)}{E^r_{THz}(\omega)} = \frac{H_e(\omega)}{H_r(\omega)} = \frac{A_e(\omega)}{A_r(\omega)} e^{i(\phi_e(\omega)-\phi_r(\omega))} \tag{4.5}$$

Ce rapport permet de supprimer l'expression non mesurable du champ électrique E_{THz} et celle de la fonction de transfert $H_T(\omega) = A_T(\omega)e^{i\phi_T(\omega)}$. De plus, en supposant que le milieu de référence soit de l'air et que la distance correspondant à l'épaisseur d_e de l'échantillon soit petite, il est possible de faire les approximations $A_r(\omega) \simeq 1$ et $\phi_r(\omega) \simeq \frac{\omega d_e}{c}$. Le rapport R devient alors :

$$R = A_e(\omega)e^{i(\phi_e(\omega)-\frac{\omega d_e}{c})} \tag{4.6}$$

De ce rapport des deux mesures, il est ainsi possible d'en extraire directement les valeurs d'absorption et de phase de l'échantillon en fonction de la pulsation ω. Dans le cas idéal d'un échantillon homogène et en négligeant les réflexions dans le matériau, la phase spectrale peut être décrite en fonction de l'indice de réfraction n_{ind} de l'échantillon tel que $\phi_e(\omega) = n_{ind}(\omega)\frac{\omega d_e}{c}$, ce qui permet de déterminer la valeur de n_{ind} en fonction de la différence de phase spectrale $\Delta\phi = \phi_e - \phi_r$ entre la mesure de référence et celle de l'échantillon :

$$n_{ind}(\omega) = 1 + \frac{c\Delta\phi(\omega)}{\omega d_e} \tag{4.7}$$

4.1.1 Spectroscopie par impulsion THz ultra-courte

L'étude spectroscopique expérimentale est tout d'abord réalisée dans la configuration en ultra-court. Cette méthode de génération THz, mature et robuste, permet d'obtenir des résultats de référence pour confronter les mesures en configurations de photo-mélange quasi-continue et à spectre large. Trois mesures du signal THz sont réalisées (Figure 4.1). La première (jaune), sans présence d'échantillon, sert de référence. Pour les deux autres (rouge et bleu), un échantillon, respectivement du Silicium (d_e = 3.5 mm) et téflon (d_e = 9 mm), sont positionnés sur le chemin de l'onde THz entre les deux antennes photo-conductrices.

Dû au coefficient d'absorption A_e, mais également à des pertes dues aux réflexions aux surfaces du matériau, les deux champs électriques THz qui se sont propagés dans un échantillon présentent une réduction de leur amplitude temporelle et spectrale par rapport au signal de référence (Figure 4.2). Spectralement, l'atténuation due au Silicium est assez uniforme en fréquence ($\simeq$ 5 dB), là où celle due au téflon est plus grande pour les hautes fréquences ($\simeq$ 35 dB), mais aussi globalement plus forte de par sa plus grande épaisseur. Sur la plage de fréquence [0;0.1] THz, le spectre de la mesure de l'échantillon de Silicium présente une amplitude supérieure à celle de la mesure de référence. Cette impossibilité indique que les très basses fréquences sont fortement

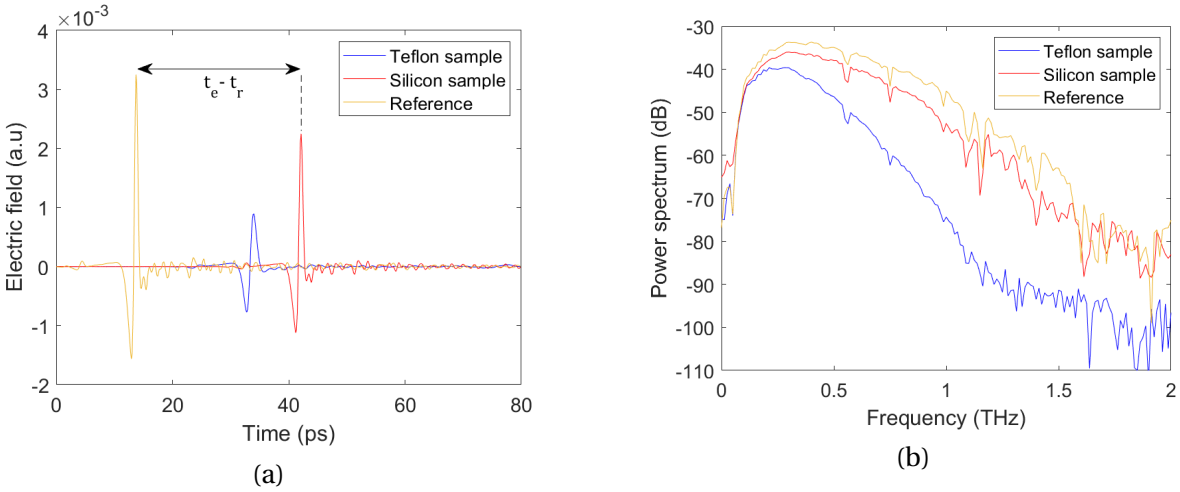


FIGURE 4.1 – Mesure de l'impulsion THz ultra-courte après être passée au travers d'un échantillon de téflon (bleu) ou de Silicium (rouge) ainsi que celle de référence (jaune). a) Signal temporel. b) Spectre du signal.

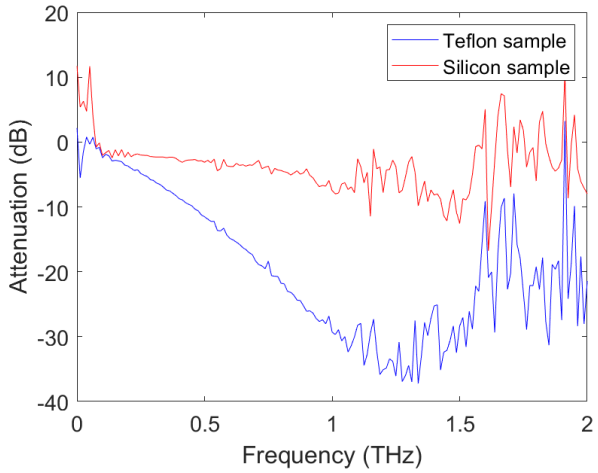


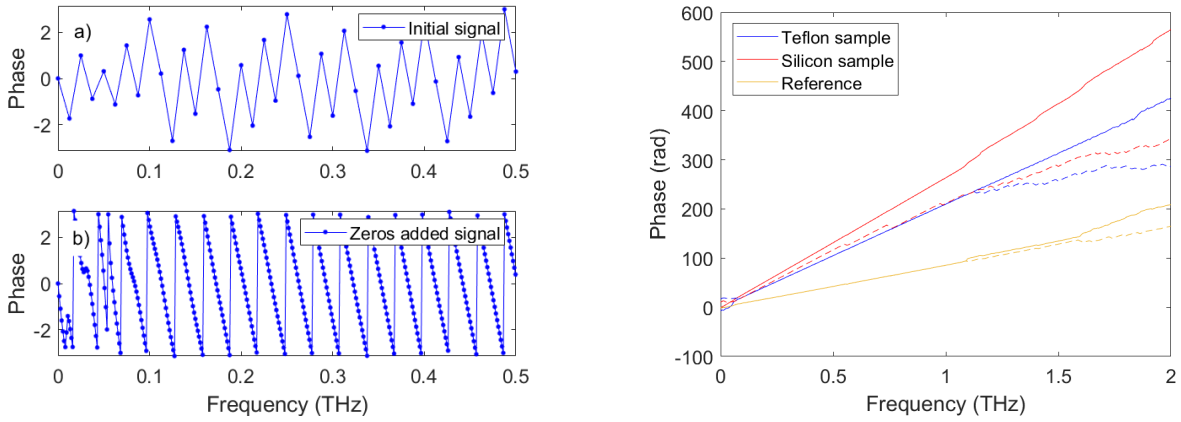
FIGURE 4.2 – Atténuation du spectre en fonction de l'échantillon mesuré.

bruitées, ce qui empêche de les analyser, de même pour les fréquences supérieures à 1.5 THz.

La phase spectrale de l'impulsion THz est ensuite extraite de son spectre par calcul numérique et donne des valeurs comprises dans l'intervalle $[-\pi;\pi[$ (Figure 4.3.A.a). Pour pouvoir l'étudier et en extraire les informations comme la différence de phase $\Delta\phi$, il est nécessaire de la déplier, ce qui correspond à un développement de la fonction sur $\mathbb{R}$ par compensation des sauts de phase (Figure 4.3.B).

La fonction numérique utilisée donne un résultat cohérent si le signal analysé présente une résolution spectrale élevée et un bruit de mesure faible. Dans le cas contraire, les sauts de phases $\pm 2\pi$ à introduire à la phase pour le dépliement deviennent difficile à définir sans réaliser des hypothèses préalables. Ici, des points numériques de valeur nulle sont introduits à la fin du signal temporel (zero padding) afin d'améliorer la résolution de la phase spectrale sans influencer significativement sur sa forme (Figure 4.3.A.b). L'augmentation du nombre de points sur une même période $[-\pi;\pi[$ de la phase réduit la différence de phase entre deux points successifs dans le spectre, permettant de mieux définir la position spectrale et le signe des sauts de phase à introduire.

Deux autres hypothèses sont mises en place pour améliorer la réalisation du dépliement de la phase. Premièrement, la valeur dépliée de $\phi(\omega)$ dépend directement de celle de la phase $\phi(\omega - d\omega)$. Ainsi, l'ensemble de la phase dépliée dépend des valeurs de phase aux fréquences proches de



(A) (B)

FIGURE 4.3 – A) Phase spectrale de la mesure THz du téflon sur l'intervalle $[-\pi;\pi[$, a) sans ou b) avec ajout de points numériques de valeur nulle à la fin du signal temporel. B) Phase spectrale dépliée des trois mesures THz (en valeur absolue), avec (ligne) ou sans (tirets) ajout de points numériques à la fin du signal temporel. La phase absolue ϕ_0 a été soustraite des courbes.

0. Ces fréquences étant bruitées, la phase absolue ϕ_0 est différente d'une mesure à l'autre. La phase dépliée sur l'intervalle non bruité $[0.1;1.1]$ THz est considérée comme linéaire. En supposant $\phi(0) = 0$, alors la phase absolue ϕ_0 peut être déterminée en modélisant la phase par une fonction linéaire $\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_\omega \omega$, puis peut être soustraite de $\phi(\omega)$.

La deuxième hypothèse suppose que la phase est monotone. Les premiers sauts de phases introduits à $\phi(\omega)$ fixent le signe dominant de sa pente après dépliement, mais le bruit aux basses fréquences peut inverser ce signe de façon aléatoire. Pour garantir une monotonie cohérente entre les différentes mesures, la phase dépliée est mise en valeur absolue.

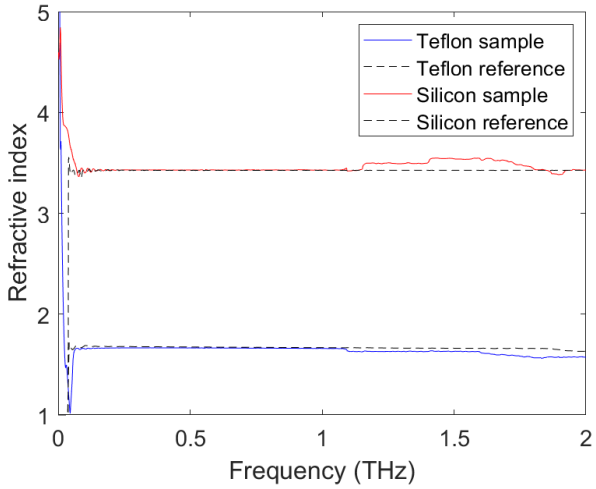


FIGURE 4.4 – Indice de réfraction en fonction de la fréquence. Mesure via le montage expérimental en impulsion ultra-courte (ligne) ou via le TeraPulse Lx (tirets).

L'indice de réfraction peut ensuite être déterminé en réalisant la différence entre la phase spectrale du signal passant à travers un échantillon et celui de référence. La valeur de l'indice, exprimée par $n_{ind}(\omega) = 1 + \frac{c\Delta\phi}{\omega d_e}$ est constante sur l'intervalle $[0.1;1.1]$ THz (Figure 4.4). Les valeurs de l'indice sur le reste du spectre varient de façon non reproductible, ce qui est dû à la faible dynamique du signal THz sur ces fréquences. De par son caractère uniforme dans le domaine spectral, la phase spectrale ϕ_ω se traduit temporellement en un retard de groupe (Équation 3.19) dépendant de l'échantillon traversé, et donc en un retard relatif différent entre la mesure de référence t_r

et la mesure d'un échantillon t_e (Figure 4.1.a). Ce retard permet de calculer un indice de réfraction moyen via la formule :

$$n_{ind} = 1 + \frac{c(t_e - t_r)}{d_e} \tag{4.8}$$

Cet indice moyen, calculé en mesurant le retard relatif entre le maximum des deux impulsions THz, donne une valeur respectivement d'environ 1.68 et 3.43 pour le téflon et le Silicium, valeur très proche de la moyenne de l'indice calculé par différence de phase sur l'intervalle [0.1; 1.1] THz, respectivement d'une valeur d'environ 1.66 et 3.43. L'indice est également confronté à une mesure de l'indice par un spectromètre industriel (courbes en tirets), un TeraPulse Lx de l'entreprise TeraView, afin de vérifier la validité du montage expérimental pour la spectroscopie. Les indices obtenus sont environ de 1.67 pour le téflon et de 3.43 pour le Silicium, valeurs très proches des mesures expérimentales.

Pour vérifier l'accord avec la mesure du TeraPulse Lx, l'indice de réfraction du Silicium est extrait sur une série de 10 mesures du montage expérimental pour déterminer l'impact du bruit du signal THz (Figure 4.5). Sur l'intervalle [0.2; 1] THz, les valeurs varient sur une plage $\Delta n_{ind} \simeq 0.0026$ avec un écart-type de $n^{\sigma}_{ind} = 0.00095$, ce qui est inférieur à l'écart entre la mesure expérimentale et la mesure TeraPulse Lx. Cet écart systématique provient donc d'autres paramètres de mesure [33, 34], tels que l'épaisseur réelle traversée par l'onde THz dans l'échantillon ou la divergence du faisceau THz incident, qui peuvent être différents entre les deux systèmes de mesure.

Les oscillations observées aux alentours de 0.6, 0.7, 1 et 1.1 THz sont probablement dues aux raies d'absorption de la vapeur d'eau observées dans le chapitre 2 (Figure 2.11). À 1.15 THz, une discontinuité de la valeur de l'indice apparaît. Cette fréquence correspond à un pic d'absorption de la vapeur d'eau, dont l'absorption est suffisamment conséquente pour introduire une phase supérieure à 2π. Cette variation n'est alors pas correctement restituée durant le dépliement de la phase et résulte en une erreur dans le calcul de l'indice pour les fréquences supérieures à 1.15 THz. Les oscillations entre 0.1 et 0.2 THz sont elles cohérentes d'une mesure à l'autre, mais leur provenance n'est pas identifiée.

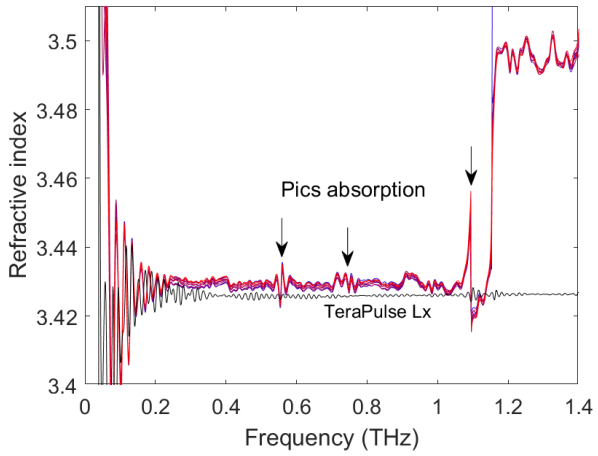


FIGURE 4.5 – Indice de réfraction en fonction de la fréquence pour différentes mesures successives de l'échantillon de Silicium avec une impulsion ultra-courte. La courbe en noir représente la mesure TeraPulse Lx de l'indice de réfraction.

4.1.2 Spectroscopie par impulsion THz de longue durée à spectre fin

Contrairement à l'impulsion THz ultra-courte, l'impulsion THz émise par photo-mélange quasi-continu ne présente pas un spectre large. La phase spectrale n'étant dès lors définie qu'autour d'une seule fréquence, elle ne peut pas être dépliée correctement et le calcul de la différence de phase n'est donc pas possible. L'extraction temporelle de l'indice moyen est alors la méthode utilisée. De plus, le spectre fin de l'impulsion THz permet d'approximer l'indice de réfraction moyen à celui associé à la fréquence centrale de l'impulsion THz. La fréquence THz émise peut ensuite être ajustée sur l'ensemble de la plage spectrale pour mesurer l'indice de réfraction sur un large spectre. La mesure du signal de référence et des deux échantillons est réalisée en configuration de photo-mélange quasi-continu avec une fréquence d'émission à 0.5 THz (Figure 4.6). Similairement aux mesures en configuration en ultra-court, la mesure de l'échantillon montre un signal THz présentant un retard ainsi qu'une diminution de son amplitude par rapport au signal de référence. L'atténuation à 0.5 THz est respectivement de 3.84 et 16.89 dB pour le Silicium et le téflon, contre 3.18 et 12.72 dB en mesures ultra-courtes.

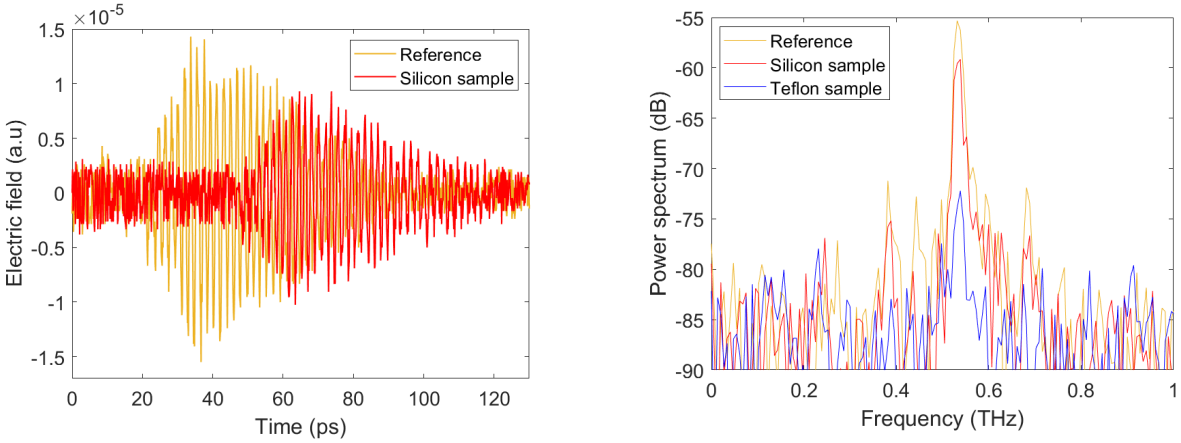
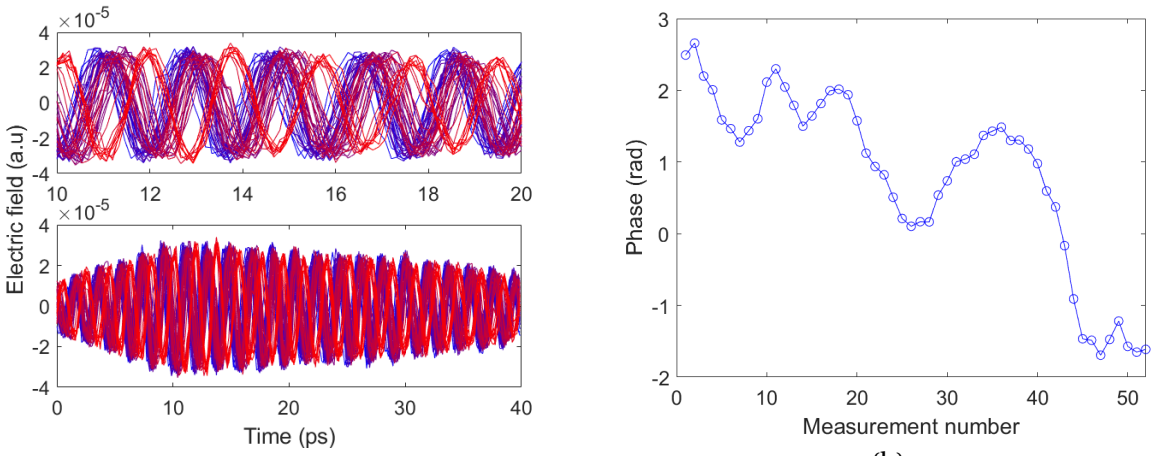


FIGURE 4.6 – Mesure de l'impulsion THz quasi-continue après être passée (rouge) ou non (jaune) au travers d'un échantillon de Silicium. a) Signal temporel. b) Spectres correspondants et celui de la mesure THz de l'échantillon de téflon (bleu).

La détermination du retard relatif entre la mesure de référence et celle de l'échantillon est ici plus difficile. La forme temporelle de longue durée de l'impulsion THz est composée d'une multitude d'oscillations, et la reconnaissance de son maximum est complexifiée par la présence d'un bruit élevé de mesure. De plus, la phase absolue temporelle de l'impulsion est différente d'une mesure à l'autre (Figure 4.7.a), l'oscillation avec la plus grande amplitude n'est donc pas toujours identique. L'évolution de la phase absolue, est calculée sur une cinquantaine de mesures (Figure 4.7.b.), où elle présente une variation cumulée supérieur à π et globalement décroissante. Cette variation n'est donc pas seulement du bruit de mesure, mais bien une dérive de la phase absolue sur un temps long. Une telle différence de phase absolue peut modifier l'indice de réfraction jusqu'à ±0.17 (correspondant à un déphasage de ±π) pour le silicium (d'épaisseur 3.5 mm), ce qui est conséquent. Une méthode alternative, la détection homodyne, sera expérimentée ultérieurement pour apporter une solution à cette limitation technique.

Pour extraire le retard relatif de ces mesures THz, il est donc important de dissocier l'enveloppe temporelle de la porteuse. Pour cela, l'enveloppe est modélisée par interpolation des maxima locaux de l'impulsion THz. Cette enveloppe, bien que fortement bruitée, présente une stabilité de son centre temporel sur l'ensemble des mesures (Figure 4.8.a). Le retard relatif peut ensuite être numériquement obtenu par corrélation croisée des deux enveloppes temporelles (mesure de référence E_r^{env} et celle de l'échantillon E_e^{env}), ce qui consiste à établir la convolution des deux signaux :



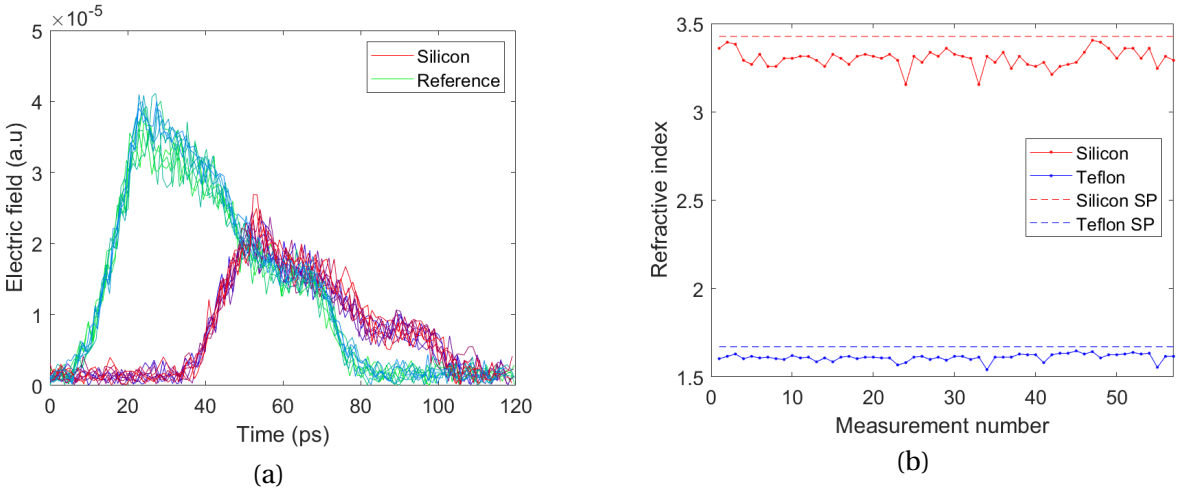
(a) (b)

FIGURE 4.7 – a) Signal temporel de l'impulsion THz en configuration de photo-mélange quasi-continu pour 52 mesures successives (du bleu au rouge). (bas) Intervalle temporel de [0;40] ps. (haut) Zoom sur l'intervalle temporel de [10;20] ps. b) Phase spectrale du signal THz à la fréquence centrale (0.33 THz) en fonction du numéro de mesure.

$$C_c(\Delta t) = \int_{-\infty}^{\infty} E_e^{env}(\Delta t - t) E_r^{env}(t) dt \tag{4.9}$$

La valeur maximale de la convolution C_c est obtenue au temps Δt_{max} où la superposition entre les deux enveloppes $E_e^{env}(\Delta t - t)$ et $E_r^{env}(t)$ est maximale. Ce temps correspond alors au retard relatif entre les deux enveloppes $\Delta t_{max} = t_e - t_r$. L'indice n_{ind} peut dès lors être calculé pour chaque paire de mesure référence - échantillon (Figure 4.8.b).

L'indice de réfraction varie autour d'une valeur moyenne égale à 1.61 pour le téflon et à 3.30 pour le Silicium, valeurs plus basses que la mesure TeraPulse Lx et la mesure expérimentale dans la configuration en ultra-court. Pour le Silicium, l'écart entre la plus petite et la plus grande valeur obtenue est de $\Delta n_{ind} \simeq 0.28$ avec un écart-type de $n_{ind}^{\sigma} = 0.050$, et pour le téflon, ces valeurs sont de $\Delta n_{ind} \simeq 0.11$ et de $n_{ind}^{\sigma} = 0.020$.



(a) (b)

FIGURE 4.8 – a) Enveloppe temporelle du champ électrique pour 10 mesures successives avec échantillon de Silicium (rouge et bleu) ou sans échantillon (vert et cyan). b) Indice de réfraction obtenu en fonction du numéro de la paire de mesures. Les seuils en tirets (SP) représentent la mesure de l'indice moyen dans la configuration en ultra-court.

4.1.3 Spectroscopie par impulsion THz de longue durée à spectre large

Comme pour la spectroscopie par impulsion THz ultra-courte, l'émission par photo-mélange à spectre large permet l'étude de l'indice de réfraction en fonction de la fréquence THz via l'extraction de la phase spectrale. La mesure de référence et celles des deux échantillons par photo-mélange à spectre large (Figure 4.9.a) montrent également un retard relatif ainsi qu'une atténuation similaires aux deux autres configurations. Cependant la faible dynamique du signal THz rend l'analyse des mesures compliquée. De plus, les modulations spectrales dues à la double présence temporelle d'une même fréquence empêchent la caractérisation précise du spectre, bien qu'elles puissent être fortement atténuées en ne réalisant la transformée de Fourier que de la moitié temporelle de l'impulsion (Figure 4.9.b).

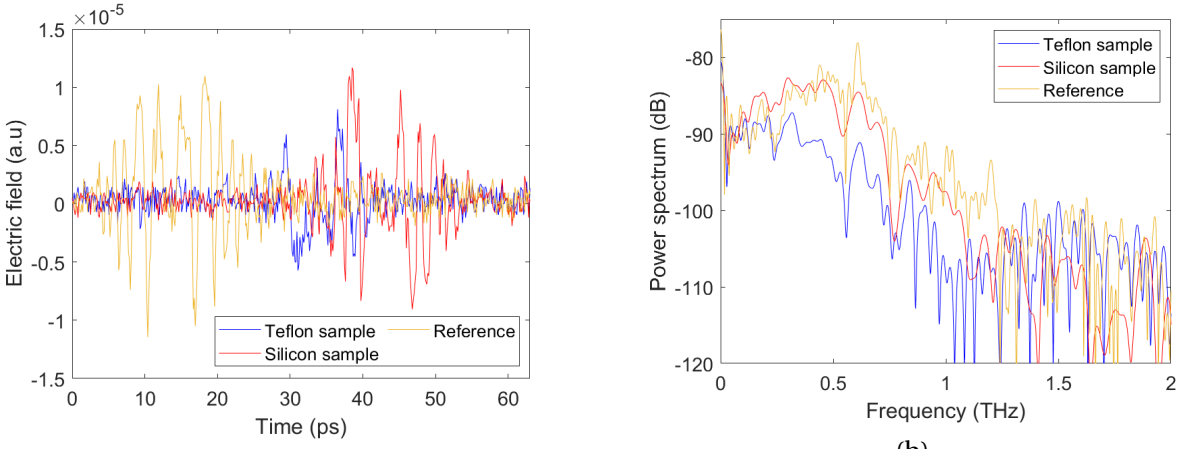


FIGURE 4.9 – Mesure de l'impulsion THz de longue durée à spectre large après être passée au travers d'un échantillon de téflon (bleu) ou de Silicium (rouge) ainsi que la mesure de référence (jaune). a) Signal temporel. b) Spectre de la deuxième moitié temporelle du signal. Les modulations encore présentes sont dues à la difficulté pour déterminer précisément le centre de l'impulsion.

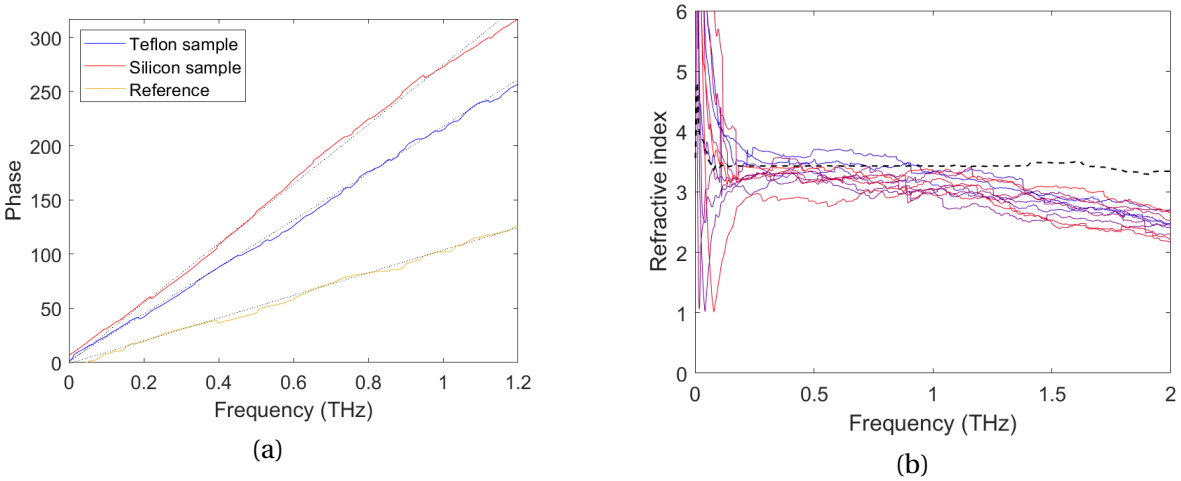


FIGURE 4.10 – a) Phase spectrale dépliée de la mesure THz de référence (jaune) et des deux échantillons respectivement de téflon (bleu) et de Silicium (rouge). Les droites en pointillés représentent un modèle linéaire ajusté aux mesures. b) Indice de réfraction en fonction de la fréquence pour différentes mesures successives de l'échantillon de Silicium avec une impulsion THz de longue durée à spectre large. La courbe en tirets représente la mesure de l'indice de réfraction dans la configuration en ultra-court.

La phase spectrale dépliée de l'impulsion complète (Figure 4.10.a) montre une courbe moins linéaire qu'en impulsion ultra-courte. Cette déformation de la courbe, qui est variable sur diffé-

rentes mesures successives, induit une erreur sur le calcul (par différence de phase spectrale) de l'indice de réfraction $n_{ind}(\omega)$ (Figure 4.10.b) avec un écart-type $n^{\sigma}_{ind} = 0.23$. Pour améliorer la précision de la valeur extraite n_{ind}, il est alors nécessaire de réaliser une moyenne des données.

Pour ce faire, le signal temporel de l'impulsion THz est moyenné sur plusieurs mesures successives avant l'extraction de $n_{ind}(\omega)$ (Figure 4.11.a). L'indice de réfraction obtenu (tirets) est alors proche des valeurs dans la configuration en ultra-court (jaune et vert). Cependant, des pics (flèches noires) sont observés à des fréquences égales à la position des maxima locaux dans le spectre modulé de l'impulsion THz. Ces pics peuvent être supprimés en n'utilisant que la moitié temporelle de l'impulsion THz pour le calcul de l'indice afin de supprimer les modulations spectrales. Pour l'échantillon de Silicium, les valeurs obtenues de $n_{ind}(\omega)$ (ligne) concordent alors très bien avec la configuration en ultra-court. Toutefois, sur l'intervalle [0.2; 1] THz, l'indice présente une différence maximale de ses valeurs $\Delta n_{ind} = 0.052$ contre $\Delta n_{ind} = 0.005$ en mesure ultra-courte. Ce facteur 10 entre les deux configurations indique que l'indice de réfraction mesuré en photo-mélange à spectre large n'a ici pas pu permettre la détection de variations de l'indice $\Delta n_{ind} < 0.052$, comme par exemple celles provoquées par les pics d'absorption de la vapeur d'eau. Du côté de l'échantillon de téflon, l'indice obtenu est bien moins en accord avec celui attendu. Cela est principalement dû à la faible dynamique du signal THz après avoir traversé l'échantillon, en particulier pour les fréquences supérieures à 0.6 THz. Il est également important de noter que le déphasage d'une mesure à l'autre, vu en photo-mélange quasi-continu, est aussi présent dans cette configuration. L'amélioration de la dynamique du signal THz, et donc de la précision de l'indice, par la moyenne des données est ainsi limitée.

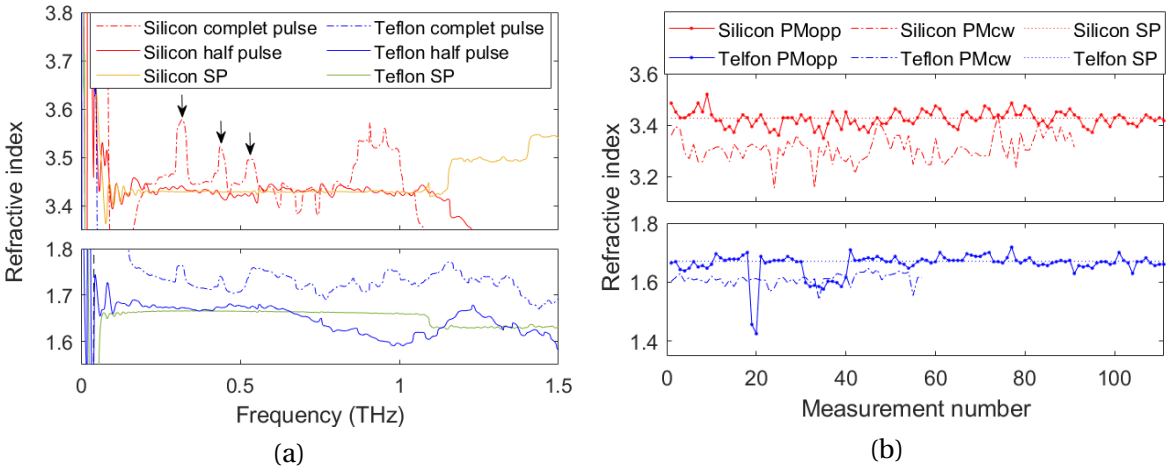


FIGURE 4.11 – a) Indice de réfraction en fonction de la fréquence du Silicium (rouge) et du téflon (bleu) par mesures d'impulsions THz de longue durée à spectre large avec moyenne du signal temporel. Indice obtenu via l'utilisation de l'impulsion complète (tirets) ou de sa deuxième moitié temporelle (ligne). Indice de référence par mesure d'impulsions THz ultra-courtes (jaune et vert, SP). b) Indice de réfraction moyen obtenu par détermination du retard relatif pour différentes mesures successives et différentes configurations THz : émission par photo-mélange à spectre large (ligne, PMopp) ou à spectre fin (tirets, PMcw) ; émission par excitation ultra-courte (pointillés).

Enfin, l'indice de réfraction moyen peut être déterminé temporellement en extrayant le retard relatif entre mesure de référence et mesure de l'échantillon. La méthode utilisée pour cette configuration est la même que pour la configuration de photo-mélange quasi-continu, avec corrélation croisée des enveloppes temporelles. Pour une série de mesures de cet indice moyen (Figure 4.11.b), la valeur obtenue dans la configuration de photo-mélange à spectre large est proche de la valeur obtenue dans la configuration en ultra-court, ce qui n'est pas le cas pour la configuration de photo-mélange quasi-continu. Dans les deux cas, les valeurs varient fortement entre les mesures avec, pour les mesures en photo-mélange à spectre large, des écart-types de $n^{\sigma}_{ind} = 0.040$ pour le

téflon et de $n^{\sigma}_{ind} = 0.029$ pour le Silicium.

4.1.4 Conclusion

Les résultats obtenus dans les différentes configurations valident le potentiel des configurations de photo-mélange pour la spectroscopie. Cependant, le montage expérimental utilisé impose des limitations techniques. La faible dynamique de mesure pour les configurations de photo-mélange et la variation temporelle de la phase absolue provoquent une variation élevée des mesures d'indice ainsi qu'une grande difficulté pour moyenner des mesures successives. La stabilisation de la phase absolue mesurée nécessite une approche différente concernant la détection du signal THz.

4.2 Détection homodyne du signal THz émis par photo-mélange

La variation de la phase absolue du signal THz sur plusieurs mesures successives peut être compensée en imposant cette même variation à l'impulsion sonde qui échantillonne l'impulsion THz. Cela est rendu possible par une méthode appelée détection homodyne, principalement utilisée pour la mesure des ondes continues, et dont le principe repose sur la détection du signal par un signal sonde de même fréquence.

4.2.1 Détection d'ondes THz continues

Contrairement à la détection d'une impulsion THz, l'échantillonnage photo-conductif d'une onde THz continue par une impulsion optique ultra-courte est complexe. La détection homodyne du signal apporte une alternative répandue pour les mesures THz en régime continu [35–41]. Ce principe consiste à échantillonner l'onde THz par une onde optique continue (sonde) de même fréquence en balayant le retard relatif pompe - sonde (Figure 4.12). Lorsque la pompe et la sonde sont en phase, la génération du photo-courant est modulée par des interférences constructives, permettant la production d'un courant maximal. En ajoutant un retard relatif sur la sonde, un déphasage par rapport à la pompe est introduit, causant des interférences destructives et minimisant alors le courant généré. La forme du champ électrique THz est ainsi retracée en balayant le retard relatif sur une durée correspondant à une modulation temporelle complète de l'onde continue.

Comme vu dans la partie analytique de l'émission THz continue 3.1.1, la fréquence de l'onde THz est imposée par celle du battement optique qui excite l'antenne émettrice. Il est alors possible de réaliser une détection homodyne en échantillonnant l'onde THz par ce même battement optique dont la fréquence est égale à celle de l'onde THz. Le photo-courant généré dans l'antenne de détection s'exprime :

$$\mathrm{I}_{det}(\Delta t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{det}(t' + \Delta t)\mathrm{E}_{\mathrm{THz}}(t')dt' \tag{4.10}$$

Contrairement à un échantillonnage par impulsion ultra-courte (partie 2.4.1), la photo-conductivité induite par l'absorption optique de la sonde ne peut être approximée par une distribution de Dirac. En rappelant que $\sigma(t) \simeq q\mu n(t)$ (Équation 2.9), L'expression du photo-courant devient :

$$\mathrm{I}_{det}(\Delta t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \left[\tau \frac{\mathrm{E}_1^2 + \mathrm{E}_2^2}{2} + \frac{\mathrm{E}_1\mathrm{E}_2}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega(t' + \Delta t) - atan(\omega\tau) + \Phi_{sonde}\Big)\right]. \tag{4.11}$$

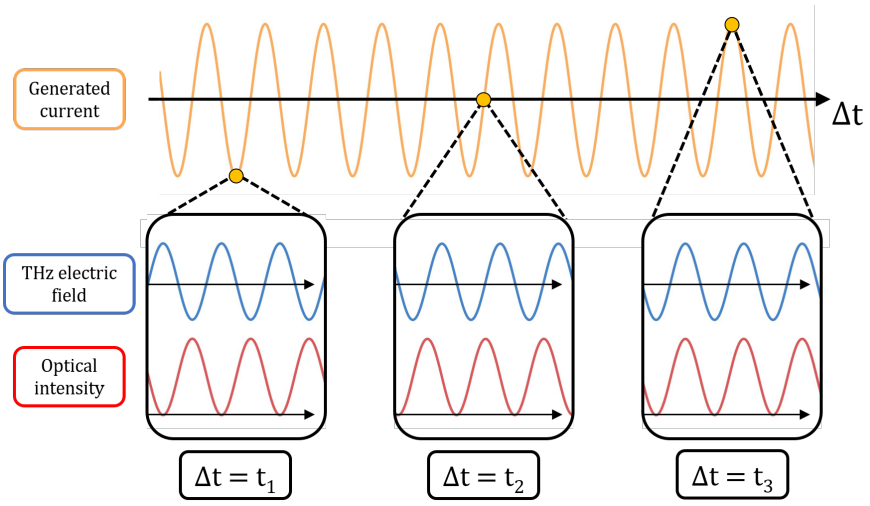


FIGURE 4.12 – Schéma illustratif de la détection homodyne d'une onde continue THz. Le retard relatif pompe - sonde Δt définit le déphasage entre les deux ondes optique et THz, ce qui génère un photo-courant dans l'antenne réceptrice avec des interférences constructives ou destructives en fonction de Δt.

$$cos\Big(\omega t' + atan(\frac{1}{\omega\tau}) + \Phi_{pompe}\Big)dt'$$

avec :

- Φ_{sonde}, la phase de référence introduite par la propagation de l'onde optique depuis la source optique jusqu'à l'antenne de détection.
- Φ_{pompe}, la phase introduite par la propagation de l'onde optique depuis la source optique jusqu'à l'antenne émettrice et par la propagation de l'onde THz entre les deux antennes.

Dans le cas où l'onde THz ne passe pas au travers d'un échantillon, la valeur des deux phases est considérée égale, $\Phi_{pompe} = \Phi_{sonde} = \Phi_{chemin}$. Dans le cas contraire, la phase dépend de la phase introduite par le passage (Φ_e) ou non (Φ_r) dans l'échantillon $\Phi_{pompe} \simeq \Phi_{chemin} + \Phi_e - \Phi_r$, avec toujours $\Phi_{sonde} = \Phi_{chemin}$.

En développant le produit, le photo-courant donne deux composantes à intégrer. La première évolue à une fréquence ω de l'ordre du THz, fréquence très rapide par rapport à la réponse de l'acquisition électronique. L'intégrale de ce terme peut dès lors être approximée comme nul :

$$\tau\frac{E_1^2 + E_2^2}{2}\int_{-\infty}^{\infty} cos\Big(\omega t' + atan(\frac{1}{\omega\tau}) + \Phi_{pompe}\Big)dt' \simeq 0 \tag{4.12}$$

La deuxième composante donne quant à elle :

$$\frac{E_1E_2}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}}\int_{-\infty}^{\infty} cos\Big(\omega(t' + \Delta t) - atan(\omega\tau) + \Phi_{sonde}\Big)cos\Big(\omega t' + atan(\frac{1}{\omega\tau}) + \Phi_{pompe}\Big)dt' \tag{4.13}$$

Une réécriture peut y être réalisée avec les identités remarquables $2cos(A)cos(B) = cos(A+B) + cos(A-B)$ et $atan(X) = -atan(\frac{1}{X}) + \frac{\pi}{2}$:

$$\frac{E_1E_2}{2\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}}\int_{-\infty}^{\infty} -sin\Big(\omega(2t' + \Delta t) - 2atan(\omega\tau) + \Phi_{sonde} + \Phi_{pompe}\Big) + sin(\omega\Delta t + \Phi_{sonde} - \Phi_{pompe})dt' \tag{4.14}$$

De même que pour la première composante, le premier terme de cette intégrale donne une valeur moyenne nulle. De plus, la mesure expérimentale se réalise sur un temps d'intégration T_{int}. L'intégrale restante peut alors être délimitée sur des bornes finies :

$$\int_{-\frac{T_{int}}{2}}^{\frac{T_{int}}{2}} sin(\omega\Delta t + \Phi_{sonde} - \Phi_{pompe})dt' = T_{int} sin(\omega\Delta t + \Phi_{sonde} - \Phi_{pompe}) \tag{4.15}$$

En développant les termes de phase, le photo-courant est finalement exprimé comme :

$$I_{det}(\Delta t) \propto \frac{E_1 E_2 T_{int}}{2\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} sin(\omega\Delta t + \Phi_r - \Phi_e) \tag{4.16}$$

Ce photo-courant retrouve la forme temporelle d'une onde monochromatique évoluant en fonction du retard relatif Δt à la pulsation ω. Le signal mesuré conserve ainsi l'information de la pulsation THz ω de l'onde réceptionnée, mais perd celle de la phase Φ_{chemin} introduite par le trajet source - détection. Toutefois, l'information sur la différence de phase entre une mesure de référence et une mesure de l'échantillon est conservée, ce qui permet à la détection homodyne d'être utilisée pour des applications de spectroscopie.

Cette auto-compensation de la phase Φ_{chemin} apporte une solution à la variation de la phase absolue vue expérimentalement dans les configurations de photo-mélange. Il est alors intéressant de vérifier que ce même phénomène se produit également pour le photo-mélange d'impulsions optiques.

4.2.2 Détection d'impulsions THz émises par photo mélange quasi-continu

Dans la partie théorique 3.4.1, l'impulsion THz émise par photo-mélange quasi-continu a été formulée par le produit d'une onde THz continue avec une enveloppe gaussienne :

$$E_{THz}(t) \propto cos\Big(\omega t + \Phi_{THz} + atan(\frac{1}{\omega\tau}) + \Phi_{pompe}\Big) e^{-2\alpha t^2} \tag{4.17}$$

Également, la puissance optique absorbée par l'antenne réceptrice pour la détection homodyne apporte une densité de porteurs de charge exprimée comme :

$$n(t) \propto e^{-2\alpha(t^2+t_d^2)}\Big[\tau cosh(2\alpha\Delta_t t) + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega t + \Phi_{THz} - atan(\omega\tau) + \Phi_{sonde}\Big)\Big] \tag{4.18}$$

Le photo-courant généré dans l'antenne réceptrice est alors la convolution de ces deux expressions :

$$I_{det}(\Delta t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} cos\Big(\omega t' + \Phi_{THz} + atan(\frac{1}{\omega\tau}) + \Phi_{pompe}\Big) e^{-2\alpha t'^2}. \tag{4.19}$$

$$e^{-2\alpha((t'+\Delta t)^2+t_d^2)}\Big[\tau cosh(2\alpha\Delta_t(t'+\Delta t)) + \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\tau^2} + \omega^2}} cos\Big(\omega(t'+\Delta t) + \Phi_{THz} - atan(\omega\tau) + \Phi_{sonde}\Big)\Big] dt'$$

Après réécriture des exponentielles $e^{-2\alpha((t'+\Delta t)^2+t_d^2)}e^{-2\alpha t'^2} = e^{-\alpha(\Delta t^2+2t_d^2)}e^{-4\alpha(t'+\frac{\Delta t}{2})^2}$ et du produit de cosinus $2cos(\mathrm{A})cos(\mathrm{B}) = cos(\mathrm{A}+\mathrm{B}) + cos(\mathrm{A}-\mathrm{B})$, les termes oscillants à la pulsation ω résultent en une contribution nulle après intégration, ce qui laisse :

$$\mathrm{I}_{det}(\Delta t) \propto \frac{sin(\omega\Delta t + \Phi_r - \Phi_e)e^{-\alpha(\Delta t^2+2t_d^2)}}{2\sqrt{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-4\alpha(t'+\frac{\Delta t}{2})^2} dt' \tag{4.20}$$

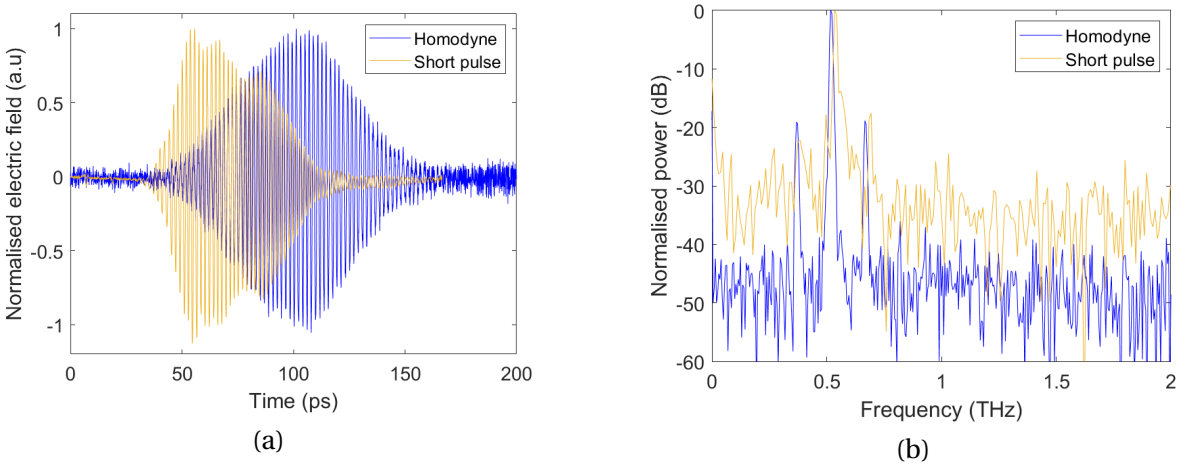
La photo-conductivité s'exprime finalement :

$$\mathrm{I}_{det}(\Delta t) \propto \sqrt{\frac{\frac{\pi}{16\alpha}}{\frac{1}{\tau^2}+\omega^2}} e^{-\alpha(\Delta t^2+2t_d^2)} sin(\omega\Delta t + \Phi_r - \Phi_e) \tag{4.21}$$

Ce photo-courant est ainsi composé d'une enveloppe $e^{-\alpha\Delta t^2}$ et d'un terme d'oscillation à la fréquence ω. De même qu'en régime continu, le signal mesuré conserve uniquement la différence de phase temporelle $\Phi_r - \Phi_e$. Il y a donc bien une auto-compensation de la phase Φ_{chemin} introduite par le trajet source - détection. Il est aussi à noter que la durée de l'impulsion mesurée est plus longue d'un facteur $\sqrt{2}$ à mi-hauteur par rapport au champ électrique réel (Équation 4.17).

4.2.3 Mesures expérimentales et spectroscopie

La mesure du signal THz par détection homodyne a été réalisée dans une configuration en photo-mélange quasi-continu (Figure 4.13). La forme temporelle montre une durée d'environ 67 ps à mi-hauteur, ce qui ne correspond pas tout à fait à une durée $\sqrt{2}$ fois plus longue que l'impulsion THz (environ 53 ps), écart qui est sûrement dû à la forme non gaussienne du signal. Une autre caractéristique temporelle de ce signal est sa symétrie. En effet, la forme temporelle de l'onde THz est directement liée à l'excitation optique incidente sur l'antenne émettrice, qui, pour la détection homodyne, présente la même forme que la sonde, ce qui résulte en une convolution, et donc un courant généré, symétrique.



(a) (b)

FIGURE 4.13 – Mesure de l'impulsion THz générée par photo-mélange quasi-continu, et détectée par échantillonnage ultra-court (jaune) ou homodyne (bleu). a) Signal temporel. b) Spectre du signal.

Du côté de la phase absolue, une série de mesures successives du signal montre une bien plus grande stabilité de sa valeur (Figure 4.14.a). La compensation de la phase absolue par la sonde

permet d'annuler l'impact de sa dérive entre chaque mesure et il ne reste alors plus qu'un bruit de mesure de l'ordre du dixième de radian. L'absence de cette dérive rend accessible le moyennage du signal sur une série de mesures, améliorant la dynamique du signal (Figure 4.14.b). Ici, L'amélioration pour une moyenne de 10 mesures successives est d'environ 10 dB.

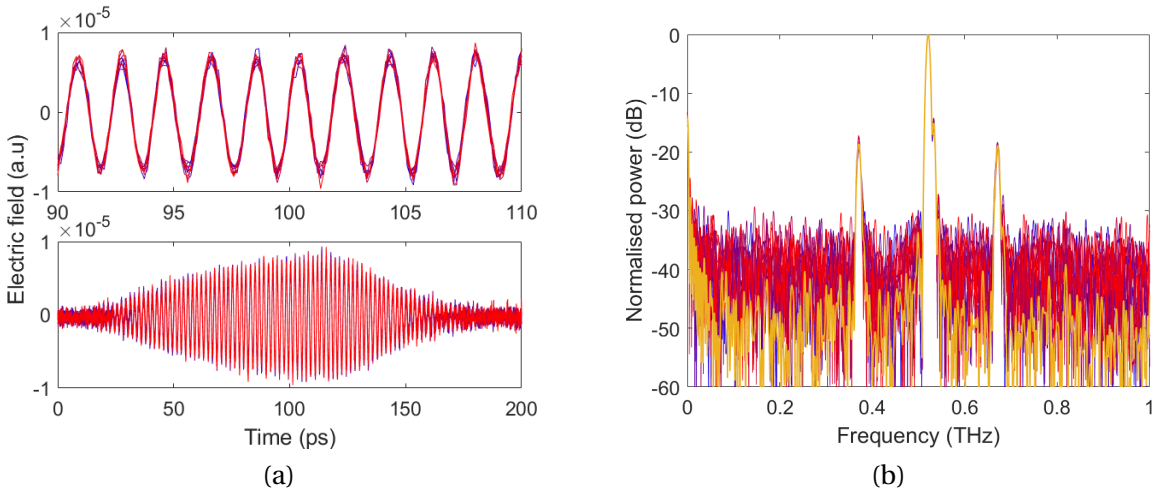


FIGURE 4.14 – a) Signal temporel de l'impulsion THz par détection homodyne en configuration de photomélange quasi-continu pour 10 mesures successives (du bleu au rouge). b) Spectres correspondants et moyenne des 10 mesures (jaune).

L'extraction de l'indice de réfraction moyen n_{ind} est réalisée par la même méthode que pour la spectroscopie en détection ultra-courte de l'impulsion THz quasi-continue. L'enveloppe du signal est déterminée par interpolation des maxima locaux du champ électrique puis le retard relatif entre la mesure de l'échantillon et la mesure de référence est calculé par corrélation croisée. Malgré la dynamique de mesure plus grande en détection homodyne et la stabilité de la variation de la phase absolue, l'indice de réfraction retrouvé par spectroscopie de l'échantillon de Silicium (Figure 4.15.A.a) présente toujours des différences élevées entre les valeurs atteignant jusqu'à $\Delta n_{ind} \simeq 0.3$, avec un écart-type de $n^{\sigma}_{ind} = 0.071$. Néanmoins, l'indice moyen obtenu, égale à 3.43, concorde cette fois-ci avec l'indice moyen obtenu en spectroscopie ultra-courte.

Au vu du faible bruit sur la phase absolue en détection homodyne, il est également possible de réaliser directement la corrélation croisée entre les deux champs électriques sans passer par leur enveloppe (Figure 4.15.B). Sa valeur présente cependant une modulation temporelle causée par celle du champ électrique à la fréquence THz. Cette modulation peut décaler temporellement le maximum de la fonction en fonction de sa phase absolue, ce qui empêche de déterminer le retard relatif réel entre les deux impulsions, et il est donc nécessaire de s'en affranchir. Grâce aux propriétés symétriques de la détection homodyne, l'enveloppe de la corrélation croisée prend également une forme symétrique, qui est ici semblable à une fonction gaussienne. Il est alors possible de réaliser l'ajustement de cette fonction (rouge) à la courbe expérimentale pour déterminer la position temporelle du sommet sans modulation. L'indice obtenu par cette méthode reste en moyenne en accord avec l'indice attendu, mais présente un écart-type de $n^{\sigma}_{ind} = 0.49$ entre les mesures (Figure 4.15.A.b), ce qui est bien plus qu'avec l'utilisation de l'enveloppe temporelle.

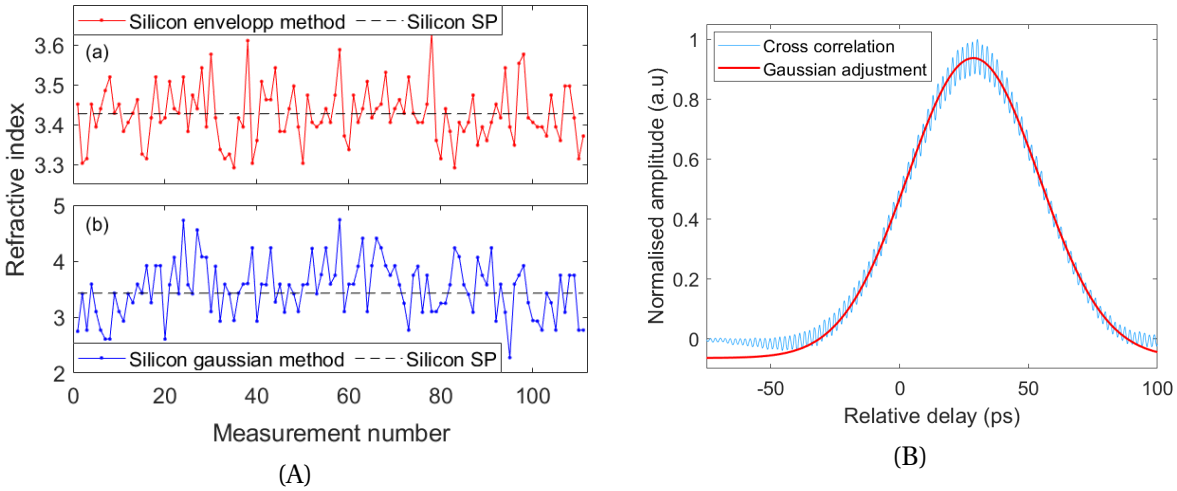


FIGURE 4.15 – A) Indice de réfraction pour différentes mesures successives en configuration de photo-mélange quasi-continu et détection homodyne, avec corrélation croisée de a) l'enveloppe, b) le champ électrique. L'indice moyen mesuré dans la configuration en ultra-court est représenté en tirets (SP). B) Corrélation croisée normalisée du champ électrique entre la mesure de référence et celle de l'échantillon (bleu) et ajustement d'une courbe théorique gaussienne (rouge).

4.3 Conclusion

Dans ce chapitre, la spectroscopie d'échantillons par le biais d'impulsions THz générées par photo-mélange d'impulsions a été réalisée, avec une précision des résultats variable en fonction de la méthode numérique et de la configuration d'excitation optique utilisées. L'indice extrait par différence de phase spectrale en configuration de photo-mélange à spectre large a montré une qualité de mesure convaincante. Cependant, la faible dynamique du signal THz limite la détection de petites modulations de l'indice, telles que les raies d'absorption de gaz. Cette faible dynamique du signal est également limitée par une dérive conséquente de la phase absolue entre les différentes mesures, empêchant l'amélioration efficace de la dynamique par moyennage sur plusieurs mesures du signal.

La détection homodyne de l'impulsion THz apporte une solution à cette limitation en annulant la dérive temporelle de la phase absolue mesurée. Sa réalisation expérimentale a pu être démontrée en photo-mélange quasi-continu, et a amélioré les résultats obtenus pour le calcul de l'indice de réfraction. Cependant, l'extraction du retard relatif entre les deux impulsions reste difficile et nécessiterait des méthodes d'analyses plus avancées.

4.4 Bibliography

[1] J. Neu and C. A. Schmuttenmaer. Tutorial : An introduction to terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS). *Journal of Applied Physics*, 124(23) :231101, 2018. 87

[2] M. Koch, D. M. Mittleman, J. Ornik, and E. Castro-Camus. Terahertz time-domain spectroscopy. *Nature Reviews Methods Primers*, 3 :48, 2023.

[3] P.U. Jepsen, D.G. Cooke, and M. Koch. Terahertz spectroscopy and imaging – modern techniques and applications. *Laser & Photonics Reviews*, 5(1) :124–166, 2011.

[4] Q. Cassar, A. Chopard, F. Fauquet, J.-P. Guillet, M. Pan, J.-B. Perraud, and P. Mounaix. Iterative tree algorithm to evaluate terahertz signal contribution of specific optical paths within multilayered materials. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 9(6) :684–694, 2019.

[5] H. Němec, P. Kužel, F. Kadlec, C. Kadlec, R. Yahiaoui, and P. Mounaix. Tunable terahertz metamaterials with negative permeability. *Physical Review B*, 79 :241108, 2009.

[6] P. Mounaix, E. Freysz, J. Degert, N. Daro, J.-F. Létard, P. Kužel, V. Vigneras, and L. Oyenhart. One-dimensional tunable photonic crystals with spin crossover material for the terahertz range. *Applied Physics Letters*, 89(17) :174105, 2006.

[7] P. Mounaix, L. Sarger, J. P. Caumes, and E. Freysz. Characterization of non-linear potassium crystals in the terahertz frequency domain. *Optics Communications*, 242(4) :631–639, 2004.

[8] C. Kadlec, F. Kadlec, P. Kužel, K. Blary, and P. Mounaix. Materials with on-demand refractive indices in the terahertz range. *Optics Letters*, 33(19) :2275–2277, 2008.

[9] P. Mounaix, N. Lascoux, J. Degert, E. Freysz, A. Kobayashi, N. Daro, and J.-F. Létard. Dielectric characterization of $[Fe(NH_2\text{-}trz)_3]Br_2 \bullet H_2O$ thermal spin crossover compound by terahertz time domain spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 87(24) :244103, 2005.

[10] G. Houzet, K. Blary, S. Lepilliet, D. Lippens, L. Burgnies, G. Vélu, J.-C. Carru, E. Nguéma, and P. Mounaix. Dielectric dispersion of $BaSrTiO_3$ thin film from centimeter to submillimeter wavelengths. *Journal of Applied Physics*, 109(1) :014116, 2011.

[11] J. El Haddad, B. Bousquet, L. Canioni, and P. Mounaix. Review in terahertz spectral analysis. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 44 :98–105, 2013.

[12] J. El Haddad, F. de Miollis, J. B. Bou Sleiman, L. Canioni, P. Mounaix, and B. Bousquet. Chemometrics applied to quantitative analysis of ternary mixtures by terahertz spectroscopy. *Analytical Chemistry*, 86(10) :4927–4933, 2014.

[13] J. B. Sleiman, B. Bousquet, N. Palka, and P. Mounaix. Quantitative analysis of hexahydro-1,3,5-trinitro-1,3,5, triazine/pentaerythritol tetranitrate (RDX–PETN) mixtures by terahertz time domain spectroscopy. *Applied Spectroscopy*, 69(12) :1464–1471, 2015.

[14] Q. Cassar, A. Al-Ibadi, L. Mavarani, P. Hillger, J. Grzyb, G. MacGrogan, T. Zimmer, U. R. Pfeiffer, J.-P. Guillet, and P. Mounaix. Pilot study of freshly excised breast tissue response in the 300 - 600 GHz range. *Biomedical Optics Express*, 9(7) :2930–2942, 2018.

[15] E. M. Kleist, C. L. Koch Dandolo, J.-P. Guillet, P. Mounaix, and T. M. Korter. Terahertz spectroscopy and quantum mechanical simulations of crystalline copper-containing historical pigments. *The Journal of Physical Chemistry A*, 123(6) :1225–1232, 2019.

[16] F. Fauquet, F. Galluzzi, P. F. Taday, R. Chapoulie, A. Mounier, A. Ben Amara, and P. Mounaix. Terahertz time-domain spectro-imaging and hyperspectral imagery to investigate a historical longwy glazed ceramic. *Scientific Reports*, 14 :19248, 2024. 87

[17] P. Bawuah and J. A. Zeitler. Advances in terahertz time-domain spectroscopy of pharmaceutical solids : A review. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 139 :116272, 2021. 87

[18] S. Huang, H. Deng, X. Wei, and J. Zhang. Progress in application of terahertz time-domain spectroscopy for pharmaceutical analyses. *Frontiers in Bioengineering and Biotechnology*, 11, 2023.

[19] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer. Terahertz spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry B*, 106 :7146–7159, 2002.

[20] V. A. Trofimov, S. A. Varentsova, V. V. Tikhomirov, and V. V. Trofimov. High effective THz-TDS method for the detection and identification of substances in real conditions. In *Micro- and Nanotechnology Sensors, Systems, and Applications VIII*, volume 9836, page 98362U. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2016.

[21] V. A. Trofimov and S. A. Varentsova. Essential limitations of the standard THz TDS method for substance detection and identification and a way of overcoming them. *Sensors*, 16(4), 2016.

[22] N. Laman, S. S. Harsha, D. Grischkowsky, and J. S. Melinger. High-resolution waveguide THz spectroscopy of biological molecules. *Biophysical Journal*, 94 :1010–1020, 2008. 87

[23] G. T. Noe, I. Katayama, F. Katsutani, J. J. Allred, J. A. Horowitz, D. M. Sullivan, Q. Zhang, F. Sekiguchi, G. L. Woods, M. C. Hoffmann, H. Nojiri, J. Takeda, and J. Kono. Single-shot terahertz time-domain spectroscopy in pulsed high magnetic fields. *Optics Express*, 24(26) :30328–30337, 2016. 87

[24] N. Couture, W. Cui, M. Lippl, R. Ostic, D. J. J. Fandio, E. K. Yalavarthi, A. Vishnuradhan, A. Gamouras, N. Y. Joly, and J.-M. Ménard. Single-pulse terahertz spectroscopy monitoring submillisecond time dynamics at a rate of 50 kHz. *Nature Communications*, 14 :2595, 2023. 87

[25] L. Liebermeister, S. Nellen, R. Kohlhaas, S. Breuer, M. Schell, and B. Globisch. Ultra-fast, high-bandwidth coherent cw THz spectrometer for non-destructive testing. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 40 :288–296, 2019. 87

[26] D.-Y. Kong, X.-J. Wu, B. Wang, Y. Gao, J. Dai, L. Wang, C.-J. Ruan, and J.-G. Miao. High resolution continuous wave terahertz spectroscopy on solid-state samples with coherent detection. *Optics Express*, 26 :17964–17976, 2018.

[27] E. R. Brown, J. Bjarnason, T. L. J. Chan, D. C. Driscoll, M. Hanson, and A. C. Gossard. Room temperature, thz photomixing sweep oscillator and its application to spectroscopic transmission through organic materials. *Review of Scientific Instruments*, 75(12) :5333–5342, 2004.

[28] M. Yahyapour, N. Vieweg, A. Roggenbuck, F. Rettich, O. Cojocari, and A. Deninger. A flexible phase-insensitive system for broadband cw-terahertz spectroscopy and imaging. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 6(5) :670–673, 2016.

[29] A. Roggenbuck, H. Schmitz, A. Deninger, I. Cámara Mayorga, J. Hemberger, R. Güsten, and M. Grüninger. Coherent broadband continuous-wave terahertz spectroscopy on solid-state samples. *New Journal of Physics*, 12(4) :043017, 2010.

[30] A. Jäckel, C. Mach, L. Schwenson, E. Castro-Camus, L. Liebermeister, R. B. Kohlhaas, and M. Koch. Computationally efficient multi-layer thickness determination using sparse cw THz spectroscopy. *Optics Express*, 33(7) :14812–14824, 2025.

[31] Jae-Young Kim, Ho-Jin Song, Makoto Yaita, Akihiko Hirata, and Katsuhiro Ajito. Cw-THz vector spectroscopy and imaging system based on 1.55-μm fiber-optics. *Optics Express*, 22(2) :1735–1741, 2014. 87

[32] M. Koch, D. M. Mittleman, J. Ornik, and E. Castro-Camus. Terahertz time-domain spectroscopy. *Nature Reviews Methods Primers*, 3 :48, 2023. 87

[33] J.-L. Coutaz, F. Garet, and V. Wallace. 11 - noise in THz-TDS systems. In *Principles of Terahertz Time-Domain Spectroscopy*, pages 383–434. Jenny Stanford Publishing, 2018. 91

[34] J.-L. Coutaz, F. Garet, and V. Wallace. 12 - precision of the extraction of material properties from THz-TDS. In *Principles of Terahertz Time-Domain Spectroscopy*, pages 435–516. Jenny Stanford Publishing, 2018. 91

[35] D. Jokubauskis, L. Minkevičius, D. Seliuta, I. Kašalynas, and G. Valušis. Terahertz homodyne spectroscopic imaging of concealed low-absorbing objects. *Optical Engineering*, 58(2) :023104, 2019. 96

[36] G. Mouret, S. Matton, R. Bocquet, D. Bigourd, F. Hindle, A. Cuisset, J.F. Lampin, K. Blary, and D. Lippens. THz media characterization by means of coherent homodyne detection, results and potential applications. *Applied Physics B*, 89 :395–399, 2007.

[37] G. Santamaría-Botello, Z. Popovic, K. A. Abdalmalak, D. Segovia-Vargas, E. R. Brown, and L. E. García Muñoz. Sensitivity and noise in THz electro-optic upconversion radiometers. *Scientific Reports*, 10 :9403, 2020.

[38] K. Ikamas, D. B. But, and A. Lisauskas. Homodyne spectroscopy with broadband terahertz power detector based on 90-nm silicon CMOS transistor. *Applied Sciences*, 11(1), 2021.

[39] J.-Y. Kim, H.-J. Song, K. Ajito, M. Yaita, and N. Kukutsu. Continuous-wave THz homodyne spectroscopy and imaging system with electro-optical phase modulation for high dynamic range. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 3(2) :158–164, 2013.

[40] S. Rumyantsev, X. Liu, V. Kachorovskii, and M. Shur. Homodyne phase sensitive terahertz spectrometer. *Applied Physics Letters*, 111(12) :121105, 2017.

[41] B. L. Schumaker. Noise in homodyne detection. *Optics Letters*, 9(5) :189–191, 1984. 96

Conclusion générale

Ces travaux de recherche ont permis la confrontation analytique et expérimentale de la génération d'ondes THz via antenne photo-conductrice sous trois configurations d'excitation optique différentes. L'excitation par impulsions optiques ultra-courtes, méthode robuste pour la génération THz, pose des limites liées à sa durée extrême telles que la présence d'une grande amplitude optique crête, d'une superposition temporelle du spectre THz et d'un faible contrôle sur la forme temporelle et spectrale émise. Ces limitations restreignent l'intégration des antennes photo-conductrices à de faibles puissances optiques et empêchent la spectroscopie temporelle d'une composante spectrale unique.

Le photo-mélange d'impulsions optiques pour la génération THz a été réalisé avec succès et a montré un fort potentiel comme méthode de génération alternative à l'excitation des antennes par impulsions optiques ultra-courtes. Le photo-mélange de deux impulsions jumelles chirpées linéairement avec un retard relatif a permis de faire le lien entre le photo-mélange en régime continu et celui en régime impulsionnel, avec pour principale différence l'introduction d'une enveloppe temporelle à l'onde THz. Cette impulsion THz quasi-continue présente ainsi un spectre quasi-monochromatique avec une largeur spectrale dépendant principalement de la durée de l'impulsion émise. D'autre part, l'application de chirps différents entre les deux impulsions optiques a permis la génération d'une impulsion THz de longue durée (dizaine de picosecondes) à spectre large (supérieure à 1 THz), présentant une distribution temporelle de ses fréquences, semblable à un chirp THz ou encore au résultat obtenu avec la technique FMCW pour le régime continu. Cette méthode de génération permet ainsi de résoudre les deux problématiques présentes lors d'une excitation optique ultra-courte en réduisant la puissance optique crête en amont de l'antenne ainsi que d'apporter une distribution des fréquences instantanées THz.

Le développement analytique prévoit la saturation de l'émission THz pour des puissances optiques plus importantes dans les configurations de photo-mélange, ce qui permettrait de compenser la perte en efficacité de conversion optique - THz. Cependant, ce comportement n'a pas été observé expérimentalement, probablement dû aux difficultés d'alignement rencontrées sur le chemin optique, empêchant l'optimisation du processus de photo-mélange. D'autres études scientifiques ont pu montrer expérimentalement cette saturation à plus haute puissance moyenne dans le cadre du photo-mélange quasi-continu, et le photo-mélange à spectre large devrait théoriquement présenter un comportement similaire, bien que légèrement inférieur. Également, une réduction de la largeur du spectre optique pour limiter le battement optique à la bande spectrale THz émise par l'antenne photo-conductrice permettrait de maximiser la puissance optique efficace à la génération THz. Des travaux supplémentaires devraient ainsi permettre la génération d'ondes THz à des puissances moyennes plus proches de la génération THz par impulsion ultra-courte tout en réduisant fortement la puissance optique crête en amont de l'émetteur. À terme, cette méthode de génération a le potentiel d'ouvrir la voie à l'utilisation de matrices d'antennes de grandes dimensions pour repousser les limites de l'émission THz à haute puissance dans des systèmes intégrés.

Enfin, la démonstration du photo-mélange à spectre large pour l'analyse d'échantillons de Silicium et de téflon valide l'utilisation de ce processus de génération pour des applications spec-

troscopiques. De plus, l'émission et la détection d'ondes THz avec une plus grande dynamique de signal sur bruit et une meilleure stabilité de la phase absolue, notamment permise par la détection homodyne du signal THz, devraient largement améliorer les résultats obtenus. Il devrait être alors possible, en photo-mélange à spectre large, d'analyser directement l'amplitude temporelle du signal pour en extraire les informations sur chaque composante spectrale et ainsi permettre l'étude spectroscopique dans le domaine temporel, ce qui serait un grand avantage pour l'analyse de comportements en temps réel.

Liste des publications de l'auteur

* : Journal à comité de lecture.

† : Conférence internationale à comité de lecture.

‡ : Soumis.

[1] * G. Taton, F. Fauquet, J.-P Betka, I. and. Guillet, F. Darracq, P. Mounaix, and D. Bigourd. Broadband THz emission of long pulses from photomixing process with optical chirped pulses. *Optics Letters*, 50(2) :650–653, 2025.

[2] † G. Taton, F. Fauquet, I. Betka, J.-P. Guillet, F. Darracq, P. Mounaix, and D. Bigourd. Photomixing of chirped ultra-short optical pulses at 1 µm for the generation of broadband long THz pulses. In *2025 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)*, 2025.

[3] † P. Mounaix, G. Taton, F. Fauquet, F. Darracq, J.-P. Guillet, and D. Bigourd. THz generation by photo-mixing of chirped pulses at 1 µm. In *2024 49th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*, 2024.

[4] ‡ I. Betka, M. Deroh, S. Dubuis, G. Taton, F. Fauquet, M. E. Ojo, C. Fourcade-Dutin, H. Maillotte, V. Rodriguez, M. Chauvet, P. Mounaix, and D. Bigourd. Terahertz generation from chirped and delayed laser pulses in a periodically poled lithium niobate waveguide. *Applied physics B*, 2025.

Spectroscopie THz par photo-mélange d'impulsions à dérive de fréquence sur antennes photo-conductrices

Résumé : Les ondes térahertz (THz) ont suscité un intérêt scientifique majeur au cours des dernières décennies, apportant de nouvelles possibilités dans de nombreux domaines d'applications en spectroscopie et imagerie non-destructive. Les sources THz restent aujourd'hui limitées en puissance émise. Notamment, les photo-conducteurs présentent une bonne efficacité de conversion optique - THz, mais saturent pour de faibles puissances optiques. De plus, leur intégration dans des systèmes matriciels combinant plusieurs sources THz est limitée en raison du caractère ultra-court des impulsions optiques utilisées pour l'excitation, ce qui implique des puissances optiques crêtes importantes. Les travaux de recherche présentés ici proposent une nouvelle méthode pour l'excitation optique des photo-conducteurs afin d'apporter des solutions à ces limitations. Le processus d'excitation optique par photo-mélange, habituellement utilisé en régime continu, est appliqué ici à des impulsions optiques à dérive de fréquence. Cette dérive de fréquence permet de contrôler la distribution temporelle des fréquences instantanées, et donc de modifier le battement optique qui excite le photo-conducteur. Ce battement définit la fréquence THz générée et peut ainsi être façonné pour obtenir différentes formes d'impulsions THz. Une première configuration est étudiée pour générer une impulsion THz quasi-continue et quasi-monochromatique, semblable au produit d'une onde continue et d'une longue enveloppe temporelle. Une seconde configuration résulte en une impulsion THz également de longue durée, mais cette fois à spectre large. Cette dernière est caractérisée par une distribution de ses fréquences instantanées, ce qui peut être comparé à une dérive de fréquence THz. L'utilisation de processus d'excitation devrait permettre, à terme, de repousser les limites d'intégration des photo-conducteurs, pour ainsi atteindre de plus grandes puissances d'émission THz.
Mots-clés : Photo-conducteurs, Rayonnement et source THz, Optique/photonique, Laser à impulsions ultra-courtes, Photo-mélange, Spectroscopie

---

THz spectroscopy by photo-mixing of optical chirped pulses on photo-conductive antennas

Abstract : Terahertz (THz) waves have been a major scientific interest over the past decades, opening new possibilities across many application fields for spectroscopy and non-destructive imaging. Nowadays, THz sources still provide limited emitted power. In particular, photoconductors exhibit good optical – THz conversion efficiency but saturate at low optical power. Moreover, their integration into array systems combining multiple THz sources is constrained because of the ultra-short nature of the optical pulses used for excitation, which implies high optical peak powers. The research presented here proposes a new method for the optical excitation of photo-conductors to address these limitations. The optical excitation process by photo-mixing, typically used in a continuous regime, is applied here with optical chirped pulses. This chirp enables control over the temporal distribution of instantaneous frequencies, and thus can adapt the optical beating that drives the photo-conductor. This beating determines the generated THz frequency and can therefore be shaped to target specific THz waveforms. The first configuration yields a quasi-continuous and quasi-monochromatic THz pulse, resembling the product of a continuous wave and a long temporal envelope. The second configuration also produces a long-duration THz pulse but with a broad spectrum. The latter is characterized by an instantaneous frequency distribution that can be compared to a THz chirp. The use of this excitation process should ultimately push the integration limits of photo-conductors towards higher THz emission powers.
Keywords : Photo-conductors, Radiation and source THz, Optics/photonics, Ultra-short pulse laser, Photo-mixing, Spectroscopy

---

Unité de recherche
Laboratoire IMS, UMR 5218, Université de Bordeaux, 33400 Talence, France.