



HAL
open science

Étude théorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d'impulsions térahertz

Sébastien Vidal

► **To cite this version:**

Sébastien Vidal. Étude théorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d'impulsions térahertz. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2009. Français. NNT: . tel-00446512

HAL Id: tel-00446512

<https://theses.hal.science/tel-00446512>

Submitted on 12 Jan 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Numéro d'ordre : 3952

THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

Par **Sébastien VIDAL**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Lasers, Matière et Nanosciences

Étude théorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d'impulsions térahertz

Soutenue le 14 décembre 2009

Devant la commission d'examen formée de :

Mme. B. CHATEL	Chargée de Recherche au C.N.R.S L.C.A.R, Université Toulouse III	Rapporteur
M. G. GALLOT	Chargé de Recherche au C.N.R.S L.O.B, Ecole Polytechnique	Rapporteur
M. J. OBERLÉ	Professeur, Université Bordeaux I	Directeur de Thèse
M. J. DEGERT	Maître de conférences, Université Bordeaux I	Co-Directeur de Thèse
M. E. FREYSZ	Directeur de Recherche au C.N.R.S Université Bordeaux I	Examineur
M. A. MYSYROWICZ	Directeur de Recherche émérite au C.N.R.S L.O.A, ENSTA Ecole Polytechnique	Président

REMERCIEMENTS

Ces travaux de thèse ont été réalisés au Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne. Je tiens à remercier sincèrement toutes les personnes qui m'ont accompagné durant ces trois années d'aventure et de découverte du monde de la recherche.

Je tiens tout d'abord à remercier Eric Freysz en tant que directeur du CPMOH de m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire.

Je tiens également à exprimer ma sincère reconnaissance à Madame Béatrice Chatel et Monsieur Guilhem Gallot d'avoir accepté la lourde tâche d'être rapporteurs de ce manuscrit, ainsi qu'à Monsieur André Mysyrowicz d'avoir bien voulu prendre part à ma soutenance en acceptant le rôle de président du jury.

Je tiens à remercier très chaleureusement Jérôme Degert pour ces trois années passées à travailler avec lui. Ses compétences scientifiques et sa très grande disponibilité ont fortement contribué à la bonne réalisation de ces travaux. Son investissement sans faille ainsi que l'ambiance amicale qui a toujours régné entre nous (tirs à la carabine sur Dave ("vise la tête c'est ce qui rapporte le plus de points !")), canular téléphonique (au fait Jean c'est Jérôme qui appelait) et autres mails frauduleux...) m'ont été d'un soutien très précieux quand les manip ne marchaient pas (c'est à dire pendant deux ans et dix mois ...). Merci également pour ton aide très précieuse pour la fin de la rédaction quand la montre tournait (pardon pour les nuits blanches et les simulations du 11 novembre, en remerciement je te confie la quille de bowling) et pour les petits écoliers au chocolat.

Je voudrais également remercier très sincèrement mon directeur de thèse, Jean Oberlé, pour m'avoir accompagné et guidé durant ces trois années. La confiance qu'il m'a accordée, sa bonne humeur et son optimisme à toute épreuve que rien ne peut ébranler (pas même un chat dans le moteur, un frein à main mal serré ou une rupture de stock de nuts...) m'ont été d'un soutien très précieux durant les périodes de doute. Merci de m'avoir fait découvrir un large panel d'applications des impulsions femtosecondes (suite à une redéfinition de ses objectifs ...), de m'avoir initié à la dynamique des porteurs dans les semiconducteurs et pour la conclusion quand j'étais débordé. Ce fut un grand plaisir de travailler sous ta direction (j'ai réussi à dire tu, enfin !), je garderai un très bon souvenir de ces trois années.

Je tiens également à remercier Eric Freysz, en tant que chercheur cette fois-ci, pour m'avoir fait partager ses connaissances scientifiques et pour les nombreuses discussions que nous avons eues pour essayer de comprendre un peu les manip : pourquoi ce foutu spectre se décale-t-il vers les basses fréquences ?

Je voudrais également remercier très amicalement Marc Tondusson pour son aide très précieuse en salle de manip (“fais chier ça marche pas, où est ma carte jaune fluo ?”) et pour l’élaboration des programmes sous Labview, ainsi que Gedas Jonusauskas (l’homme qui murmurait à l’oreille des lasers) pour son aide d’expérimentateur avisé et pour m’avoir initié au réglage du Femtopower.

Je souhaite également remercier les électroniciens, mécaniciens et informaticiens du laboratoire sans qui les manip ne seraient pas ce qu’elles sont. Je n’oublie pas l’ensemble du personnel du service gestion qui s’est toujours montré efficace et disponible.

J’ai eu le plaisir, au cours de ces trois années, d’enseigner à l’université Bordeaux 1 en tant que moniteur. À ce titre, je remercie tous les enseignants avec qui j’ai eu l’occasion d’interagir.

Une pensée toute particulière à tous les thésards, post-docs et ATER du laboratoire avec qui j’ai passé d’agréables moments durant ces trois années. Mention spéciale à Mathieu (mieux connu dans le milieu scientifique sous le nom du Vicomte) et Julien Petit (tu les sens les 30 kms de bouchon au col du Perthus ?) pour m’avoir invité au RU 1 tous les midis durant les derniers mois. Je vous souhaite bonne route à tous.

Je tiens également à remercier l’ensemble des membres permanents du CPMOH et notamment Emmanuel Abraham, Daniel Blaudez, Jean Christophe Delagnes et Christine Grauby avec qui j’ai eu le plaisir d’interagir.

Je voudrais également remercier très “amoureusement” Aude qui m’a accompagné et soutenu durant ces trois longues années de thèse et qui a supporté le train de vie d’un thésard. Enfin, je souhaite remercier très sincèrement mes parents qui m’ont permis de mener à bien ces études et de faire un métier que j’aime.

Table des matières

INTRODUCTION	1
Bibliographie	5
I Génération et détection d'impulsions THz	7
I.1 Génération par redressement optique dans le ZnTe	8
I.1.1 Première approche qualitative	8
I.1.1.1 Point de vue ondulatoire	8
I.1.1.2 Point de vue corpusculaire	10
I.1.2 Le cristal de ZnTe	11
I.1.3 Approche quantitative	14
I.1.3.1 Orientation du cristal de ZnTe	14
I.1.3.2 Equation d'évolution de l'onde optique	17
I.1.3.3 Equation régissant la génération de l'onde THz	18
I.2 Détection par effet électro-optique	22
I.2.1 Choix du cristal électro-optique	22
I.2.2 Mesure du signal électro-optique par ellipsométrie	23
I.2.2.1 Présentation de la technique expérimentale	24
I.2.2.2 Configuration optimale pour la détection électro-optique	25
I.2.2.3 Mise en équation du signal électro-optique	29
I.3 Présentation du dispositif expérimental	32
I.3.1 Le dispositif expérimental	32
I.3.2 Procédure d'alignement du dispositif	34
I.3.3 Premiers résultats	37
Bibliographie	43
II Redressement optique d'impulsions laser femtosecondes intenses	45
II.1 Mise en évidence de l'influence de l'intensité laser sur le redressement optique	45
II.2 Evolution du spectre THz avec l'intensité laser incidente	47
II.2.1 Cristal générateur d'épaisseur $z = 200 \mu\text{m}$	47
II.2.2 Cristaux générateurs d'épaisseur $z = 500 \mu\text{m}$ et $z = 1 \text{ mm}$	47
II.2.3 Bilan	49
II.3 Evolution de l'énergie THz avec l'intensité laser incidente	52
II.4 Création de porteurs par absorption à deux photons	54

II.4.1	Déplétion de l'impulsion laser	54
II.4.2	Densité de porteurs libres photo-crées	55
II.5	Expérience Pompe optique - Sonde THz	57
II.5.1	Principe de l'expérience	57
II.5.2	Résultats	58
II.5.3	Bilan	60
II.6	Discussion	61
II.6.1	Position du problème	61
II.6.2	Influence de la dispersion de vitesse de groupe sur $ C(\Omega, z) $	62
II.6.3	Influence de l'absorption à deux photons sur $ C(\Omega, z) $	63
II.6.4	Influence de l'automodulation de phase sur $ C(\Omega, z) $	64
II.6.5	Influence de $\alpha(\Omega, z)$ sur le spectre THz	66
II.7	Expérience Pompe optique - Génération THz	67
II.7.1	Principe de l'expérience	67
II.7.2	Résultats et discussion	68
II.8	Conclusion	70
Bibliographie		73
III Mise en forme d'impulsions femtosecondes		75
III.1	La ligne $4f$	76
III.1.1	Principe de base	76
III.1.2	Géométrie utilisée	77
III.1.3	Choix des optiques	77
III.1.4	Procédure d'alignement de la ligne $4f$ repliée	79
III.2	Le masque à cristaux liquides	81
III.3	Calibration de la dispersion	83
III.4	Tests du dispositif	86
III.4.1	Modulation de phase quadratique	86
III.4.2	Modulation de phase sinusoïdale	87
III.5	Limitations du façonneur	90
III.5.1	Limitation liée à la ligne $4f$	90
III.5.2	Limitation liée au SLM	94
III.6	Utilisation en boucle fermée	97
III.6.1	Principe de l'algorithme génétique	98
III.6.2	Optimisation de la génération de seconde harmonique	99
Bibliographie		103
IV Façonnage d'impulsions térahertz		107
IV.1	Génération d'impulsions THz accordables spectralement	108
IV.1.1	Analyse théorique	108
IV.1.2	Dispositif expérimental	112
IV.1.3	Résultats	113
IV.1.3.1	Phase plate : $\varphi(\omega) = 0$	113

IV.1.3.2	Modulation sinusoïdale de la phase spectrale	114
IV.1.4	Bilan	120
IV.1.4.1	Contrôle de la fréquence centrale du spectre généré	120
IV.1.4.2	Contrôle de la largeur du spectre THz	121
IV.2	Génération de paires d'impulsions térahertz verrouillées en phase	122
IV.2.1	Génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase	122
IV.2.2	Approche théorique du redressement optique de paires d'impulsions laser	126
IV.2.3	Résultats	130
IV.3	Combinaisons de modulations de phase sinusoïdale et triangulaire	135
IV.3.1	Génération de paires de trains d'impulsions THz verrouillés en phase . .	135
IV.3.2	Rétrécissement spectral	137
IV.4	Conclusion	140
	Bibliographie	143
	CONCLUSION	147

INTRODUCTION

Les ondes électromagnétiques constituent l'un des outils les plus performants pour étudier le monde qui nous entoure depuis l'infiniment grand et lointain jusqu'à l'infiniment petit. L'étendue formidable du spectre électromagnétique multiplie en effet les champs d'application possible en allant par exemple de l'étude des galaxies en astronomie à celle des noyaux atomiques en physique nucléaires. Parmi les différents domaines du spectre électromagnétique représenté sur la figure 1, l'intervalle spectral situé entre 7.10^{14} Hz et 4.10^{14} Hz (entre 400 et 750 nm en terme de longueur d'onde) est le domaine du visible, il correspond à la petite fenêtre à travers laquelle nous voyons le monde tous les jours. D'un coté de cette plage de fréquence se situent les rayons ultraviolets, responsables de notre teint bronzé l'été, et de l'autre coté se trouve le domaine de l'infrarouge découvert par William Herschel en 1800. La plage de fréquences allant de 1 à 100 GHz (30 cm à 3 mm en terme de longueur d'onde) correspond aux micro-ondes dont les applications sont aujourd'hui très nombreuses (téléphonie mobile, radars, fours à micro-ondes). Depuis quelques années, la communauté scientifique accorde un intérêt grandissant aux ondes électromagnétiques dont la fréquence se situe autour du térahertz (*THz* en abrégé, $1 \text{ THz} = 10^{12}$ Hz). Ce domaine spectral situé entre 100 GHz et 30 THz, ce qui équivaut à des longueurs d'onde comprises entre 3 mm et $10 \mu\text{m}$, correspond à l'infrarouge lointain des opticiens ou au domaine sub-millimétrique des électroniciens. Les photons associés possèdent des énergies comprises entre 0.42 et 124 meV et permettent ainsi l'étude de la matière dans une plage de fréquence jusque là inexplorée [1, 2]. Ils entraînent par exemple, au niveau moléculaire, l'excitation de modes de rotation et de vibration très basse fréquence. Pour des échantillons à l'état solide, l'énergie de ces photons correspond à des vibrations du réseau cristallin (phonons) ou à des excitations électroniques (absorption par les porteurs libres, absorption par des impuretés...). A ce stade, il est bon de noter que les porteurs libres, comme les électrons dans les métaux et dans les semi-conducteurs, ou bien au sein d'un plasma, réagissent facilement aux champs électriques *THz* induisant ainsi une très forte absorption de ces ondes. Les applications des ondes *THz* peuvent également s'étendre au domaine de l'imagerie puisque le papier, le bois, les murs sont transparents dans cette gamme de fréquence.

Il est particulièrement intéressant de se poser la question suivante : pourquoi ce domaine ne suscite-t-il qu'aujourd'hui un tel engouement alors que l'infrarouge lointain et les ondes millimétriques sont connus et étudiés depuis longtemps ? La réponse est relativement simple : les ondes térahertz ont été pendant longtemps oubliées à cause du manque de sources naturelles et de moyens de détection. Historiquement, ce sont les astrophysiciens qui se sont intéressés en premier à ce type d'ondes car elles sont prédominantes dans l'univers. Suite à la prise de conscience du large champ d'applications qu'offrent ces ondes *THz*, nous assistons depuis une vingtaine d'années à l'apparition de nombreuses techniques de génération et de détection d'ondes *THz* dont la plupart reposent sur des méthodes optiques (des méthodes électroniques reposant sur la multiplication de fréquence de signaux issus de diodes hyperfréquences ou utilisant des transistors HEMT permettent également la génération d'ondes *THz*). Au niveau de la réalisation des sources continues, il existe principalement deux types d'approches. La première est basée sur le photomélange par battement de deux lasers, l'idée étant de transposer en plus basse fréquence

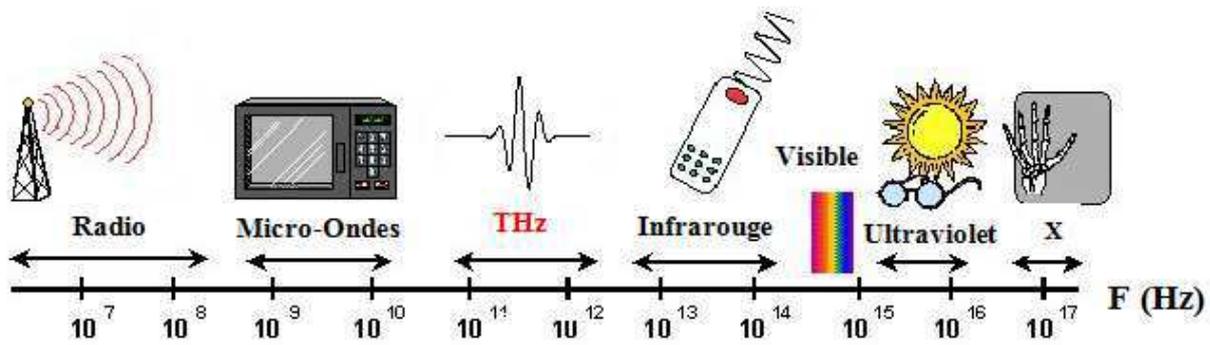


FIGURE 1 – Le spectre électromagnétique.

une partie de la puissance optique [3, 4]. Les principaux avantages de cette technique sont l'accordabilité spectrale de la source et la possibilité de fonctionner à température ambiante. La deuxième approche repose quant à elle sur l'utilisation de lasers à cascade quantique, l'émission de photons *THz* se faisant en cascade dans des hétérostructures semiconductrices [5]. Cette technique prometteuse présente l'inconvénient de ne fonctionner qu'à très basse température (celle de l'azote liquide pour le moment). Les ondes monochromatiques ainsi générées présentent un intérêt majeur pour la réalisation d'expériences de spectroscopie à haute résolution, cependant de nombreuses applications nécessitent préférentiellement des spectres *THz* présentant une grande largeur spectrale. L'orientation vers des sources impulsionnelles paraît alors évidente. On sait produire des impulsions électromagnétiques depuis les travaux de Hertz en 1887 qui démontrèrent qu'une brève variation de courant s'accompagne d'un rayonnement électromagnétique dont le spectre s'étendait, dans son expérience, jusqu'à quelques dizaines de MHz, confirmant ainsi l'exactitude de la théorie de Maxwell [6].

La première technique permettant de générer des impulsions *THz* est directement issue de ces travaux : une variation de courant sur une échelle de temps de la picoseconde entraîne un rayonnement dans le domaine *THz*. Suite à l'émergence des lasers délivrant des impulsions sub-picosecondes, Auston et *al* ont réalisé une des premières mises en évidence expérimentales de la génération d'impulsions *THz* en 1984 [7]. Ils proposèrent en effet d'utiliser des antennes photoconductrices, appelées photocommutateurs, comme émetteur et comme détecteur. Un photocommutateur est un matériau semi-conducteur à la surface duquel sont déposées deux électrodes aux bornes desquelles est appliquée une tension. Le mécanisme qui engendre l'émission d'une onde *THz* commence par l'illumination de l'espace inter-électrode du dispositif à l'aide d'une impulsion laser ultra-courte. Si l'énergie des photons est supérieure à celle de la bande interdite du semi-conducteur, il y a alors création de porteurs qui sont accélérés par le champ électrique régnant entre les électrodes. Ce déplacement de charge sur des échelles de temps sub-picoseconde est responsable du rayonnement d'une onde électromagnétique dans la gamme *THz*. La détection d'impulsions *THz* à l'aide d'un photocommutateur fait intervenir des mécanismes physiques similaires à ceux mis en jeu lors de l'émission. L'illumination de l'espace inter-électrodes par une impulsion laser ultra-courte, appelée impulsion sonde, entraîne la création de porteurs qui, cette fois-ci, sont accélérés par le champ électrique *THz* présent au moment de l'éclairement. La mesure de l'évolution de ce courant électrique, dont l'amplitude dépend de la valeur du champ

THz au cours du temps, permet de reconstruire l'impulsion THz dans le domaine temporel. Une deuxième technique, reposant également sur l'emploi d'un laser délivrant des impulsions sub-picosecondes, s'appuie sur un effet d'optique non-linéaire découvert dans les années 1960 : le redressement optique [8]. L'idée est la suivante : si l'on est capable de redresser une impulsion laser sub-picoseconde dans un matériau non-linéaire, on obtiendra alors une impulsion électromagnétique correspondant pratiquement à l'enveloppe de l'impulsion optique et dont l'étendue spectrale est inversement proportionnelle à sa durée et donc dans le domaine THz . La première mise en évidence expérimentale de cette technique de génération fut réalisée par Auston et *al* en 1984 [9]. Elle repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes dans un cristal de $LiTaO_3$, la détection d'impulsions THz s'effectuant quant à elle par effet électro-optique dans le même cristal de $LiTaO_3$.

Les techniques de génération et de détection développées au cours de cette thèse sont similaires à celles proposées dans ce deuxième article d'Auston [9] et seront présentées en détail dans le chapitre suivant. La première partie de notre travail consista en effet à étudier de manière théorique et expérimentale la génération d'impulsions THz par redressement optique dans un cristal semiconducteur de $ZnTe$. Nous avons mis en évidence une forte dépendance de l'efficacité de ce processus de génération avec l'intensité de l'impulsion laser génératrice. Ceci se traduit par une évolution anormale du spectre et de l'énergie THz avec l'intensité laser. Nous verrons que ces observations sont liées au processus d'absorption à deux photons dans le cristal non-linéaire.

Depuis les premiers travaux d'Auston et *al*, de nouvelles techniques permettant de générer des impulsions THz ont vu le jour comme la génération par effets de surface [10], par création de plasma dans l'air [11, 12], par filamentation laser [13], par des processus non linéaires dans des fibres [14], par transfert de charge dans des molécules photo-excitées [15, 16] ou à l'aide de polymères [17]. Cependant, les techniques les plus répandues et les plus efficaces sont toujours celles à base d'antennes et de redressement optique.

Avec l'émergence de nombreuses sources d'impulsions THz fiables et robustes [18], les recherches actuelles s'orientent davantage vers le développement de sources THz intenses [19] et de techniques de façonnage d'impulsions THz dont les applications sont nombreuses et interviennent dans des domaines aussi larges et variés que l'imagerie biologique et médicale, le traitement du signal et le contrôle cohérent. En effet, le contrôle de systèmes quantiques est un domaine très dynamique de la physique moderne. Un grand nombre de schémas de contrôle repose sur l'interaction cohérente entre le système étudié et une ou plusieurs impulsions lasers mises en forme [20, 21, 22]. Le façonnage d'impulsions laser a notamment permis d'étudier et de manipuler avec succès des systèmes atomiques [23, 24, 25], moléculaires [26, 27] et biologiques [28, 29]. Des expériences de contrôle cohérent ont également été réalisées dans le domaine THz et ont notamment permis, à l'aide d'impulsions laser femtosecondes mises en forme, l'excitation sélective de modes de phonons dans des cristaux moléculaires [30], d'oscillations de charges dans des hétérostructures semiconductrices [31, 32] ou de phonons-polaritons dans des cristaux ferroélectriques [33, 34]. Cependant, les possibilités de contrôle dans ce domaine de fréquence pourraient être considérablement augmentées en excitant directement ces systèmes avec des impulsions THz mises en forme.

Les études théoriques et expérimentales réalisées au cours de cette thèse sur la mise en forme d'impulsions THz se situent dans le contexte présenté ci-dessus. Nous avons développé une approche analytique qui repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtose-

condes mises en forme et qui permet notamment de générer des paires d'impulsions verrouillées en phase ainsi que des impulsions THz accordables de grande finesse spectrale. Nous verrons que les apports de notre technique, par rapport à celles déjà existantes, sont multiples : elle ne nécessite pas l'emploi d'algorithmes d'optimisations et offre la capacité à générer très rapidement des formes variées, ceci permet d'envisager la réalisation expérimentale du contrôle optimal dans ce domaine de fréquence. Afin de démontrer la validité de notre approche, nous avons également développé un programme de simulation qui donne des résultats en très bon accord avec l'expérience.

La présentation de ce travail de thèse est organisée de la manière suivante :

- le premier chapitre est consacré à la présentation de la technique de génération d'impulsions THz utilisée qui repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes dans un cristal semi-conducteur de ZnTe. Nous décrirons également la technique de détection qui est basée sur l'effet électro-optique. Puis, nous présenterons le dispositif expérimental développé au cours de cette thèse ainsi que les premiers résultats obtenus. Ces résultats expérimentaux seront confrontés à ceux provenant d'un programme de simulation que nous avons également développé.
- Dans le deuxième chapitre, nous effectuerons une étude plus systématique de l'efficacité de la génération d'impulsions THz en fonction de l'intensité laser incidente, ceci pour différentes épaisseurs du cristal de ZnTe. Nous mettrons en évidence un comportement anormal du spectre et de l'énergie THz avec l'intensité laser incidente. Nous verrons en particulier que le spectre se rétrécit et se décale vers les basses fréquences lorsque l'intensité augmente. Ces différents résultats seront attribués à la création de porteurs par absorption à deux photons.
- Pour réaliser une mise en forme des impulsions dans le domaine THz , nous avons opté pour le façonnage de l'impulsion laser femtoseconde génératrice. Le troisième chapitre détaille la conception, la construction et les réglages du dispositif haute résolution de mise en forme d'impulsions laser développé au cours de cette thèse et qui repose sur l'utilisation d'un masque à cristaux liquides placé dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle. Nous présenterons les premiers résultats obtenus avec ce façonneur ainsi que ses principales limitations.
- Enfin, le quatrième et dernier chapitre est consacré à l'étude théorique et expérimentale de la mise en forme d'impulsions THz . Nous montrerons que des modulations de phase spectrale relativement simples (sinusoïdale, triangulaire) de l'impulsion laser permettent de générer des trains d'impulsions THz , des paires d'impulsions THz verrouillées en phase et des combinaisons des deux. Nous verrons également que les spectres associés sont relativement étroits (jusqu'à 0.14 THz à mi-hauteur) et accordables de 0.5 à 3 THz. Ces différents résultats seront confrontés aux prédictions du programme de simulation développé.

Bibliographie

- [1] Y. S. Lee, *Principles of Terahertz Science and Technology*, (Springer, 2009).
- [2] J. L. Coutaz et al, *Optoélectronique térahertz*, (EDP Sciences, 2008).
- [3] T. Hidaka, S. Matsuura, M. Tani and K. Sakai, "CW terahertz wave generation by photomixing using a two-longitudinal-mode laser diode," *Electronics Letters* **33**(24), 2039-40 (1997).
- [4] P. G. Huggard, B. N. Ellison, P. Shen, N. J. Gomes, P. A. Davies, W. Shillue, A. Vaccari and J. Payne, "Generation of Millimetre and Sub-Millimetre Waves by Photomixing in 1.55 μm Wavelength Photodiode," *Electronics Letters* **38**(7), 327-28 (2002).
- [5] J. Faist, F. Capasso, D. I. Sivco, C. Sirtori, A. I. Hutchinson and A. Y. Cho, "Quantum cascade laser," *Science* **264**, 553-56 (1994).
- [6] H. R. Hertz, "Über sehr schnelle elektrische Schwingungen," *Annalen der Physik und Chemie* **31**, 421-49 (1887).
- [7] D. H. Auston, K. P. Cheung and P. R. Smith, "Picosecond photoconducting hertzian dipoles," *Applied Physics letters* **45**(3), 284-86 (1984).
- [8] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward and G. Weinreich, "Optical rectification," *Physical Review Letters* **9**(11), 446-48 (1962).
- [9] 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**(16), 1555-58 (1984).
- [10] X. C. Zhang, B. B. Hu, J. Darrow and D. Auston, "Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor," *Applied Physics letters* **56**(11), 1011-13 (1989).
- [11] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White and R. W. Falcone, "Subpicosecond electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction," *Physical Review letters* **71**(17), 2725-28 (1993).
- [12] X. Xie, J. Dai and X. C. Zhang, "Coherent Control of THz Wave Generation in Ambient Air," *Physical Review letters* **96**(075005), 1-4 (2006).
- [13] C. D'Amico, A. Houard, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and V. T. Tikhonchuk, "Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air," *Physical Review letters* **98**(235002), 1-4 (2007).
- [14] J. M. Dudley, F. Gutton, S. Pitois and G. Millot, "Complete characterization of terahertz pulse trains generated from nonlinear processes in optical fibers," *IEEE Journal of Quantum Electronics* **37**(4), 587-94 (2001).
- [15] M. C. Beard, G. M. Turner and C. A. Schmuttenmaer, "Measurement of electromagnetic radiation emitted during rapid intramolecular electron transfert," *Journal of the American Chemical Society* **122**, 11541-42 (2000).
- [16] C. A. Schmuttenmaer, "A new method for measuring intramolecular charge transfer," *Science Progress* **85**(2), 175-97 (2002).
- [17] A. Nahata, D. H. Auston, C. Wu and J. T. Yardley "Generation of terahertz radiation from a poled polymer," *Applied Physics letters* **67**(10), 1358-60 (1995).

- [18] K. Reimann, "Table-top sources of ultrashort THz pulses," *Reports on Progress in Physics* **70**, 1597-1632 (2007).
- [19] J. Hebling, K. I. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal and K. A. Nelson, "Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities," *Journal of the Optical Society of America B* **25**(7), B6-B19 (2008).
- [20] D. J. Tannor, R. Kosloff and S. A. Rice, "Coherent pulse sequence induced control of selectivity of reactions : exact quantum mechanical calculations," *Journal of Chemical Physics* **85**(10), 5805-20 (1986).
- [21] M. Shapiro and P. Brumer, "Laser control of product quantum state populations in unimolecular reactions," *Journal of Chemical Physics* **84**(7), 4103-04 (1986).
- [22] C. Chen, Y. Y. Yin and D. S. Elliott, "Interference between optical transitions," *Physical Review Letters* **64**(5), 507-10 (1990).
- [23] D. Meshulach and Y. Silberberg, "Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse," *Nature* **396**, 239-42 (1998).
- [24] N. Dudovich, D. Oron and Y. Silberberg, "Coherent Transient Enhancement of Optically Induced Resonant Transitions," *Physical Review Letters* **88**(12), 123004 1-4 (2002).
- [25] S. Zamith, J. Degert, S. Stock, B. de Beauvoir, V. Blanchet, M. A. Bouchene and B. Girard, "Observation of Coherent Transients in Ultrashort Chirped Excitation of an Undamped Two-Level System," *Physical Review Letters* **87**(3), 033001 1-4 (2001).
- [26] M. Dantus and V. V. Lozovoy, "Experimental coherent laser control of physicochemical processes," *Chemical Reviews* **104**(4), 1813-59 (2004).
- [27] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber, "Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses," *Science* **282**, 919-22 (1998).
- [28] W. Wohlleben, T. Buckup, J. L. Herek and M. Motzkus, "Coherent Control for Spectroscopy and Manipulation of Biological Dynamics," *ChemPhysChem* **6**, 850-57 (2005).
- [29] J. P. Ogilvie, D. Débarre, X. Solinas, J. L. Martin, E. Beaurepaire and M. Joffre "Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms," *Optics Express* **14**(2), 8448-58 (2006).
- [30] A. M. Weiner, D. E. Leaird, G. P. Wiederrecht and K. A. Nelson, "Femtosecond Pulse Sequences Used for Optical Manipulation of Molecular Motion," *Science* **247**, 1317-19 (1990).
- [31] I. Brener, P. C. M. Planken, M. C. Nuss, L. Pfeiffer, D. E. Leaird and A. M. Weiner "Repetitive excitation of charge oscillations in semiconductor heterostructures," *Applied Physics Letters* **63**(16), 2213-15 (1993).
- [32] P. C. M. Planken, I. Brener, M. C. Nuss, M. S. C. Luo and S. L. Chuang, "Coherent control of terahertz charge oscillations in a coupled quantum well using phase-locked optical pulses," *Physical Review B* **48**(7), 4903-06 (1993).
- [33] T. Feurer, J. C. Vaughan and K. A. Nelson, "Spatiotemporal Coherent Control of Lattice Vibrational Waves ," *Science* **299**, 374-77 (2003).
- [34] D. W. Ward, J. D. Beers, T. Feurer, E. R. Statz, N. S. Stoyanov and K. A. Nelson, "Coherent control of phonon-polaritons in a terahertz resonator fabricated with femtosecond laser machining," *Optics Letters* **29**(22), 2671-73 (2004).

Chapitre I

GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'IMPULSIONS THZ

Ce chapitre est consacré à l'étude de la génération et de la détection d'impulsions térahertz à l'aide d'impulsions laser femtosecondes. Parmi la grande diversité des méthodes de génération d'impulsions THz, la conversion de fréquence par redressement optique est encore aujourd'hui l'une des plus efficaces et des plus utilisées [1, 2]. Un des avantages de cette technique provient de la non-résonance du processus physique, de telle sorte que la largeur de l'impulsions térahertz générée est en principe seulement limitée par la largeur de l'impulsion laser optique (et les modes d'absorption de phonon du cristal) et non par le temps de réponse du matériau. La simple génération THz par redressement optique avec une source laser femtoseconde, dont la première mise en évidence expérimentale date des travaux d'Auston et *al* en 1984 [3], ne présente plus aujourd'hui de difficulté majeure. Néanmoins, pour réaliser un dispositif efficace, le choix du matériau non-linéaire reste limité. En effet, ce dernier doit à la fois présenter une forte non-linéarité et satisfaire à des critères de transparence et d'accord de phase pour des longueurs d'ondes extrêmes. Parmi les matériaux massifs pouvant être utilisés (GaAs, GaSe, ZnTe, le DAST ...), nous verrons que le cristal semi-conducteur de ZnTe satisfait au mieux à ces conditions.

La technique de détection d'impulsions THz utilisée repose quant à elle sur l'emploi d'un cristal électro-optique dont l'ellipsoïde des indices est modifiée en présence d'une onde THz. Cette perturbation conduit à une modification de l'état de polarisation d'un faisceau sonde traversant le cristal et la mesure de cette rotation de polarisation au cours du temps permet de déterminer simplement l'amplitude et la phase de l'onde THz. Une étude comparative entre cette technique de détection est celle reposant sur l'utilisation d'un photocommutateur est réalisée dans les références [4, 5, 6].

Ce chapitre est organisé de la manière suivante. Dans un premier temps, nous présenterons la technique de génération d'impulsions THz utilisée qui repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes dans un cristal semi-conducteur de ZnTe. Puis dans un second temps, nous présenterons en détail la technique de détection qui est basée sur l'effet électro-optique. Enfin, nous décrirons le système expérimental développé au cours de cette thèse. Les premiers résultats obtenus avec celui-ci seront discutés et confrontés aux résultats théoriques obtenus à l'aide d'un programme de simulation que nous avons également développé.

I.1 Génération par redressement optique dans le ZnTe

Cette partie est consacrée à l'étude de la génération d'impulsions THz par redressement optique d'impulsions laser femtosecondes dans le cristal de ZnTe. Après une brève description qualitative de ce processus de génération, nous passerons à la description du cristal semi-conducteur de ZnTe, puis nous établirons l'équation régissant la génération de l'onde THz.

I.1.1 Première approche qualitative

I.1.1.1 Point de vue ondulatoire

Le phénomène de redressement optique est un processus non-linéaire d'ordre 2 [7]. Ce type de processus se manifeste lorsqu'un milieu diélectrique est soumis à un champ électrique d'amplitude comparable à son champ interne de cohésion $E_c \sim 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$. Dans ces conditions, la réponse du milieu, c'est-à-dire la polarisation induite par le champ électrique, n'est plus proportionnelle au champ exciteur, mais s'écrit alors comme un développement en série de puissance de ce dernier. Plus précisément, en notant $\vec{E}(t)$ le champ électrique appliqué au milieu matériel, $\vec{P}(t)$ sa polarisation et en supposant que la réponse du milieu est instantanée, on a [8] :

$$\vec{P}(t) = \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(1)} \vec{E}(t) + \varepsilon_0 \mathbf{R}^{(2)} \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \dots, \quad (\text{I.1})$$

où $\mathbf{R}^{(n)}$ est un tenseur d'ordre n avec $|\mathbf{R}^{(1)}| \gg |\mathbf{R}^{(2)}| \gg \dots \gg |\mathbf{R}^{(n)}|$.

Limitons nous à un développement à l'ordre 2 de l'expression I.1 et considérons un champ exciteur femtoseconde, de fréquence centrale ω_0 et de durée à mi-hauteur τ_p . Le champ électrique $\vec{E}(t)$ est alors donné par :

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cos(\omega_0 t) \exp\left(-\frac{t^2}{T_p^2}\right), \quad (\text{I.2})$$

où $T_p = \tau_p / \sqrt{2 \ln 2}$ est la demi largeur à $1/e$ du champ. En remplaçant \vec{E} par cette expression dans l'équation I.1, et en négligeant le caractère vectoriel de la polarisation on obtient :

$$\begin{aligned} P(t) &= \underbrace{\frac{1}{2} \varepsilon_0 R^{(1)} E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{T_p^2}\right) [\exp(-i\omega_0 t) + \text{c.c.}]}_{\text{polarisation linéaire}} \\ &+ \underbrace{\frac{1}{4} \varepsilon_0 R^{(2)} E_0^2 \exp\left(-\frac{2t^2}{T_p^2}\right) \{[\exp(-2i\omega_0 t) + \exp(0)] + \text{c.c.}\}}_{\text{polarisation non-linéaire d'ordre 2}}. \end{aligned} \quad (\text{I.3})$$

Le premier terme de l'expression I.3 décrit la réponse linéaire de la matière. Quant au deuxième terme, il décrit la réponse non-linéaire d'ordre 2 où apparaissent deux termes : l'un à la fréquence $2\omega_0$ à l'origine de la génération de seconde harmonique et l'autre de fréquence nulle, noté $P_{RO}^{(2)}(t)$, à l'origine du processus de redressement optique [7]. En ne conservant que ce dernier terme, la polarisation du milieu s'écrit :

$$P(t) = P_{RO}^{(2)}(t) \propto E_0^2 \exp\left(-\frac{2t^2}{T_p^2}\right). \quad (\text{I.4})$$

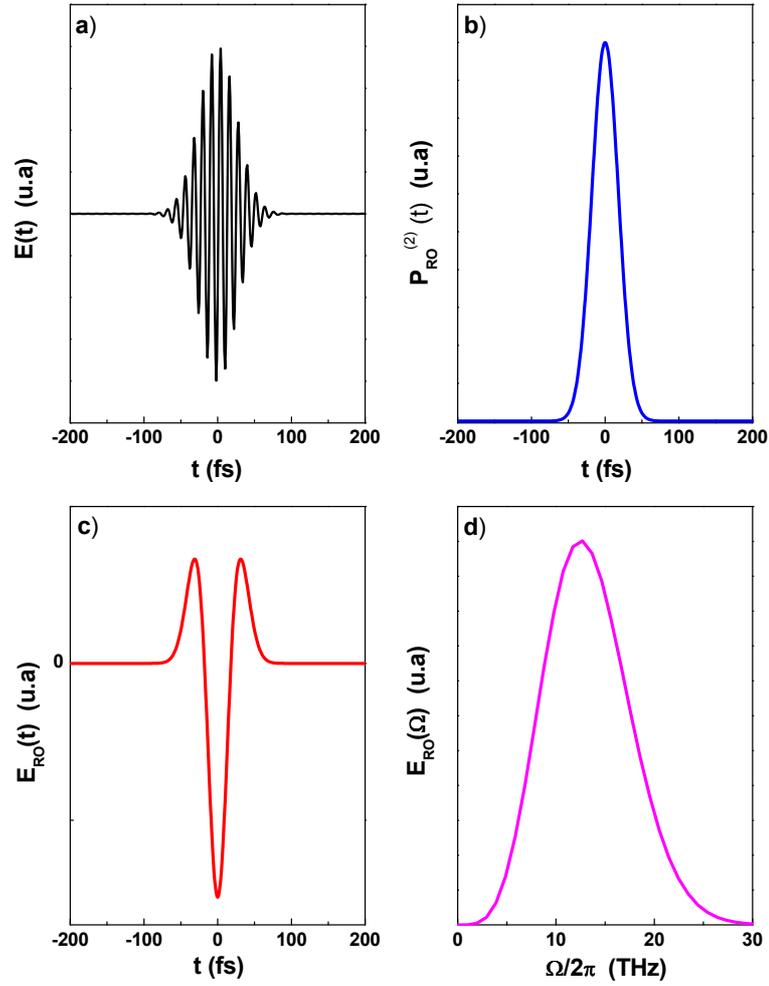


FIGURE I.1 – a) Champ électrique associé à une impulsion laser femtoseconde à 800 nm de largeur à mi-hauteur en intensité $\tau_p = 50$ fs. b) Variation de $P_{RO}^{(2)}$ au cours du temps. c) Champ électrique THz rayonné au cours du temps par $P_{RO}^{(2)}$. d) Spectre THz associé.

Le champ électrique rayonné, qui est proportionnel à la dérivée seconde de $P_{RO}^{(2)}(t)$ par rapport au temps, s'écrit alors de la manière suivante :

$$E_{RO}(t) \propto \frac{d^2 P_{RO}^{(2)}(t)}{dt^2} \propto \exp\left(-\frac{2t^2}{T_p^2}\right) \left(2t^2 - \frac{T_p^2}{2}\right), \quad (I.5)$$

avec un spectre associé donné par :

$$E_{RO}(\Omega) \propto \Omega^2 \exp\left(-\frac{1}{8}\Omega^2 T_p^2\right). \quad (I.6)$$

Nous observons sur la figure I.1 d) que ce signal, généré par redressement optique d'une impulsion laser femtoseconde, se situe dans la gamme spectrale THz .

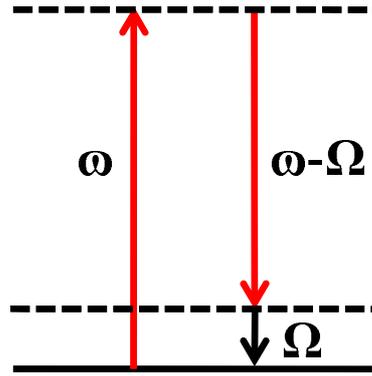


FIGURE I.2 – redressement optique : point de vue corpusculaire.

I.1.1.2 Point de vue corpusculaire

La génération par redressement optique d'un photon *THz* d'énergie $\hbar\Omega$ résulte de l'interaction au sein du milieu non-linéaire de deux photons optiques provenant d'une même impulsion et d'énergies respectives $\hbar\omega$ et $\hbar(\omega - \Omega)$ (cf. figure I.2). En fait, l'impulsion femtoseconde présentant une grande largeur spectrale, ce sont toutes les paires de photons séparées de $\hbar\Omega$ qui contribuent à la génération de ce photon dans le domaine *THz*.

Comme tout processus non-linéaire, l'efficacité de génération d'un photon *THz* par redressement optique est maximale lorsqu'une condition dite d'accord de phase est satisfaite. Cette condition, traduisant la conservation de la quantité de mouvement au cours du processus d'interaction, s'écrit de la manière suivante :

$$\Delta k = k_{THz}(\Omega) - [k_{opt}(\omega) - k_{opt}(\omega - \Omega)] = 0, \quad (I.7)$$

où k_{THz} représente la norme du vecteur d'onde associé à l'impulsion *THz* et k_{opt} celle du vecteur d'onde associé à l'impulsion laser. Sachant que la largeur spectrale de l'impulsion optique est petite devant sa fréquence centrale, on peut considérer que $\omega = \omega_0$, et comme $\Omega \ll \omega_0$, le désaccord de phase Δk peut alors s'écrire sous la forme [9] :

$$\Delta k \simeq k_{THz}(\Omega) - \Omega \left(\frac{dk_{opt}}{d\omega} \right)_{\omega=\omega_0} = \frac{\Omega}{v_{\varphi}(\Omega)} - \frac{\Omega}{v_g(\omega_0)}, \quad (I.8)$$

où $v_{\varphi}(\Omega)$ et $v_g(\omega_0)$ représentent respectivement la vitesse de phase de l'onde *THz* générée et la vitesse de groupe de l'onde optique. La vitesse de phase $v_{\varphi}(\Omega)$ s'exprime simplement en fonction de l'indice de réfraction $n(\Omega)$ du milieu dans le domaine *THz* de la manière suivante :

$$v_{\varphi}(\Omega) = \frac{c}{n(\Omega)}, \quad (I.9)$$

où c représente la vitesse de la lumière dans le vide. La vitesse de groupe de l'onde optique $v_g(\omega_0)$ est, quant à elle, donnée par :

$$v_g(\omega_0) = \frac{c}{n_g(\omega_0)}, \quad (\text{I.10})$$

où n_g représente l'indice de groupe qui s'écrit en fonction de l'indice de réfraction $n_{opt}(\omega)$ du milieu dans le domaine optique de la manière suivante :

$$n_g(\omega_0) = n_{opt}(\omega_0) + \omega_0 \left(\frac{dn_{opt}}{d\omega} \right)_{\omega=\omega_0}. \quad (\text{I.11})$$

La condition d'accord de phase I.8 ($\Delta k = 0$) est vérifiée lorsque l'impulsion laser se propage dans le cristal générateur à la même vitesse que la composante spectrale THz générée c'est-à-dire lorsque $v_\varphi(\Omega) = v_g(\omega_0)$. A partir des expressions I.9 et I.10, on montre directement que cette dernière est réalisée lorsque l'indice de réfraction dans le domaine THz $n(\Omega)$ est égal à l'indice de groupe $n_g(\omega_0)$.

Pour obtenir la meilleure efficacité de conversion possible, il faut donc utiliser des matériaux permettant de vérifier cette condition d'accord de phase et possédant de surcroît une forte susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, c'est la raison pour laquelle nous avons utilisé le cristal de ZnTe décrit à la section suivante.

I.1.2 Le cristal de ZnTe

Le ZnTe est un cristal semiconducteur II-VI de type zinc-blende. Son réseau cristallographique, comme celui du diamant, est de type blende. Il est constitué de deux réseaux de Bravais cubiques à faces centrées qui s'interpénètrent. La longueur de la maille élémentaire à température ambiante est de $a_0 = 6.1034 \text{ \AA}$. L'un des réseaux est décalé le long de la diagonale de l'autre de $a_0/4$. Le ZnTe possède un nombre égal d'ions de zinc et d'ions tellure distribués sur le réseau de telle sorte que chacun possède quatre ions de l'autre type pour plus proches voisins (voir figure I.3). La symétrie cristalline est $\bar{4}3m$. La taille de coupe des cristaux utilisés a été choisie suivant l'axe $\langle 110 \rangle$. Nous détaillons ci-dessous les principaux critères qui font du ZnTe un très bon candidat pour la génération d'impulsions THz par redressement optique d'impulsions laser à 800nm.

– Tout d'abord, il est transparent à cette longueur d'onde, l'écart énergétique entre la bande de valence et la bande de conduction étant de $E_g = 2.2 \text{ eV}$ ce qui correspond à une radiation de longueur d'onde $\lambda = 564 \text{ nm}$. Le spectre de transmission stationnaire d'un cristal de ZnTe de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur est représenté sur la figure I.4 a).

– Ce cristal possède une forte susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 de l'ordre de 90 pm/V . Son tenseur est constitué de 27 éléments, dont le seul élément non nul est le coefficient $\chi_{ijk}^{(2)} = 2d_{14}$ avec $i \neq j \neq k$.

– Il présente une très faible absorption dans le domaine $0 - 5 \text{ THz}$. Des expériences de spectroscopie stationnaire ont montré que l'absorption du rayonnement THz due à la présence de phonons autour de 1.6 THz et 3.7 THz est négligeable [10, 11]. Cependant, cette dernière devient importante autour de 5.3 THz à cause de la présence d'un phonon transverse optique. Plus

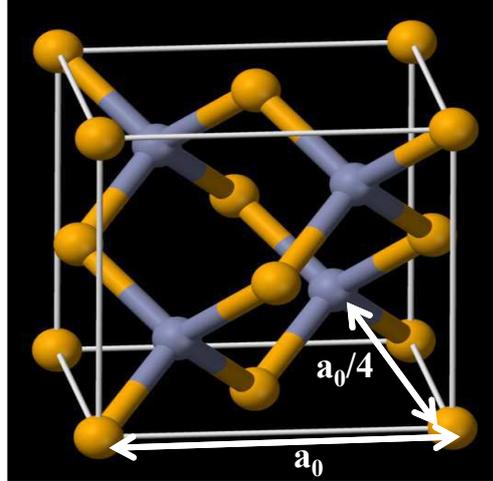


FIGURE I.3 – Maille élémentaire du réseau cristallin du ZnTe. Un type d'ion est représenté en jaune et l'autre en bleu. Les quatre plus proches voisins de chaque point forment les nœuds d'un tétraèdre régulier.

précisément, la permittivité diélectrique complexe du ZnTe dans ce domaine de fréquence s'exprime de la manière suivante [11] :

$$\tilde{\varepsilon}(\Omega) = \varepsilon_{el} + \sum_{n=1}^3 \frac{A_n \Omega_n^2}{\Omega_n^2 - \Omega^2 - 2i\gamma_n \Omega}, \quad (\text{I.12})$$

avec $\varepsilon_{el} = 7.44$, et où A_n , Ω_n et γ_n ($n = 1, 2, 3$) représentent respectivement le poids, la pulsation et la largeur de raie des trois modes de phonons intervenant dans la gamme $0 - 5.3$ THz. Leurs valeurs sont indiquées dans le tableau I.1. Connaissant $\tilde{\varepsilon}(\Omega)$, on peut en déduire l'indice complexe du ZnTe, relié à la permittivité complexe de la manière suivante :

$$\tilde{n}(\Omega) = \sqrt{\tilde{\varepsilon}(\Omega)} = n(\Omega) + i\kappa(\Omega), \quad (\text{I.13})$$

n	A_n	$\Omega_n/2\pi(\text{THz})$	$\gamma_n/2\pi(\text{THz})$	Nature
1	0.030	1.600	0.290	<i>TA</i>
2	0.088	3.700	0.470	<i>LA</i>
3	2.765	5.320	0.022	<i>TO</i>

TABLE I.1 – Paramètres associés aux trois modes de phonons intervenant dans l'expression de la permittivité diélectrique complexe du ZnTe dans le domaine $0 - 5.3$ THz [11]. La nature des phonons est également précisée : *TA* pour transverse acoustique, *LA* pour longitudinal acoustique et *TO* pour transverse optique.

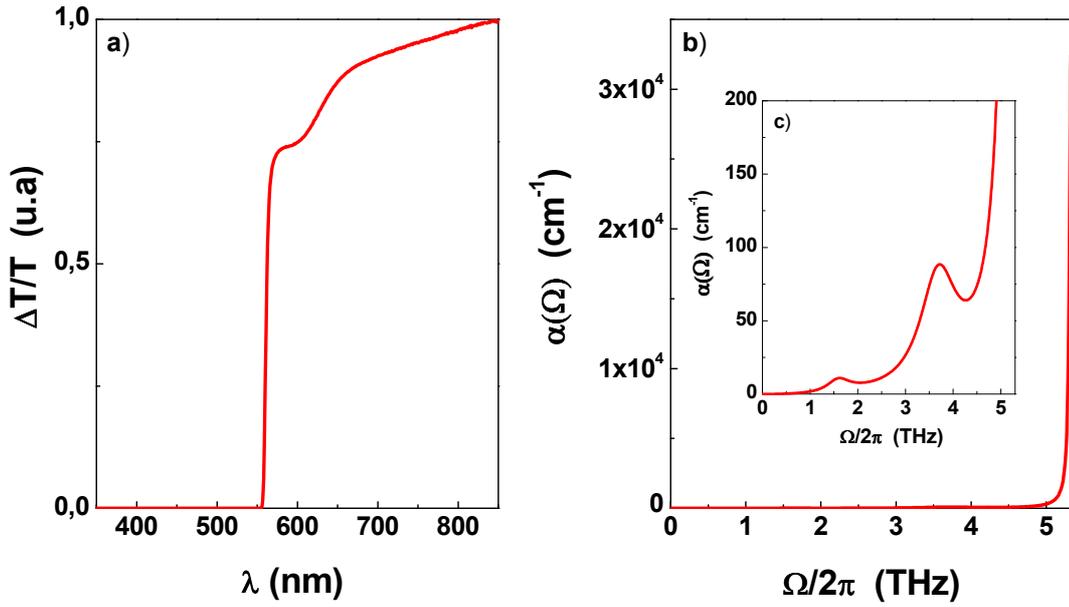


FIGURE I.4 – a) Spectre de transmission stationnaire d'un cristal de ZnTe de 300 μm d'épaisseur mesuré à l'aide d'un spectrophotomètre Cary 5G UV-Vis-NIR (Varian). b) Coefficient d'absorption α du ZnTe dans le domaine 0–5.3 THz. c) Zoom de la figure b) sur l'absorption des phonons à 1.6 THz et 3.7 THz.

où $n(\Omega)$ représente l'indice de réfraction du ZnTe et $\kappa(\Omega)$ le coefficient d'atténuation, relié au coefficient d'absorption $\alpha(\Omega)$ par la relation suivante :

$$\kappa(\Omega) = \frac{\alpha(\Omega) c}{2\Omega}. \quad (\text{I.14})$$

L'évolution de $\alpha(\Omega)$ est représentée sur les figures I.4 b) et c) qui ont été obtenues à partir de l'expression I.12.

– Il permet également de vérifier la condition d'accord de phase. En effet, l'indice de réfraction du ZnTe dans le domaine THz peut être approximé par la formule suivante [12] :

$$n(F) = \sqrt{\frac{289.27 - 6F^2}{29.16 - F^2}}, \quad (\text{I.15})$$

où $F = \Omega/2\pi$ est la fréquence exprimée en THz. Tandis que dans le domaine optique, l'indice est donné par la formule de Sellmeier suivante [13] :

$$n_{opt}(\lambda) = \sqrt{4.27 + \frac{3.01\lambda^2}{\lambda^2 - 0.142}}, \quad (\text{I.16})$$

où λ représente la longueur d'onde en μm , et l'indice de groupe n_g s'exprime en fonction de λ de la manière suivante :

$$n_g(\lambda) = n_{opt}(\lambda) - \lambda \frac{dn_{opt}}{d\lambda}. \quad (\text{I.17})$$

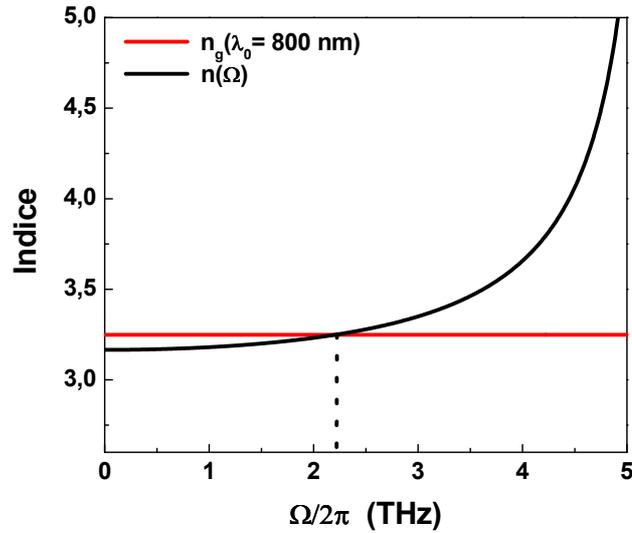


FIGURE I.5 – Dispersion de l'indice de réfraction du ZnTe dans le domaine THz (en noir) et indice de groupe à 800 nm (en rouge). L'accord de phase est réalisé autour de 2.2 THz.

A l'aide des expressions I.16 et I.17, on peut calculer l'indice de groupe à 800 nm, $n_g(800 \text{ nm}) = 3.24$, que l'on peut considérer comme l'indice de groupe de l'ensemble des composantes spectrales de l'impulsion pompe compte tenu de la "faible" largeur spectrale de cette dernière. Si l'on représente n et n_g en fonction de Ω , on observe que l'intersection de ces deux courbes est obtenue pour $\Omega = 2.2 \text{ THz}$ (cf. figure I.5). Ainsi, la forte dispersion de l'indice de réfraction due au phonon à 5.3 THz permet la réalisation de la condition d'accord de phase.

Ce cristal remplit donc toutes les conditions permettant de générer efficacement des impulsions THz par redressement optique d'impulsions laser femtosecondes à 800 nm. Les propriétés optiques, linéaires et non-linéaires, du ZnTe sont parfaitement connues. Des expériences d'effet Kerr ont notamment permis la caractérisation de l'indice non-linéaire induit dans ce cristal en présence de redressement optique ainsi que la mise en évidence d'effet de cascade [14, 15]. Dans la partie suivante, nous allons établir l'équation décrivant la génération de l'onde THz.

I.1.3 Approche quantitative

Dans cette partie, nous commencerons par déterminer l'orientation du cristal de ZnTe permettant d'optimiser le processus de génération de l'onde THz. Ensuite, nous déterminerons l'équation d'évolution de l'onde optique à 800 nm et celle décrivant la génération de l'onde THz par redressement optique dans le ZnTe.

I.1.3.1 Orientation du cristal de ZnTe

Soit R_c le repère cristallin d'axes X, Y, Z et R_L le repère du laboratoire d'axes x, y, z (cf. figure I.6). La taille de coupe des cristaux de ZnTe utilisés a été choisie suivant l'axe $z = \langle 110 \rangle$. En incidence normale sur le cristal, le faisceau pompe se propage suivant l'axe z et sa direction

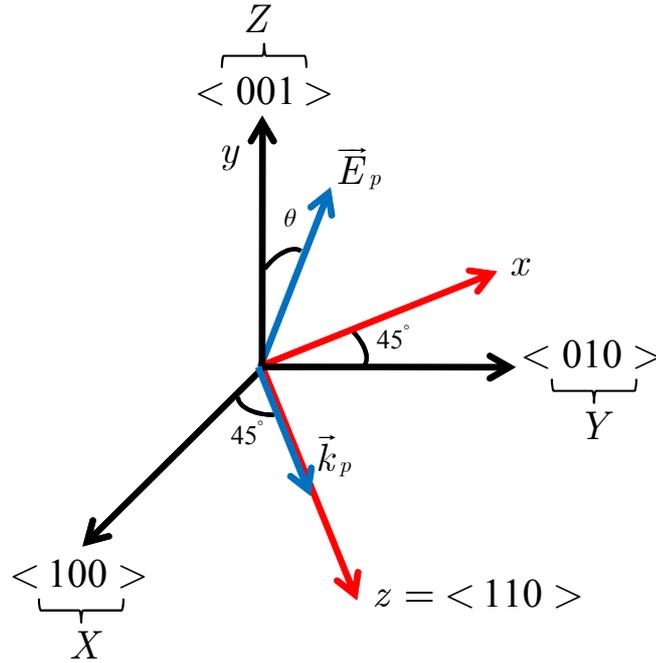


FIGURE I.6 – Le repère cristallin R_c du ZnTe est représenté en noir par le système d'axes X, Y, Z . Le repère du laboratoire R_L défini par les axes x, y, z est représenté en rouge. Le champ électrique \vec{E}_p associé à l'impulsion laser se propageant suivant l'axe z est polarisé linéairement, sa direction de polarisation faisant un angle θ avec l'axe y .

de polarisation fait un angle θ avec l'axe y . L'objectif de cette partie est de déterminer la valeur de θ permettant d'optimiser le processus de génération de l'onde THz.

Dans cette sous-section, nous négligerons les dépendances temporelle et spatiale du champ électrique associé à l'onde optique qui sera simplement noté \vec{E}_p . Dans R_L , les composantes de \vec{E}_p sont les suivantes :

$$\vec{E}_p = E_p \begin{pmatrix} \sin \theta \\ \cos \theta \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{I.18})$$

A l'aide des relations de passage entre R_L et R_c qui sont données par :

$$\begin{cases} \vec{e}_x = \frac{1}{\sqrt{2}} (-\vec{e}_x + \vec{e}_z) \\ \vec{e}_y = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_x + \vec{e}_z) \\ \vec{e}_z = \vec{e}_y \end{cases}, \quad (\text{I.19})$$

nous pouvons exprimer \vec{E}_p dans R_c de la manière suivante :

$$\vec{E}_p = \begin{pmatrix} E_X \\ E_Y \\ E_Z \end{pmatrix} = E_p \begin{pmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix}. \quad (\text{I.20})$$

Sachant que $\chi_{XYZ}^{(2)}$ est le seul élément non nul du tenseur de susceptibilité d'ordre 2, l'expression de la polarisation non-linéaire, induite par redressement optique, dans R_c est la suivante :

$$P_{XYZ}^{(2)}(\theta) = \varepsilon_0 \chi_{XYZ}^{(2)} \begin{pmatrix} E_Y E_Z \\ E_X E_Z \\ E_X E_Y \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \chi_{XYZ}^{(2)} E_p^2 \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \theta \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \theta \\ -\frac{1}{2} \sin^2 \theta \end{pmatrix}. \quad (\text{I.21})$$

En utilisant les relations de passage I.19, nous pouvons exprimer la polarisation non-linéaire dans R_L :

$$P_{xyz}^{(2)}(\theta) = \varepsilon_0 \chi_{XYZ}^{(2)} E_p^2 \sin \theta \begin{pmatrix} -\cos \theta \\ -\frac{1}{2} \sin \theta \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{I.22})$$

Il faut maintenant déterminer les valeurs de θ pour lesquelles l'efficacité de la génération de l'onde THz est maximale, c'est-à-dire les valeurs qui maximisent $|P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2$ donné par l'expression suivante :

$$|P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2 = \varepsilon_0 |\chi_{XYZ}^{(2)}|^2 E_p^4 \sin^2 \theta \left(\cos^2 \theta + \frac{\sin^2 \theta}{4} \right), \quad (\text{I.23})$$

ce qui revient à chercher les zéros de la dérivée de $|P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2$ par rapport à θ qui est donnée par :

$$\frac{d |P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2}{d\theta} \propto 2 \sin \theta \cos \theta \left(\cos^2 \theta + \frac{1}{4} \sin^2 \theta \right) - \frac{3}{2} \sin^3 \theta \cos \theta. \quad (\text{I.24})$$

Sur l'intervalle $[0, \pi]$, l'expression I.24 admet quatre extrema : $\theta = 0; \frac{\pi}{2}; \pm \arctan \sqrt{2}$. Pratiquement, les valeurs de θ pour lesquelles $|P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2$ est maximal sont $\theta = \pm \arctan \sqrt{2}$, soit $\theta_1 = 54.74^\circ$ et $\theta_2 = 125.26^\circ$ (cf. figure I.7). Nous choisissons pour la suite $\theta = \theta_1 = 54.74^\circ$. L'expression de la polarisation non-linéaire dans le repère R_L est dans ce cas :

$$P_{xyz}^{(2)} \simeq \varepsilon_0 \chi_{XYZ}^{(2)} \times 0.816 \begin{pmatrix} -0.577 \\ -0.408 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{I.25})$$

Le champ électrique THz rayonné par $P_{xyz}^{(2)}$ est dans le plan (Oxy) , sa direction de polarisation faisant un angle θ' avec l'axe y donné par :

$$\theta' \simeq \arctan \left(\frac{0.577}{0.408} \right) \simeq 54.74^\circ. \quad (\text{I.26})$$

Les directions de polarisation de l'onde pompe et de l'onde THz sont donc parallèles.

La géométrie d'interaction permettant d'obtenir une efficacité maximale de génération de l'onde THz est donc la suivante : l'onde pompe se propage suivant l'axe z et sa direction de

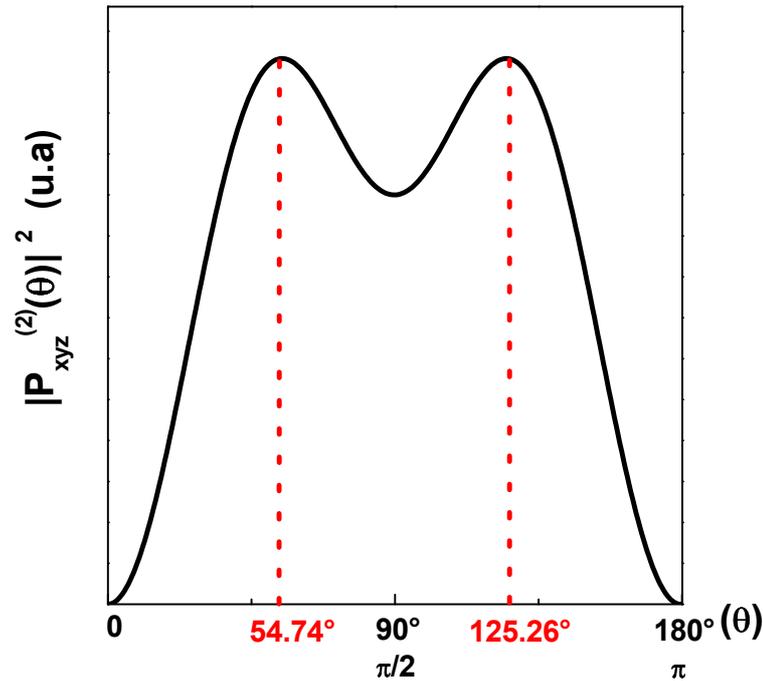


FIGURE I.7 – Représentation graphique de $|P_{xyz}^{(2)}(\theta)|^2$ sur l'intervalle $[0, \pi]$.

polarisation fait un angle $\theta = 54.74^\circ$ avec l'axe y . Dans ce cas, la polarisation non-linéaire d'ordre 2 créée par redressement optique est dans le plan (Oxy) . Elle rayonne une onde THz qui se propage suivant l'axe z et dont la direction de polarisation est parallèle à celle de l'onde optique. Connaissant la géométrie d'interaction, nous pouvons désormais déterminer l'équation d'évolution de l'onde optique et celle régissant la génération de l'onde THz par redressement optique dans le ZnTe.

I.1.3.2 Equation d'évolution de l'onde optique

Les équations décrivant l'évolution de l'onde optique et la génération de l'onde THz sont *a priori* couplées, mais moyennant certaines hypothèses, nous pouvons nous ramener à deux équations non couplées.

Les hypothèses pour l'onde pompe sont les suivantes :

- nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable c'est-à-dire qu'on considère que les oscillations du champ électrique optique varient beaucoup plus rapidement que l'enveloppe de l'impulsion ;
- nous supposons que l'onde pompe se propage sans atténuation dans le cristal (pas de déplétion de l'onde optique et pas d'absorption) ;
- nous considérons une onde se propageant suivant l'axe z dont la direction de polarisation fait un angle $\theta = 54.74^\circ$;
- nous négligeons les effets de diffraction.

Dans ce cadre le champ électrique complexe associé à l'impulsion laser s'écrit, à l'entrée du cristal, de la manière suivante :

$$E_p(t, 0) = E_0(t, 0) \exp(-i\omega_0 t), \quad (\text{I.27})$$

où ω_0 représente la pulsation centrale et $E_0(t, 0)$ est l'enveloppe de l'impulsion donnée par :

$$E_0(t, 0) = E_0 \exp\left[-2 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_p}\right)^2\right], \quad (\text{I.28})$$

avec E_0 l'amplitude du champ électrique et τ_p la largeur à mi-hauteur en intensité. Au vue des approximations précédentes, l'équation régissant la propagation de l'onde pompe, déduite des équations de Maxwell, s'écrit :

$$\frac{\partial E_0(t, z)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E_0(t, z)}{\partial t} = 0, \quad (\text{I.29})$$

où v_g représente la vitesse de groupe de l'impulsion laser.

Nous introduisons $E_0(\omega, z)$ la transformée de Fourier de $E_0(t, z)$ définie par :

$$E_0(\omega, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0(t, z) \exp(i\omega t) dt. \quad (\text{I.30})$$

Dans le domaine spectral, l'équation I.29 peut s'écrire simplement de la manière suivante :

$$\frac{\partial E_0(\omega, z)}{\partial z} - \frac{i\omega}{v_g} E_0(\omega, z) = 0, \quad (\text{I.31})$$

ce qui conduit à :

$$E_0(\omega, z) = E_0(\omega, 0) \exp\left(\frac{i\omega z}{v_g}\right), \quad (\text{I.32})$$

où $E_0(\omega, 0)$ représente le spectre complexe de l'enveloppe à l'entrée du cristal donné par :

$$E_0(\omega, 0) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0(t, 0) \exp(i\omega t) dt = E_0 \sqrt{\frac{\pi}{\Gamma_p}} \exp\left(-\frac{\omega^2}{4\Gamma_p}\right), \quad (\text{I.33})$$

avec $\Gamma_p = 2 \ln 2 / \tau_p^2$.

I.1.3.3 Equation régissant la génération de l'onde THz

Nous pouvons désormais établir l'équation régissant la génération de l'onde THz. Les hypothèses pour l'onde THz sont les suivantes :

- le champ électrique THz étant généralement un monocycle optique (cf. figure I.1 c)), nous ne pouvons pas utiliser l'approximation de l'enveloppe lentement variable habituellement faite dans le domaine optique ;

- nous supposons qu’il n’y a pas d’absorption ;
- nous considérons une onde polarisée linéairement, parallèlement à l’onde optique, et se propageant suivant l’axe z ;
- nous négligeons les effets de diffraction.

La polarisation non-linéaire d’ordre 2 créée par redressement optique sera notée $P_{RO}^{(2)}(\Omega, z)$ dans le domaine spectral. Le champ électrique rayonné par cette polarisation sera quant à lui noté $E_{THz}(\Omega, z)$. Au vue de ces approximations, l’équation régissant la génération de l’onde THz est la suivante :

$$\frac{\partial^2 E_{THz}(\Omega, z)}{\partial z^2} + k_{THz}^2(\Omega) E_{THz}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{\varepsilon_0 c^2} P_{RO}^{(2)}(\Omega, z), \quad (\text{I.34})$$

où $P_{RO}^{(2)}(\Omega, z)$ est donnée par la relation suivante :

$$P_{RO}^{(2)}(\Omega, z) = \frac{\varepsilon_0}{2\pi} \int \chi^{(2)}(\Omega; \omega, \Omega - \omega) E_0(\omega, z) E_0^*(\omega - \Omega, z) d\omega, \quad (\text{I.35})$$

où $\chi^{(2)}(\Omega; \omega, \Omega - \omega)$ est le tenseur de susceptibilité non-linéaire d’ordre 2. Nous pouvons faire l’hypothèse que la susceptibilité d’ordre 2 ne dépend pas de la fréquence ω dans la mesure où le milieu est très peu dispersif dans le domaine des fréquences optiques. En utilisant l’équation d’évolution de l’onde pompe établie précédemment (expression I.32), $P_{RO}^{(2)}(\Omega, z)$ peut s’écrire sous la forme :

$$P_{RO}^{(2)}(\Omega, z) = \frac{\varepsilon_0}{2\pi} \exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right) \chi^{(2)}(\Omega) \int E_0(\omega, 0) E_0^*(\omega - \Omega, 0) d\omega. \quad (\text{I.36})$$

Finalement, $P_{RO}^{(2)}(\Omega, z)$ s’écrit :

$$P_{RO}^{(2)}(\Omega, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\Omega) \exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right) C(\Omega), \quad (\text{I.37})$$

où $C(\Omega)$ représente la densité spectrale d’énergie donnée par l’expression suivante :

$$C(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int E_0(\omega, 0) E_0^*(\omega - \Omega, 0) d\omega = \int |E_0(t, 0)|^2 \exp(i\Omega t) dt. \quad (\text{I.38})$$

Ce terme tient compte de toutes les combinaisons possibles des paires de photons optiques, contenus dans l’impulsion pompe, permettant de générer un photon THz de fréquence Ω . En utilisant l’expression I.33, la densité spectrale d’énergie est donnée par la relation suivante :

$$C(\Omega) = E_0^2 \sqrt{\frac{\pi}{2\Gamma_p}} \exp\left(-\frac{\Omega^2}{8\Gamma_p}\right). \quad (\text{I.39})$$

C’est une courbe en “cloche” centrée en $\Omega = 0$ dont la largeur dépend fortement de la durée de l’impulsion incidente et donc de la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda$ de l’impulsion laser génératrice. L’efficacité de génération de fréquences THz élevées augmente avec $\Delta\lambda$ comme on

peut le voir sur la figure I.8 a).

L'expression I.34 peut désormais s'écrire sous la forme :

$$\frac{\partial^2 E_{THz}(\Omega, z)}{\partial z^2} + k_{THz}^2(\Omega) E_{THz}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right). \quad (I.40)$$

La solution de l'équation I.40 est la somme de la solution sans second membre, E_{SSM} , et d'une solution particulière E_{SP} . La solution de l'équation sans second membre est de la forme :

$$E_{SSM}(\Omega, z) = A \exp(ik_{THz}(\Omega)z) + B \exp(-ik_{THz}(\Omega)z), \quad (I.41)$$

où A et B sont des constantes d'intégration. Une solution particulière de l'expression I.40 est donnée par la formule suivante :

$$E_{SP}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \frac{1}{k_{THz}^2(\Omega) - \Omega^2/v_g^2} \exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right). \quad (I.42)$$

En utilisant le fait que l'amplitude de l'onde THz est nulle à l'entrée du cristal ($E_{THz}(\Omega, z = 0) = 0$) et qu'elle se propage dans le sens des z croissants ($B = 0$), nous obtenons :

$$E_{THz}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \frac{1}{k_{THz}^2(\Omega) - \Omega^2/v_g^2} \left[\exp\left(\frac{i\Omega z}{v_g}\right) - \exp(ik_{THz}(\Omega)z) \right]. \quad (I.43)$$

L'expression du champ électrique, dans le domaine spectral, associé à l'impulsion THz s'écrit finalement :

$$E_{THz}(\Omega, z) = iz \frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \frac{1}{k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}} e^{[i(k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g})\frac{z}{2}]} \text{sinc}\left[\Delta k \frac{z}{2}\right], \quad (I.44)$$

où $\Delta k = k_{THz}(\Omega) - \Omega/v_g$ représente le désaccord de phase.

Dans l'expression I.44, deux termes sont particulièrement importants :

– le terme $\Omega^2 \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega)$ qui traduit l'efficacité avec laquelle la polarisation non-linéaire d'ordre 2 induite à la fréquence Ω rayonne une onde THz. Il est fortement influencé par la dispersion de la susceptibilité non-linéaire $\chi^{(2)}(\Omega)$ du ZnTe dans ce domaine de fréquence, dispersion donnée par l'équation suivante [16] :

$$\chi^{(2)}(\Omega) = 2d(\Omega) = 2\chi_{eff} [1 - 0.07(1 - \Omega^2/\Omega_3^2)^{-1}] \quad (I.45)$$

avec $\chi_{eff} = 90$ pm/V et Ω_3 la pulsation du phonon transverse optique à 5.3 THz. Dans ce terme intervient également la densité spectrale d'énergie $C(\Omega)$. Comme on l'a vu précédemment, c'est une courbe en "cloche" centrée en $\Omega = 0$ dont la largeur dépend fortement de la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda$ de l'impulsion laser génératrice. L'efficacité de génération de fréquences THz élevées augmente avec $\Delta\lambda$ (cf. figure I.8 a)).

– Le terme $\text{sinc}(\Delta k \frac{z}{2})$ qui souligne l'influence du désaccord de phase entre l'onde optique et

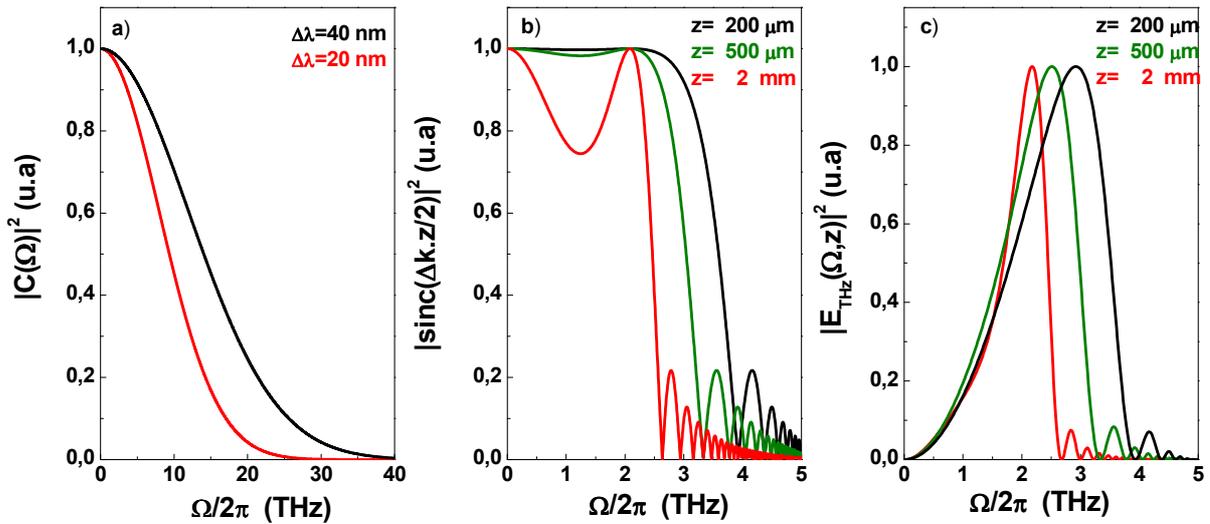


FIGURE I.8 – a) Densité spectrale d'énergie pour deux impulsions laser, limitées par transformée de Fourier, de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800$ nm et de largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda = 40$ nm (en noir) et $\Delta\lambda = 20$ nm (en rouge) respectivement. b) Evolution de $|\text{sinc}(\Delta k \frac{z}{2})|^2$ en fonction de Ω pour trois épaisseurs de cristal générateur : $z = 200 \mu\text{m}$ (en noir), $z = 500 \mu\text{m}$ (en vert) et $z = 2$ mm (en rouge). c) Spectres THz générés avec une impulsion laser de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800$ nm et de largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda = 20$ nm dans des cristaux de ZnTe d'épaisseurs différentes : $z = 200 \mu\text{m}$ (en noir), $z = 500 \mu\text{m}$ (en vert) et $z = 2$ mm (en rouge).

l'onde THz sur la génération de la fréquence THz Ω . Ce terme est maximum à la fréquence pour laquelle il y a accord de phase, soit 2.2 THz à 800 nm, et sa largeur diminue lorsque l'épaisseur z du cristal générateur augmente (cf.figure I.8 b).

La prise en compte de ces deux contributions permet d'expliquer l'allure des spectres présentés sur la figure I.8 c). Lorsque l'épaisseur z du cristal générateur augmente, ces derniers s'affinent autour de la fréquence pour laquelle il y a accord de phase.

Nous allons maintenant passer au principe de la détection d'impulsions THz par effet électro-optique.

I.2 Détection par effet électro-optique

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

I.2.1 Choix du cristal électro-optique

D'une manière générale, l'effet *EO* est un phénomène non-linéaire d'ordre 2 qui traduit l'influence d'un champ électrique de faible fréquence (typiquement des fréquences THz) sur les propriétés diélectriques d'un cristal. Le principe de la méthode de détection basée sur cet effet est le suivant : la présence d'une onde THz dans un cristal *EO* entraîne l'apparition d'une biréfringence induite qui provoque une rotation de la polarisation d'un faisceau sonde (de longueur d'onde centrale 800 nm dans notre cas) traversant le cristal, la rotation étant proportionnelle au champ THz. La mesure de cette rotation de polarisation au cours du temps permet de déterminer l'amplitude et la phase du champ électrique associé à l'impulsion THz.

Pour que la détection soit efficace, il faut utiliser un cristal présentant un fort coefficient électro-optique. Pour comparer les différents cristaux, Q. Wu et X. C. Zhang ont introduit un coefficient de mérite η défini de la manière suivante [17] :

$$\eta = \frac{2n_s^3 r_{ij}}{\sqrt{1 + \varepsilon}}, \quad (\text{I.46})$$

où n_s est l'indice de réfraction pour le faisceau sonde, r_{ij} est le coefficient électro-optique mis en jeu et ε représente la permittivité du cristal dans le domaine THz qui peut être approximée, en dehors des résonances, par sa valeur statique.

Expérimentalement, il faut superposer l'impulsion sonde et l'impulsion THz dans le cristal *EO*. La détection est d'autant plus efficace que la différence entre les vitesses de propagation de l'impulsion optique et de l'impulsion THz est relativement faible. Les cristaux présentant les coefficients *EO* les plus forts ne sont donc pas forcément les plus performants. Le tableau I.2 présente les caractéristiques des principaux cristaux pouvant être utilisés pour la détection électro-optique.

Un facteur limitatif, qui n'est pas pris en compte dans le calcul de η , est l'absorption du rayonnement THz liée à la présence de phonons dans ce domaine de fréquence. L'effet le plus marquant est sans doute pour le cristal de DAST qui présente un coefficient η très supérieur à celui des autres cristaux mais dont la présence de nombreux phonons à basse fréquence limite énormément son emploi pour la détection électro-optique [18].

Pour résumer, le cristal *EO* utilisé doit remplir les conditions suivantes :

- être transparent à la longueur d'onde de la sonde utilisée (ici 800 nm) ;
- être transparent dans le domaine THz ;
- posséder un fort coefficient de mérite η ;
- présenter un faible désaccord de vitesse de groupe, noté DVG, entre les impulsions sonde (optique) et THz.

Cristal	r_{ij} (pm/V)	n_s	ε	η (pm/V)	DVG (ps/mm)
ZnTe	$r_{41} = 4.04$ @ 633 nm	2.85 @ 800 nm	10.1	51.7	1.1
CdTe	$r_{41} = 4.5$ @ 1 μm	2.84 @ 800 nm	9.4	50.9	0.75
DAST	$r_{11} = 160$ @ 820 nm	$n_o = 2.46$ $n_e = 1.70$ @ 820 nm	8 2.9	max 633	1.22
LiTaO ₃	$r_{33} = 30.5$ $r_{13} = 8.4$ @ 633 nm	$n_o = 2.176$ $n_e = 2.180$ @ 633 nm	$\varepsilon_{1,2} = 41$ $\varepsilon_3 = 43$	max 87.2	14.1
LiNbO ₃	$r_{33} = 30.9$ $r_{51} = 32.6$ @ 633 nm	$n_o = 2.29$ $n_e = 2.20$ @ 633 nm	$\varepsilon_{1,2} = 43$ $\varepsilon_3 = 28$	max 110	14.2

TABLE I.2 – Caractéristiques des principaux cristaux électro-optiques pouvant être utilisés pour la détection EO [17]. η est le coefficient de mérite défini par Q. Wu et X. C. Zhang, le désaccord de vitesse de groupe entre les impulsions optique et THz est noté DVG.

L'étude comparative de l'efficacité de la détection d'impulsions THz par effet électro-optique dans les cristaux de ZnTe, LiTaO₃ et LiNbO₃, réalisée dans la référence [19], montre que le cristal de ZnTe remplit au mieux les conditions mentionnées précédemment. En effet, nous avons vu que la condition d'accord de phase est réalisée dans ce cristal, autour de 2.2 THz à 800 nm, et qu'il présente une très faible absorption dans le domaine 0 – 5 THz (cf. partie I.1.2). Le cristal de LiTaO₃, utilisé par Auston et *al.* dans les premières expériences de détection par effet électro-optique [3], et celui de LiNbO₃ présentent de forts coefficients de mérite mais l'importante différence de vitesse de propagation entre les impulsions optique et THz limite la longueur d'interaction entre les ondes à de faibles épaisseurs ce qui diminue fortement l'efficacité de la détection. Notre choix s'est donc porté sur le cristal de ZnTe. Dans la partie suivante, nous allons présenter la technique d'ellipsométrie qui permet la mesure de la rotation de polarisation du faisceau sonde au cours du temps.

I.2.2 Mesure du signal électro-optique par ellipsométrie

Le cristal de ZnTe étant cubique, il ne modifie pas l'état de polarisation initial du faisceau sonde. En revanche, la présence d'une onde THz dans le cristal entraîne l'apparition d'une biréfringence induite qui provoque une rotation de polarisation, proportionnelle au champ THz, du faisceau sonde. Dans cette partie, nous allons tout d'abord présenter la technique d'ellipsométrie qui permet la mesure de cette rotation de polarisation au cours du temps et donc de déterminer l'amplitude et la phase du champ électrique associé à l'impulsion THz. Ensuite, nous établirons l'expression analytique du signal électro-optique ainsi obtenu.

I.2.2.1 Présentation de la technique expérimentale

En l'absence de champ THz , la polarisation linéaire du faisceau sonde est inchangée au cours de la propagation dans le cristal de ZnTe. Une fois le cristal traversé, cet état de polarisation linéaire est converti en un état de polarisation circulaire à l'aide d'une lame quart d'onde ($\lambda/4$) orientée de telle sorte qu'il y ait un angle de 45° entre ses lignes neutres et le champ électrique associé à l'impulsion sonde. L'utilisation d'un prisme de Wollaston permet alors de séparer la composante parallèle (notée "s") de la composante perpendiculaire (notée "p") de la polarisation circulaire du faisceau sonde. Plus précisément, le prisme de Wollaston est constitué de deux prismes dont les axes optiques sont perpendiculaires. Dans le premier prisme, le faisceau incident étant normal à la face d'entrée, les composantes parallèle et perpendiculaire restent colinéaires mais "voient" deux indices différents. A l'interface entre les prismes, elles sont séparées spatialement et leurs états de polarisation en sortie du prisme sont alors linéaires et orthogonaux (cf. figure I.9). Les deux faisceaux ainsi obtenus sont ensuite imagés sur un système de deux photodiodes montées tête-bêche qui renvoie un signal ΔI , appelé signal électro-optique, qui est directement la différence d'intensité entre les deux voies. Le faisceau sonde étant polarisé circulairement, les intensités des composantes parallèle I_S et perpendiculaire I_P sont identiques, le signal en sortie des photodiodes est donc nul (cf. figure I.10 a)).

En revanche, lorsqu'une onde THz est présente dans le cristal de ZnTe, elle entraîne par effet électro-optique une rotation de la polarisation linéaire du faisceau sonde, rotation directement proportionnelle au champ électrique THz . L'angle entre le champ électrique associé à l'impulsion sonde et les lignes neutres de la lame quart d'onde n'est plus alors de 45° . Après traversée de la lame $\lambda/4$, l'état de polarisation de la sonde est donc elliptique ce qui entraîne un déséquilibre entre les intensités optiques reçues sur les deux voies de détection : ΔI est non nul et proportionnel au champ électrique de l'onde THz à un instant donné (cf. section I.2.2.2). Il est donc possible, en changeant le retard temporel entre l'impulsion THz et le faisceau sonde, de

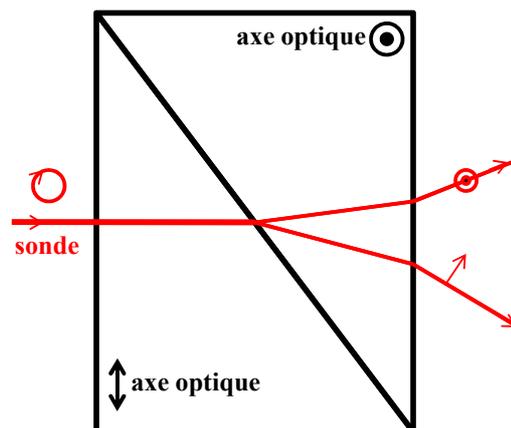


FIGURE I.9 – Prisme de Wollaston constitué de deux prismes dont les axes optiques sont perpendiculaires. A la sortie, les composante parallèle et perpendiculaire de la polarisation circulaire du faisceau sonde incident sont séparées spatialement et leurs états de polarisation sont linéaires et orthogonaux.

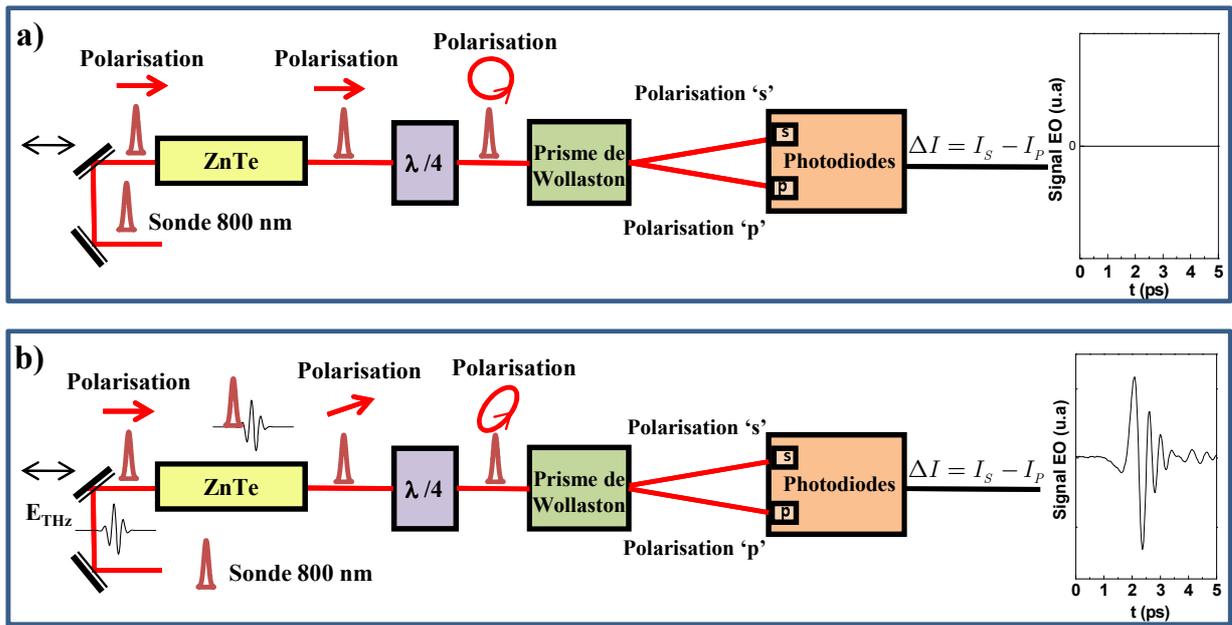


FIGURE I.10 – Mesure du signal électro-optique par ellipsométrie. a) Le signal EO est nul en l’absence d’onde THz dans le cristal de ZnTe. b) Caractérisation du champ électrique THz dans le domaine temporel en mesurant la rotation de polarisation du faisceau sonde au cours du temps.

reconstruire le champ électrique THz au cours du temps (cf. figure I.10 b)).

I.2.2.2 Configuration optimale pour la détection électro-optique

L’objectif de cette partie est de déterminer la configuration optimale pour la détection électro-optique dans le ZnTe c’est-à-dire l’angle φ entre l’axe Z du cristal et la polarisation du champ électrique \vec{E}_s associé à l’impulsion sonde, ainsi que l’angle α entre l’axe Z et la polarisation du champ électrique \vec{E}_{THz} (cf. figure I.11).

Pour cela, nous devons commencer par déterminer la biréfringence induite dans le ZnTe par l’onde THz . Le ZnTe étant isotrope, son ellipsoïde des indices est le suivant :

$$\frac{X^2}{n^2} + \frac{Y^2}{n^2} + \frac{Z^2}{n^2} = 1. \quad (I.47)$$

Pour alléger l’écriture, l’indice de réfraction dans le domaine optique est noté n (au lieu de $n_{opt}(\omega)$). La présence du champ électrique THz d’amplitude E_{THz} entraîne une modification de cet ellipsoïde des indices qui s’écrit désormais de la manière suivante :

$$\frac{X^2}{n^2} + \frac{Y^2}{n^2} + \frac{Z^2}{n^2} + 2E_{THz,X}r_{41}YZ + 2E_{THz,Y}r_{41}XZ + 2E_{THz,Z}r_{41}XY = 1, \quad (I.48)$$

où r_{41} est le seul élément non nul du tenseur électro-optique et $E_{THz,X}$, $E_{THz,Y}$ et $E_{THz,Z}$ sont les

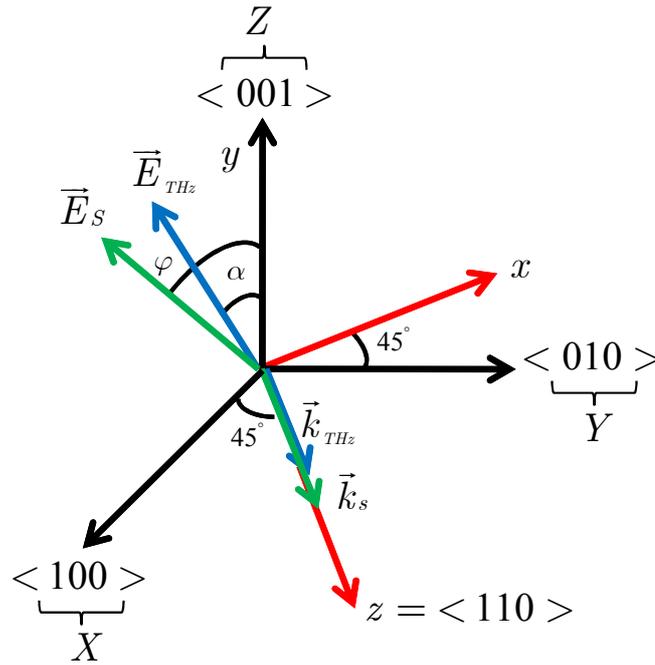


FIGURE I.11 – La taille de coupe du ZnTe est choisie suivant l'axe $\langle 110 \rangle$. Le repère cristallin R_c du ZnTe est représenté en noir par les axes X, Y, Z . Le repère du laboratoire R_L défini par les axes x, y, z est représenté en rouge. L'impulsion sonde et l'impulsion THz se propagent suivant l'axe z . L'angle entre l'axe Z et la polarisation du champ électrique \vec{E}_s associé à l'impulsion sonde est noté φ . L'angle entre l'axe Z et la polarisation du champ électrique \vec{E}_{THz} est noté α .

composantes du champ électrique THz suivant les axes X, Y et Z respectivement :

$$\begin{cases} E_{THz,X} = \frac{1}{\sqrt{2}} E_{THz} \sin \alpha \\ E_{THz,Y} = -\frac{1}{\sqrt{2}} E_{THz} \sin \alpha \\ E_{THz,Z} = E_{THz} \cos \alpha \end{cases} \quad (I.49)$$

Il faut maintenant trouver un nouveau repère dans lequel l'ellipsoïde des indices modifié s'écrit simplement comme l'expression I.47. Pour cela, Planken et *al.* ont proposé d'effectuer deux transformations des coordonnées [20].

– La première transformation est une rotation de 45° autour de l'axe Z . Le nouveau repère $(X'Y'Z')$ est lié au repère cristallographique (XYZ) par les relations de passage suivantes :

$$\begin{cases} X = \frac{1}{\sqrt{2}} X' - \frac{1}{\sqrt{2}} Y' \\ Y = \frac{1}{\sqrt{2}} X' + \frac{1}{\sqrt{2}} Y' \\ Z = Z' \end{cases} \quad (I.50)$$

soit

$$\begin{cases} X \rightarrow z \equiv X' \\ Y \rightarrow x \equiv Y' \\ Z \equiv y \equiv Z' \end{cases} . \quad (\text{I.51})$$

En utilisant le fait que $E_{THz,Y} = -E_{THz,X}$, l'expression I.48 s'écrit alors dans $(X'Y'Z')$:

$$X'^2 \left(\frac{1}{n^2} + E_{THz,Z} r_{41} \right) + Y'^2 \left(\frac{1}{n^2} - E_{THz,Z} r_{41} \right) + \frac{Z'^2}{n^2} + 2\sqrt{2} E_{THz,X} r_{41} Y' Z' = 1 . \quad (\text{I.52})$$

Après cette transformation, il ne reste plus qu'un seul terme mixte $Y'Z'$.

– La seconde transformation est une rotation du repère $(X'Y'Z')$ autour de l'axe X' d'un angle β qui est une fonction de l'angle α . Soit $(X''Y''Z'')$ le nouveau repère lié au repère $(X'Y'Z')$ par les relations de passage suivantes :

$$\begin{cases} X' = X'' \\ Y' = Y'' \cos \beta - Z'' \sin \beta \\ Z' = Y'' \sin \beta + Z'' \cos \beta \end{cases} . \quad (\text{I.53})$$

Dans ce repère, l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\begin{aligned} 1 = & X''^2 \left(\frac{1}{n^2} + E_{THz} r_{41} \cos \alpha \right) + Y''^2 \left(\frac{1}{n^2} - E_{THz} r_{41} [\cos \alpha \sin^2 \beta + \cos(\alpha + 2\beta)] \right) \\ & + Z''^2 \left(\frac{1}{n^2} - E_{THz} r_{41} [\cos \alpha \cos^2 \beta - \cos(\alpha + 2\beta)] \right) , \end{aligned} \quad (\text{I.54})$$

où β s'exprime en fonction de α de la manière suivante :

$$\begin{cases} 2\beta = -\arctan(2 \tan \alpha) - m\pi \\ \text{si } (m - \frac{1}{2})\pi < \alpha \leq (m + \frac{1}{2})\pi \end{cases} , \quad (\text{I.55})$$

où m est un entier naturel.

Nous pouvons déduire de l'expression I.54 les indices de réfraction, suivant les axes Y'' et Z'' , vus par une impulsion sonde se propageant suivant l'axe X'' , en supposant un champ électrique THz relativement faible [20] :

$$\begin{cases} n_{Y''}(\alpha) \simeq n + \frac{n^3}{2} E_{THz} r_{41} [\cos \alpha \sin^2 \beta + \cos(\alpha + 2\beta)] \\ n_{Z''}(\alpha) \simeq n + \frac{n^3}{2} E_{THz} r_{41} [\cos \alpha \cos^2 \beta - \cos(\alpha + 2\beta)] \end{cases} . \quad (\text{I.56})$$

La présence du champ électrique THz dans le cristal entraîne donc l'apparition d'une biréfringence induite ($n_{Y''}(\alpha) \neq n_{Z''}(\alpha)$). L'impulsion sonde, initialement polarisée linéairement, sera polarisée elliptiquement en sortie du cristal électro-optique. La différence d'intensité entre les deux axes de l'ellipse est une fonction des angles α et φ et sera notée $\Delta I(\alpha, \varphi)$. Son expression est la suivante [20] :

$$\Delta I(\alpha, \varphi) = I_S \sin[2(\varphi - \beta)] \sin \left[\frac{\omega}{c} (n_{Y''}(\alpha) - n_{Z''}(\alpha)) L \right] , \quad (\text{I.57})$$

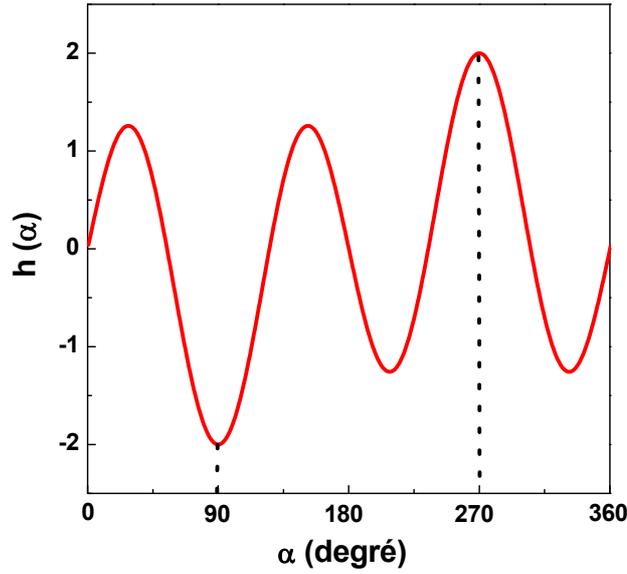


FIGURE I.12 – Représentation graphique de la fonction $h(\alpha) = \cos \alpha \sin 2\alpha + 2 \sin \alpha \cos 2\alpha$ en fonction de α exprimé en degré. Les deux extrema principaux sont obtenus pour $\alpha = 90^\circ$ et $\alpha = 270^\circ$.

où L représente la longueur du cristal, I_S l'intensité de l'impulsion sonde et ω sa pulsation. En supposant que la différence d'indice est relativement faible, le deuxième sinus dans l'équation I.57 peut être remplacé par son argument. A l'aide des expressions I.55 et I.56, nous obtenons finalement [20] :

$$\Delta I(\alpha, \varphi) = I_S \frac{\omega n^3 E_{THz} r_{41} L}{2c} (\cos \alpha \sin 2\varphi + 2 \sin \alpha \cos 2\varphi). \quad (\text{I.58})$$

Une analyse de l'expression I.58 montre qu'il faut que $\varphi = \alpha$ ou que $\varphi = \alpha + 90^\circ$ pour que ΔI atteigne sa valeur maximale. Nous avons choisi $\varphi = \alpha$. ΔI n'est plus alors qu'une fonction de α :

$$\Delta I(\alpha) = I_S \frac{\omega n^3 E_{THz} r_{41} L}{2c} h(\alpha), \quad (\text{I.59})$$

avec $h(\alpha) = \cos \alpha \sin 2\alpha + 2 \sin \alpha \cos 2\alpha$. Nous avons représenté sur la figure I.12 l'évolution de la fonction $h(\alpha)$ avec α . Cette fonction présente deux maxima principaux, obtenus pour $\alpha = 90^\circ$ et $\alpha = 270^\circ$. Pour ces deux valeurs, la différence d'intensité entre les deux axes de l'ellipse est maximale. La configuration que nous avons retenue pour la détection électro-optique dans le cristal de ZnTe correspond à : $\varphi = \alpha = 90^\circ$.^a

^a. Il y a quelques années, DuVillaret et *al.* ont développé une méthode permettant de déterminer la configuration optimale pour la détection électro-optique dans divers cristaux indépendamment de leur groupe de symétrie cristallographique [21].

I.2.2.3 Mise en équation du signal électro-optique

Dans cette partie, nous allons établir l'expression du signal électro-optique, obtenu à l'aide du dispositif expérimental d'ellipsométrie, pour des impulsions THz peu intenses. Les lecteurs désireux d'en savoir plus sur la détection électro-optique d'impulsions THz intenses peuvent consulter la référence [22].

Après traversée de la lame quart d'onde, l'expression dans le repère du laboratoire du champ électrique associé à l'impulsion sonde est la suivante (cf. figure I.13) :

$$\begin{cases} E_{Sx}(\omega) = \frac{1}{2}E_S(\omega, 0) e^{i(k(\omega)z + \varphi_x(\omega))} + c.c \\ E_{Sy}(\omega) = \frac{1}{2}E_S(\omega, 0) e^{i(k(\omega)z + \varphi_y(\omega) + \frac{\pi}{2})} + c.c \end{cases}, \quad (I.60)$$

où $E_S(\omega, 0)$ représente l'amplitude spectrale du champ électrique de l'impulsion sonde à l'entrée du cristal et $\varphi_x(\omega)$ et $\varphi_y(\omega)$ représentent le déphasage des composantes $E_{Sx}(\omega)$ et $E_{Sy}(\omega)$ du champ électrique. Nous supposons qu'il n'y a pas d'absorption à 800 nm (que ce soit dans le cristal de ZnTe, la lame quart d'onde ou le prisme de Wollaston). Dans ce cas, le vecteur d'onde associé à l'impulsion sonde est réel et noté $k(\omega)$. Le prisme de Wollaston permet de séparer les composantes parallèle "s" et perpendiculaire "p" du faisceau sonde. En posant $\varphi(\omega) = \varphi_y(\omega) - \varphi_x(\omega)$ et en supposant que $\varphi(\omega)$ est relativement faible, nous obtenons :

$$\begin{cases} E_{Ss}(\omega) = E_S(\omega, 0) [1 + \varphi(\omega)/2] \\ E_{Sp}(\omega) = E_S(\omega, 0) [1 - \varphi(\omega)/2] \end{cases}. \quad (I.61)$$

Les intensités I_s et I_p reçues sur les deux photodiodes s'expriment de la manière suivante :

$$\begin{cases} I_s = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c \int_0^{+\infty} |E_{Ss}(\omega)|^2 d\omega \\ I_p = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c \int_0^{+\infty} |E_{Sp}(\omega)|^2 d\omega \end{cases}, \quad (I.62)$$

le signal électro-optique étant quant à lui donné par :

$$S(\tau) = \Delta I = I_s - I_p = \varepsilon_0 c \int_0^{+\infty} |E_S(\omega, 0)|^2 \varphi(\omega) d\omega, \quad (I.63)$$

où τ représente le délai entre les impulsions optique et THz . En utilisant l'expression de $\varphi(\omega)$ calculée dans la référence [23] et en repoussant la borne d'intégration inférieure vers moins l'infini, nous obtenons :

$$S(\tau) = \frac{\pi\varepsilon_0}{c} \int_{-\infty}^{+\infty} E_{THz}(\Omega, 0) g(\Omega) \exp(-i\Omega\tau) d\Omega, \quad (I.64)$$

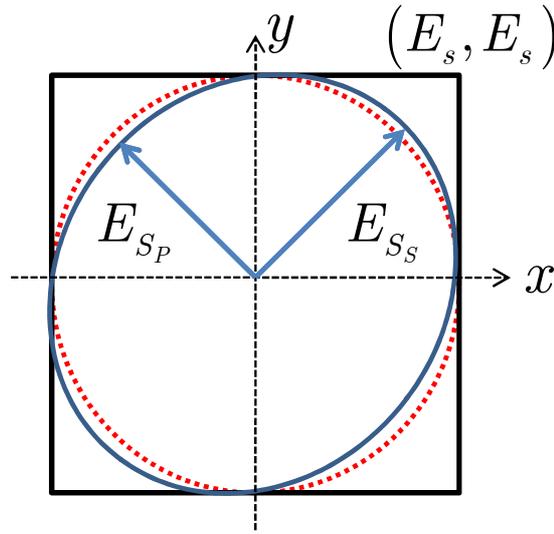


FIGURE I.13 – Etat de polarisation du faisceau sonde après traversée de la lame quart d'onde : circulaire en l'absence d'onde THz (en pointillés) et elliptique lorsqu'il y a recouvrement avec l'onde THz dans le cristal de ZnTe (en trait plein).

où $E_{THz}(\Omega, 0)$ représente l'amplitude du champ électrique THz à l'entrée du cristal électro-optique et $g(\Omega)$ est donné par :

$$g(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\omega^2}{k(\omega)} \chi^{(2)}(\Omega) \left[\frac{\exp(i\Delta k L) - 1}{i\Delta k} \right] E_S^*(\omega, 0) E_S(\omega - \Omega, 0) d\omega, \quad (\text{I.65})$$

où L représente la longueur du cristal électro-optique et Δk est le désaccord de phase présenté dans la partie I.1.1. Nous avons supposé que le cristal de ZnTe était très peu dispersif dans le domaine des fréquences optiques et que la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 ne dépendait que de Ω . En supposant que la largeur spectrale de l'impulsion sonde est très inférieure à sa fréquence centrale ω_0 , l'expression de $g(\Omega)$ se simplifie pour donner :

$$g(\Omega) = \frac{\omega_0^2}{k(\omega_0)} \chi^{(2)}(\Omega) \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \times C_S(\Omega), \quad (\text{I.66})$$

avec $C_S(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_S^*(\omega, 0) E_S(\omega - \Omega, 0) d\omega$ la densité spectrale d'énergie de l'impulsion sonde à l'entrée du cristal électro-optique. L'expression I.64 s'écrit finalement [23] :

$$S(\tau) = \frac{2\pi^2 \varepsilon_0}{c} \frac{\omega_0^2}{k(\omega_0)} \int_{-\infty}^{+\infty} E_{THz}(\Omega, 0) f(\Omega) \exp(-i\Omega\tau) d\Omega, \quad (\text{I.67})$$

où la fonction $f(\Omega)$ est donnée par :

$$f(\Omega) = C_S(\Omega) \chi^{(2)}(\Omega) \left[\frac{\exp(i\Delta k L) - 1}{i\Delta k} \right], \quad (\text{I.68})$$

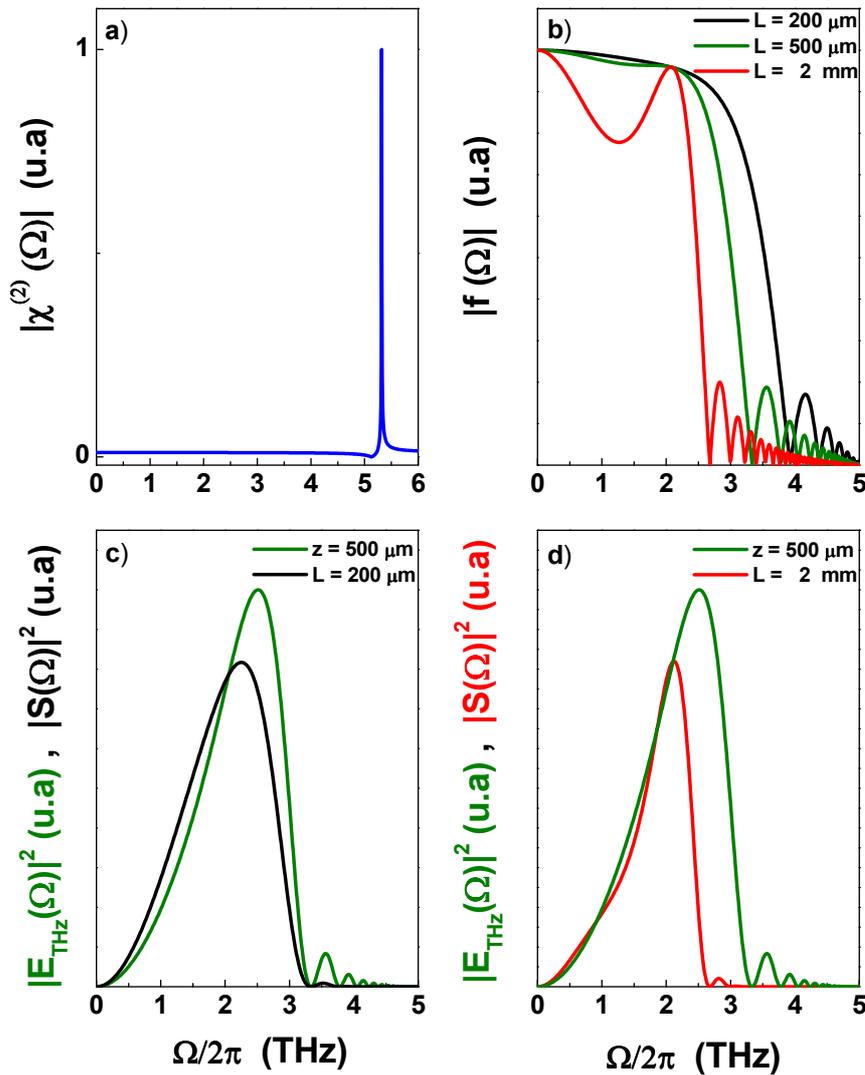


FIGURE I.14 – a) Valeur absolue de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 $\chi^{(2)}(\Omega)$ du ZnTe dans le domaine 0 – 6 THz. b) Représentation du module de la fonction $f(\Omega)$ pour trois épaisseurs de cristal électro-optique différentes : $L = 200 \mu\text{m}$ (en noir), $L = 500 \mu\text{m}$ (en vert) et $L = 2 \text{ mm}$ (en rouge). c) Spectres THz généré dans un cristal de ZnTe de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur (en vert) et détecté dans un ZnTe de $200 \mu\text{m}$ (en noir). Les impulsions pompe et sonde sont centrées à 800 nm. Pour $L < z$, le spectre généré est parfaitement restitué. d) Spectres THz généré dans un cristal de ZnTe d'épaisseur $z = 500 \mu\text{m}$ (en vert) et détecté dans un ZnTe de 2 mm (en rouge). Pour $L > z$, le cristal électro-optique agit comme un filtre passe bas.

le spectre THz détecté étant donné par $|S(\Omega)|^2$, avec $S(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\tau) \exp(i\Omega\tau) d\tau$.

L'expression du signal électro-optique dans le domaine temporel (expression I.67) n'est pas simplement la transformée de Fourier du champ électrique THz , $E_{THz}(\Omega, 0)$, incident sur le cristal électro-optique. La présence de la fonction $f(\Omega)$ peut entraîner des distorsions entre le signal

THz généré et celui réellement mesuré. En effet, $f(\Omega)$ est le produit de trois termes qui dépendent de la fréquence Ω et qui agissent comme des filtres spectraux sur $E_{THz}(\Omega, 0)$ [23, 10].

- Le premier terme $C_S(\Omega)$ est la densité spectrale d'énergie de l'impulsion sonde. C'est une courbe en "cloche" centrée en $\Omega = 0$ dont la largeur spectrale est très supérieure à celle du spectre THz à mesurer (cf. figure I.8 a) et c)). L'effet de ce filtre est donc négligeable dans notre cas.

- Le deuxième terme $\chi^{(2)}(\Omega)$ est la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 du ZnTe dont la dispersion est principalement due à la présence du phonon optique à 5.3 THz (cf. expression I.45) [16]. Ce terme est relativement plat sur l'intervalle spectral 0 – 4 THz (cf. figure I.14 a)). Son effet est donc également négligeable dans notre cas.

- Le dernier terme est quant à lui lié au désaccord de phase Δk . Il se comporte comme un filtre passe-bande centré à la fréquence d'accord de phase et dont la largeur diminue lorsque l'épaisseur du cristal électro-optique augmente. Pour limiter son impact, il est donc préférable de travailler avec des cristaux de faible épaisseur. Q. Wu et X. C. Zhang ont notamment mesuré des spectres allant jusqu'à 37 THz à l'aide d'un cristal détecteur de ZnTe de 30 μm d'épaisseur [24]. Dans notre cas, nous souhaitons mesurer des spectres allant jusqu'à 4 THz, nous pouvons donc utiliser des cristaux plus épais (de 200 μm à 2 mm) augmentant ainsi la valeur du signal obtenu. Il faut cependant veiller à utiliser un cristal détecteur de ZnTe d'épaisseur inférieure ou égale à celle du ZnTe émetteur afin de détecter au mieux le spectre THz généré. Les figures I.14 c) et d) représentent le spectre THz généré dans un cristal d'épaisseur $z = 500 \mu\text{m}$ et détecté successivement dans deux cristaux d'épaisseurs différentes, $L = 200 \mu\text{m}$ et $L = 2 \text{ mm}$. Nous constatons en effet que pour $L < z$ le spectre généré est parfaitement restitué (cf. I.14 c)) alors que ce n'est plus vrai pour $L > z$ (cf. I.14 d)). L'évolution de la fonction $f(\Omega)$ est, dans notre cas, principalement gouvernée par ce dernier terme lié au désaccord de phase ((cf. I.14 b)).

Dans certaines conditions expérimentales, la détection d'impulsions THz par effet électro-optique peut donc introduire des distorsions entre le spectre THz généré et celui réellement mesuré [23, 25]. Nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental de génération et de détection d'impulsions THz développé au cours de cette thèse.

I.3 Présentation du dispositif expérimental

Cette partie est consacrée à la description du dispositif expérimental de génération et de détection d'impulsions THz. Nous apporterons quelques explications sur la procédure d'alignement du dispositif. Les premiers résultats obtenus avec celui-ci seront discutés et confrontés aux résultats théoriques obtenus à l'aide d'un programme de simulation développé au cours de cette thèse.

I.3.1 Le dispositif expérimental

Le dispositif expérimental développé au cours de cette thèse est représenté sur la figure I.15. Une lame séparatrice permet de séparer l'impulsion laser femtoseconde initiale, centrée à 800 nm, en deux impulsions appelées respectivement impulsion pompe et impulsion sonde. L'impulsion pompe est utilisée pour la génération de l'impulsion THz par redressement optique

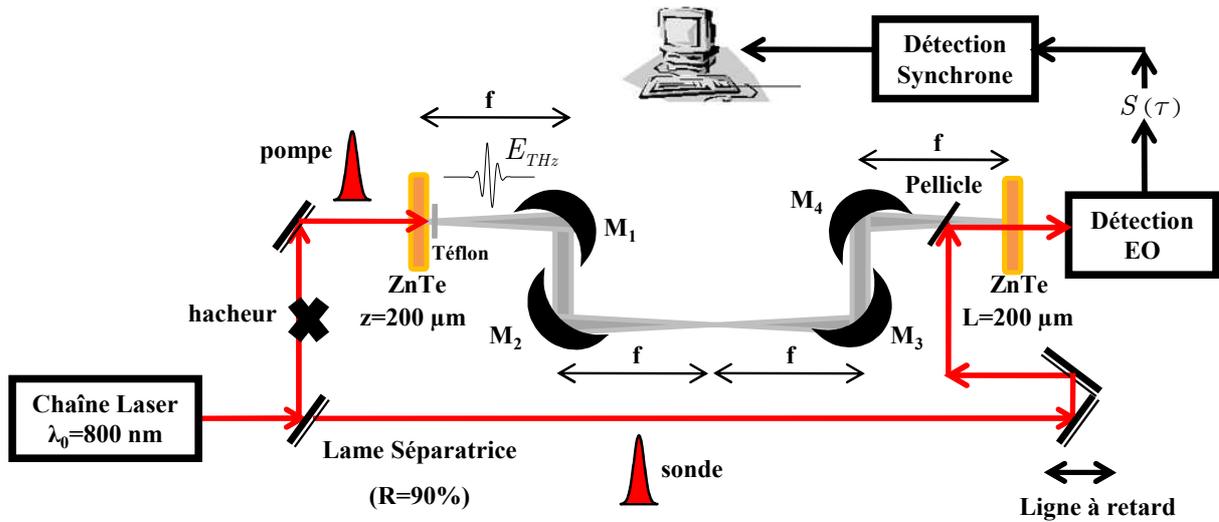


FIGURE I.15 – Dispositif expérimental de génération et de détection d’impulsions THz. Nous utilisons quatre miroirs paraboliques hors d’axe (M_1 , M_2 , M_3 et M_4) de focale $f = 15$ cm pour collimater et focaliser le faisceau THz. On introduit un hacheur mécanique sur le trajet du faisceau pompe pour moduler le signal THz à une fréquence de 320 Hz. Le signal électro-optique se retrouve donc modulé à cette fréquence et nous utilisons une détection synchrone pour extraire ce signal du bruit extérieur.

dans un cristal de ZnTe de $200 \mu\text{m}$ d’épaisseur. L’impulsion sonde, peu intense, permet la détection de l’impulsion THz par effet électro-optique dans un deuxième cristal de ZnTe identique au précédent. Après le cristal générateur nous introduisons un morceau de téflon, transparent dans le domaine THz, afin de filtrer le 800 nm résiduel. Le faisceau THz ainsi généré étant divergeant, il ne pourra pas être utilisé tel quel pour de futures expériences de spectroscopie THz. Nous utilisons quatre miroirs paraboliques hors d’axe (M_1 , M_2 , M_3 et M_4) de distance focale $f = 15$ cm pour collimater et focaliser le faisceau THz. Le cristal générateur est placé dans le plan focal objet de M_1 afin d’obtenir un faisceau collimaté après réflexion sur ce dernier, un second miroir parabolique hors d’axe (M_2) est ensuite utilisé pour focaliser le faisceau THz. Le cristal détecteur de ZnTe peut être placé dans le plan focal image de M_2 pour détecter l’impulsion THz [9]. Cependant, afin de pouvoir utiliser notre dispositif expérimental pour effectuer de la spectroscopie stationnaire THz dans le domaine temporel (appelée spectroscopie TDS), nous avons utilisé un second couple de miroirs paraboliques hors d’axe (M_3 et M_4) identiques aux précédents. La distance séparant M_2 et M_3 est choisie égale à $2f$ (soit 30 cm) pour obtenir un faisceau collimaté après réflexion sur M_3 , M_4 permettant ensuite de focaliser le faisceau. Pour étudier un échantillon en spectroscopie TDS, ce dernier est placé à mi-distance entre M_2 et M_3 , à l’endroit où le faisceau THz est focalisé [2]. Le cristal détecteur de ZnTe est quant à lui placé dans le plan focal de M_4 . Les ondes THz et optique doivent se propager de façon colinéaire dans le cristal détecteur afin d’optimiser leur recouvrement et donc l’efficacité de la détection. Pour cela, nous utilisons une pellicule qui réfléchit une partie du faisceau sonde et qui est transparente dans le domaine THz. Le principe de la détection par effet électro-optique a été présentée de manière exhaustive dans la partie précédente (cf. figure I.10). Une ligne à retard est placée sur le trajet du faisceau sonde

afin de modifier l'instant de recouvrement entre les ondes optique et THz et ainsi pouvoir reconstruire l'évolution du champ électrique THz au cours du temps. Pour améliorer le rapport signal sur bruit, on introduit un hacheur mécanique sur le trajet du faisceau pompe pour moduler le signal THz à une fréquence de 320 Hz. Le signal électro-optique se retrouve donc modulé à cette fréquence et nous utilisons une détection synchrone (Stanford Research Systems SR 830) pour extraire ce signal du bruit extérieur.

I.3.2 Procédure d'alignement du dispositif

Dans cette partie, nous allons apporter quelques explications sur la procédure d'alignement du dispositif expérimental. Tout d'abord, il faut orienter correctement les deux cristaux de ZnTe servant à la génération et à la détection de l'impulsion THz. Pour cela, les supports des cristaux doivent permettre de régler finement leur orientation. Nous avons vu précédemment que l'efficacité de la génération est maximale lorsque la direction de polarisation du champ électrique associé à l'impulsion pompe fait un angle $\theta = 54.74^\circ$ avec l'axe Z du repère cristallographique (cf. figure I.6). De même, la détection électro-optique est optimale lorsque l'angle α entre le champ électrique THz et l'axe Z est de 90° . Pour déterminer expérimentalement l'axe Z , nous utilisons le processus de génération de seconde harmonique dans le cristal de ZnTe. En effet, si la direction de polarisation du champ électrique associé à l'impulsion laser n'est pas parallèle à l'axe Z , il y a génération de seconde harmonique car $\chi_{XYZ}^{(2)}$ est le seul élément non nul du tenseur de susceptibilité d'ordre 2. Cependant, l'efficacité de ce processus de génération est relativement faible car il n'y a pas d'accord de phase. La démarche à suivre est présentée sur la figure I.16. En sortie de la chaîne laser, on introduit un polariseur afin que l'impulsion laser incidente sur le cristal de ZnTe soit parfaitement polarisée horizontalement. Après le cristal, on introduit un filtre pour éliminer le 800 nm résiduel. Ensuite, on focalise le faisceau à 400 nm sur un écran à l'aide d'une lentille convergente de courte focale (typiquement 10 cm). Il reste ensuite à tourner le cristal de ZnTe autour de sa normale jusqu'à observer sur l'écran l'extinction totale du 400 nm. Une fois l'axe Z repéré, il suffit alors de tourner le cristal de l'angle souhaité (55° pour le cristal générateur et 90° pour le cristal détecteur).

Passons maintenant au réglage des quatre miroirs paraboliques hors d'axe. L'alignement des miroirs est réalisé à l'aide du faisceau pompe à 800 nm servant à la génération de l'impulsion THz. Nous supposons en effet que les trajets des faisceaux pompe et THz sont identiques. Les différentes étapes à suivre sont résumées sur la figure I.17. Les angles d'incidence sur les miroirs

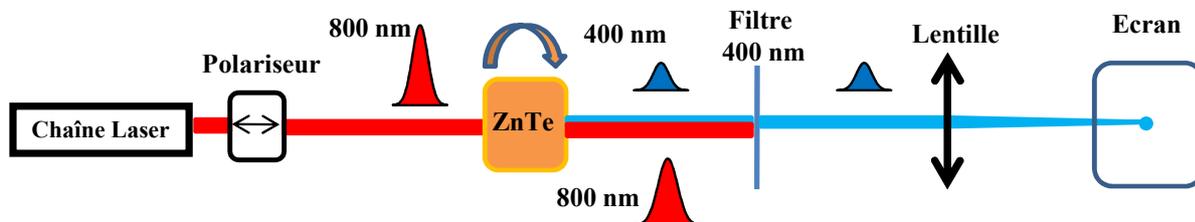


FIGURE I.16 – Détermination expérimentale de l'axe cristallographique $Z = \langle 001 \rangle$ du cristal de ZnTe.

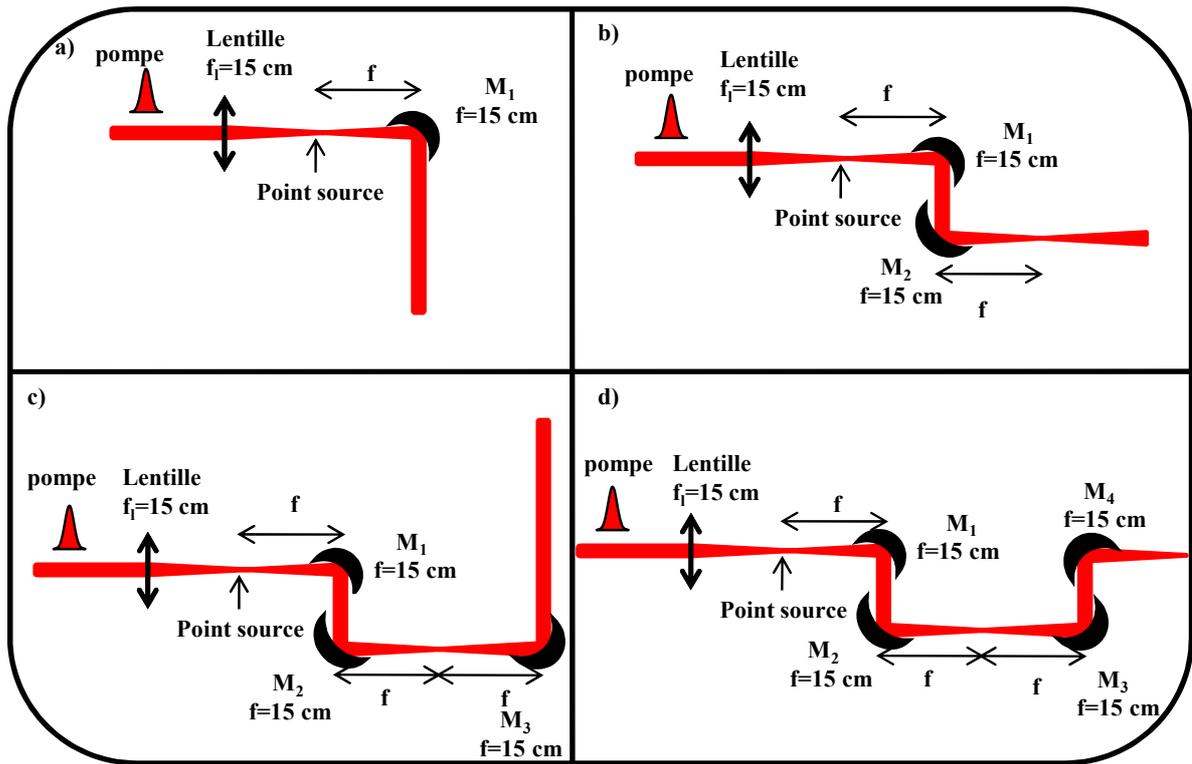


FIGURE I.17 – Procédure d'alignement des quatre miroirs paraboliques hors d'axe à l'aide du faisceau pompe à 800 nm. a) On utilise une lentille de courte focale pour créer un point source. M_1 est ensuite positionné à $f = 15$ cm du point source de façon à ce que le faisceau soit collimaté après réflexion sur le miroir. b) Réglage de M_2 . La distance M_1 - M_2 étant libre, nous avons choisi 15 cm afin de limiter l'encombrement du dispositif c) Réglage de M_3 . La procédure d'alignement de M_3 est identique à celle adoptée pour M_1 . d) Réglage de M_4 . La procédure d'alignement à suivre est identique à celle adoptée pour M_2 .

doivent tous être de 45° . Tout d'abord, comme le faisceau THz se propage en divergeant depuis le cristal de ZnTe générateur, nous focalisons le faisceau pompe à l'aide d'une lentille de courte focale ($f_l = 15$ cm) afin d'être dans les mêmes conditions. Le point source ainsi créé est le point de départ de notre alignement. Sa position doit être repérée avec précision car le cristal générateur de ZnTe devra être inséré à cet endroit. Le miroir parabolique M_1 est positionné à $f = 15$ cm du point source de façon à ce que le faisceau soit collimaté après réflexion sur le miroir. Pour cela, il faut vérifier en champ lointain que le faisceau garde une taille constante (cf. figure I.17 a)). Le réglage de M_2 ne pose pas de grandes difficultés. La distance M_1 - M_2 étant libre, nous avons choisi 15 cm afin de limiter l'encombrement du dispositif (cf. figure I.17 b)). Le faisceau dans le plan focal image de M_2 doit avoir une taille identique à celle du point source initial et constitue le nouveau point source pour le réglage du second couple de miroirs M_3 - M_4 . La démarche à suivre pour ce réglage est identique à celle adoptée pour le premier couple M_1 - M_2 (cf. figure I.17 c) et d)). Le faisceau est finalement focalisé dans le plan focal image de M_4 . Comme pour le cristal générateur, cette position doit être repérée avec précision car le cristal détecteur de ZnTe devra

être inséré à cet endroit. Une fois ces étapes accomplies, il ne faut plus toucher au réglage des miroirs.

La prochaine étape consiste à équilibrer les chemins optiques parcourus par les impulsions sonde et THz à l'endroit où sera placé le cristal détecteur. Un premier réglage est effectué à la règle en essayant d'équilibrer au mieux les deux trajets. Ensuite, il faut déterminer le délai nul entre l'impulsion sonde et l'impulsion pompe servant à la génération du THz. Pour cela, nous superposons spatialement les deux faisceaux dans un cristal de BBO de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, placé dans le plan focal image de M_4 , et nous cherchons le signal de sommation de fréquence en déplaçant la ligne à retard (cf. figure I.18). Une fois que l'on a trouvé ce signal, nous savons approximativement où se situe le délai nul entre les impulsions sonde et THz.

Nous pouvons désormais positionner les deux cristaux de ZnTe :

- le cristal générateur au niveau du point source.
- le cristal détecteur dans le plan focal de M_4 , à la place du cristal de BBO.

Le réglage des miroirs paraboliques étant réalisés avec le faisceau pompe, il faut positionner très précisément les deux cristaux afin que le faisceau THz suive le trajet du faisceau pompe et soit focalisé dans le cristal détecteur. Ensuite, il faut placer le pellicle de manière à ce que l'impulsion THz et l'impulsion sonde se propagent de façon colinéaire. Nous pouvons désormais enlever la lentille et placer un filtre en téflon derrière le cristal générateur pour éliminer le 800 nm résiduel. Une photographie de notre dispositif est notamment présentée sur la figure I.19. Enfin, pour chercher le délai nul entre les impulsions sonde et THz il faut mesurer l'évolution du signal EO au cours du temps. Le réglage de la détection électro-optique ne pose pas de grandes difficultés, il faut cependant veiller à bien équilibrer les deux voies de la détection en l'absence de l'onde THz à l'aide du prisme de Wollaston.

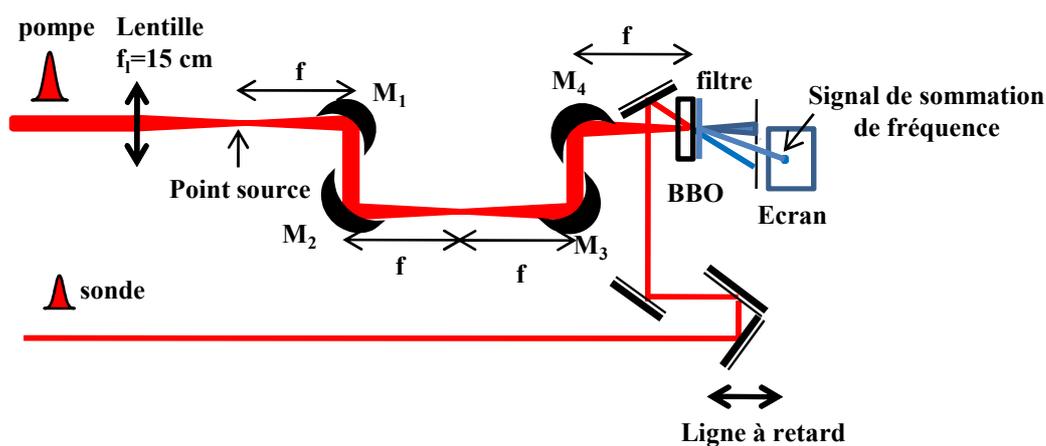


FIGURE I.18 – Recherche du délai nul entre les impulsions pompe et sonde par sommation de fréquence dans un cristal de BBO.

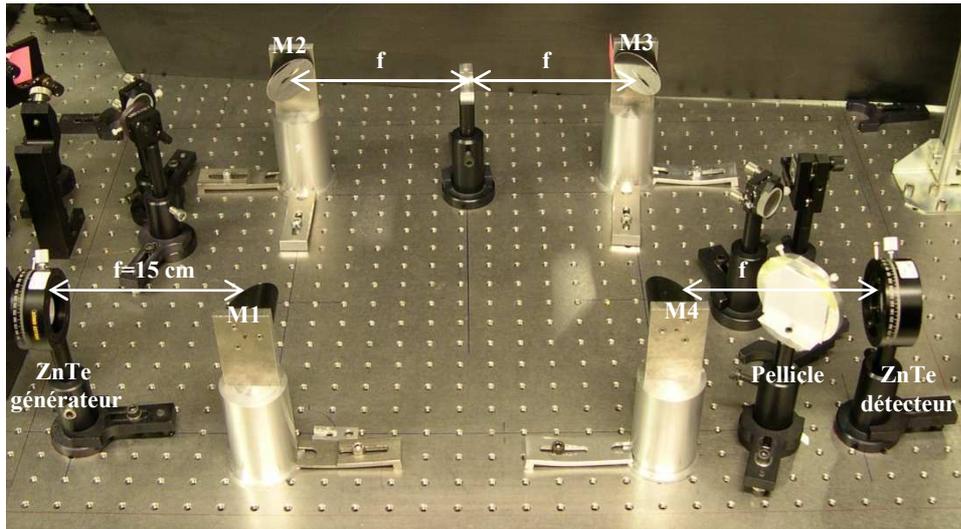


FIGURE I.19 – Photographie du dispositif expérimental.

I.3.3 Premiers résultats

Les résultats présentés dans cette partie ont été obtenus sur la plateforme COLA (Centre Optique et Laser d'Aquitaine) du CPMOH. Il s'agit d'une plateforme de lasers fournissant des impulsions ultracourtes accordables quasi-continûment dans une très large gamme spectrale allant du domaine *UV* aux ondes *THz*. Le système laser utilisé est une chaîne amplifiée fabriquée par la société Coherent. L'amplification des impulsions provenant d'un oscillateur femtoseconde titane-saphir est réalisée à l'aide d'un amplificateur régénératif suivi d'un amplificateur simple-passage. Les caractéristiques des impulsions de sortie sont les suivantes :

- longueur d'onde centrale : $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$.
- largeur spectrale à mi-hauteur : $\Delta\lambda = 22 \text{ nm}$.
- durée d'impulsion (largeur à mi-hauteur en intensité) : $\tau_p = 50 \text{ fs}$.
- taux de répétition : 1 kHz.
- énergie par impulsion : $2 \times 5 \text{ mJ}$.

Le faisceau de sortie est ensuite divisé en plusieurs parties afin de pouvoir réaliser différents types d'expériences comme des expériences de spectroscopie femtoseconde visible et infrarouge appliquées à la photo-physique de complexes moléculaires et à l'étude de transitions de phase photo-induites ou des expériences de spectroscopie dans le domaine *THz*. Pour la génération d'impulsions *THz*, l'énergie par impulsion au niveau du cristal générateur est de l'ordre $100 \mu\text{J}$ et le diamètre du faisceau laser est de 4.5 mm ce qui correspond à une intensité I_p de l'ordre de 12 GW/cm^2 .

Les premiers résultats obtenus sont présentés sur la figure I.20. Nous observons sur le spectre *THz* de nombreuses raies d'absorption liées à la présence de vapeur d'eau dans l'air. Les oscillations qui apparaissent dans le domaine temporel après le passage du signal *THz* proviennent de la désexcitation des molécules d'eau, ce qui est communément appelé l'émission libre cohérente dans le noir (free induction decay ou FID en anglais) [9, 26]. Pour diminuer le pourcentage de vapeur d'eau dans l'air et donc l'absorption de l'onde *THz*, nous avons placé une

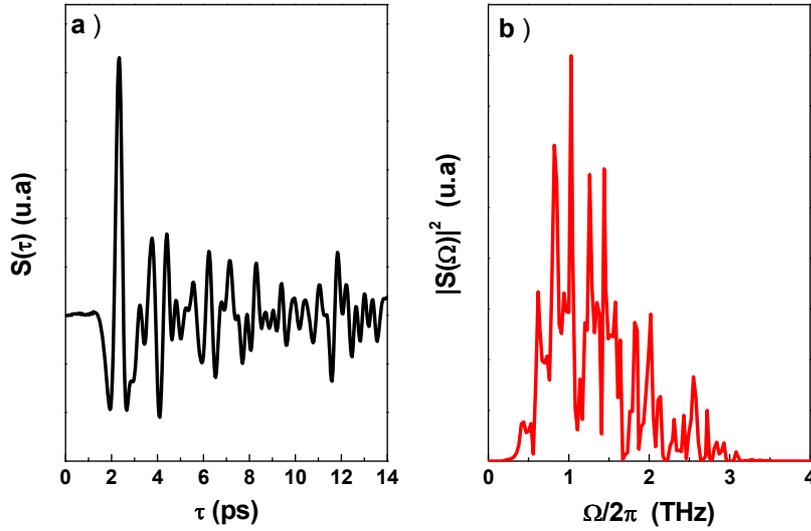


FIGURE I.20 – Premiers résultats expérimentaux obtenus en présence de vapeur d'eau dans l'air. a) Signal électro-optique dans le domaine temporel. b) Spectre THz associé. Nous observons la présence de nombreuses raies d'absorption liées à la vapeur d'eau.

caisse en plexiglas remplie d'azote gazeux autour du dispositif expérimental.

Les premiers résultats obtenus avec la caisse remplie d'azote sont présentés sur les figures I.21 a) et b). Nous constatons une très nette diminution du FID de la vapeur d'eau. Nous observons également une réplique du signal THz environ 5 ps après ce dernier. La réplique provient des réflexions multiples aux interfaces des cristaux de ZnTe détecteur et générateur qui peuvent chacun être assimilés à une cavité Fabry-Pérot (cf. figure I.22). Considérons une onde plane incidente sur un dioptre entre deux milieux, notés 1 et 2, d'indice complexe \tilde{n}_1 et \tilde{n}_2 respectivement. Nous introduisons \tilde{r}_{12} et \tilde{t}_{12} les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude au niveau du dioptre. En incidence normale, ces coefficients sont reliés aux indices complexes de la manière suivante [27] :

$$\tilde{r}_{12} = \frac{\tilde{n}_1 - \tilde{n}_2}{\tilde{n}_1 + \tilde{n}_2} \text{ et } \tilde{t}_{12} = \frac{2\tilde{n}_1}{\tilde{n}_1 + \tilde{n}_2}. \quad (\text{I.69})$$

Les facteurs de réflexion et de transmission en énergie à l'interface, notés respectivement R_{12} et T_{12} , sont donnés par :

$$R_{12} = |\tilde{r}_{12}|^2 \text{ et } T_{12} = \frac{n_2}{n_1} |\tilde{t}_{12}|^2 = 1 - R_{12}. \quad (\text{I.70})$$

Le cristal générateur de ZnTe est constitué de deux dioptres séparés d'une distance z : un dioptre air-cristal et un dioptre cristal-air (cf. figure I.22). L'indice de l'air est considéré égal à 1 et l'indice complexe du ZnTe est noté $\tilde{n}(\Omega)$. L'amplitude complexe du champ électrique THz généré est notée $E_{THz}(\Omega)$. L'expression de l'amplitude complexe de l'onde THz à la sortie du cristal générateur, notée E_{THz}^{gen} , est la suivante :

$$E_{THz}^{gen}(\Omega) = E_{THz}(\Omega) \tilde{t}_{21}(\Omega) \exp\left(i \frac{\phi_{gen}(\Omega)}{2}\right) \frac{1}{1 - R_{21}(\Omega) \exp(i\phi_{gen}(\Omega))}, \quad (\text{I.71})$$

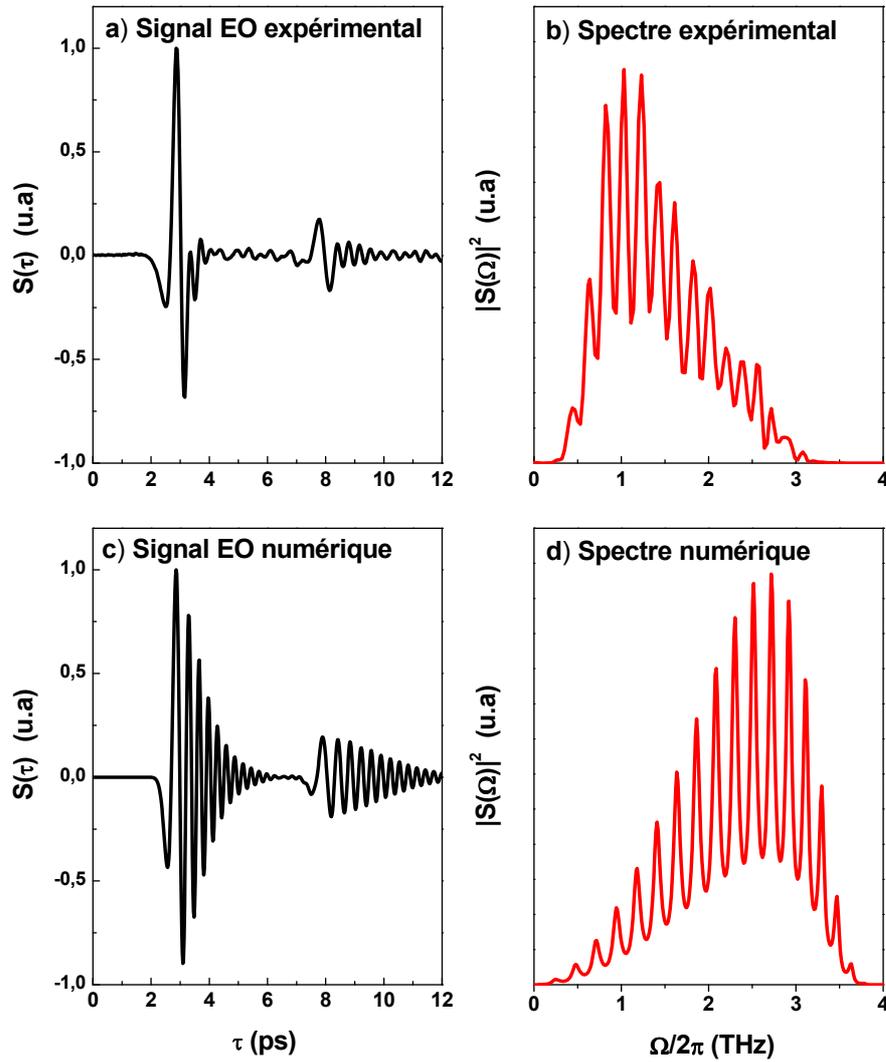


FIGURE I.21 – Comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus avec le programme de simulation. Une caisse en plexiglas remplie d’azote gazeux est placée autour du dispositif expérimental afin de diminuer l’absorption du THz par la vapeur d’eau présente dans l’air. Les répliques du signal THz sont prises en compte. a) Signal électro-optique expérimental. b) Spectre THz expérimental. c) Signal électro-optique numérique. d) Spectre THz numérique.

où $\tilde{t}_{21}(\Omega)$ et $R_{21}(\Omega)$ représentent respectivement le coefficient de transmission en amplitude et le coefficient de réflexion en énergie à l’interface cristal-air donnés par :

$$\tilde{t}_{21}(\Omega) = \frac{2\tilde{n}(\Omega)}{\tilde{n}(\Omega) + 1} \text{ et } R_{21}(\Omega) = \left(\frac{\tilde{n}(\Omega) - 1}{\tilde{n}(\Omega) + 1} \right)^2, \quad (\text{I.72})$$

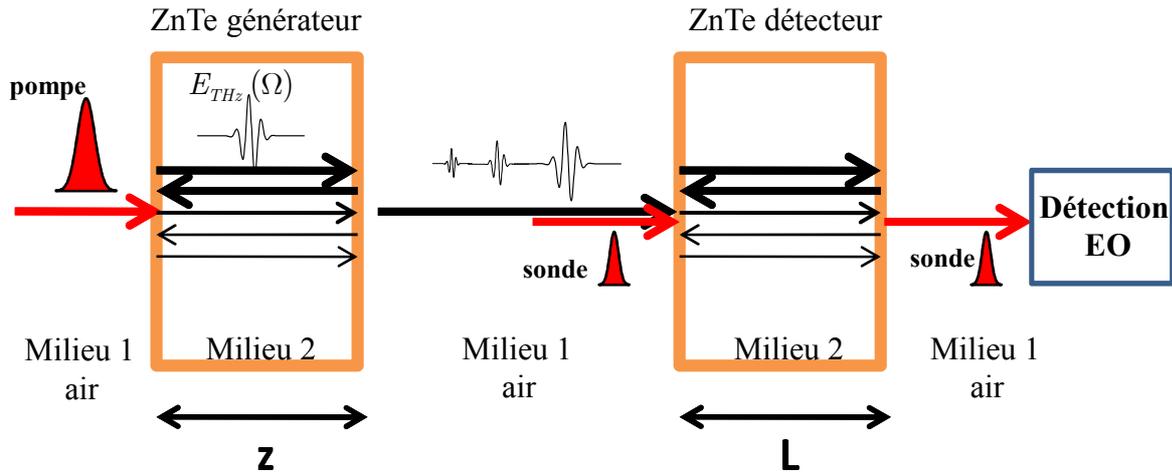


FIGURE I.22 – Répliques du signal THz provenant des réflexions multiples aux interfaces des cristaux de ZnTe générateur et détecteur.

et $\phi_{gen}(\Omega)$ est la phase accumulée par l'onde THz lors d'un aller-retour dans le cristal donnée par :

$$\phi_{gen}(\Omega) = \frac{\Omega}{c} \tilde{n}(\Omega) 2z. \quad (I.73)$$

De même, le cristal détecteur est constitué de deux dioptries séparés d'une distance L (cf. figure I.22). L'amplitude complexe E_{THz}^{det} de l'onde THz "vue" par l'impulsion sonde dans le cristal détecteur est la suivante :

$$E_{THz}^{det}(\Omega) = E_{THz}^{gen}(\Omega) \tilde{t}_{12}(\Omega) \exp\left(i \frac{\phi_{det}(\Omega)}{2}\right) \frac{1}{1 - R_{21}(\Omega) \exp(i\phi_{det}(\Omega))}, \quad (I.74)$$

où $\tilde{t}_{12}(\Omega)$ et $R_{21}(\Omega)$ représentent respectivement le coefficient de transmission en amplitude à l'interface air-cristal et le coefficient de réflexion en énergie à l'interface cristal-air donnés par :

$$\tilde{t}_{12}(\Omega) = \frac{2}{\tilde{n}(\Omega) + 1} \text{ et } R_{21}(\Omega) = \left(\frac{\tilde{n}(\Omega) - 1}{\tilde{n}(\Omega) + 1} \right)^2, \quad (I.75)$$

et $\phi_{det}(\Omega)$ est la phase accumulée par l'onde THz lors d'un aller-retour dans le cristal donnée par :

$$\phi_{det}(\Omega) = \frac{\Omega}{c} \tilde{n}(\Omega) 2L. \quad (I.76)$$

Le spectre THz expérimental présente des franges provenant des interférences entre le signal principal et sa réplique (cf. figure I.21 b)). Pour valider ces résultats, nous avons développé un programme de simulation qui prend en compte la génération par redressement optique, la détection par effet électro-optique et l'effet Fabry-Pérot lié aux réflexions multiples sur les interfaces.

Nous avons utilisé les expressions I.44 et I.67 pour décrire respectivement le champ électrique THz généré, $E_{THz}(\Omega, z)$, et les effets liés à la détection électro-optique. Pour prendre en compte l'effet Fabry-Pérot, nous avons inséré l'expression I.74 dans notre programme de simulation. Ce dernier nous indique alors la présence d'une réplique 5 ps environ après le signal principal en accord avec les résultats expérimentaux (cf. figure I.21 a) et c)). Cependant, nous observons un important désaccord entre les spectres théoriques et expérimentaux (cf. figure I.21 b) et d)). Pour éliminer les franges d'interférences dans le spectre, nous avons uniquement effectué la transformée de Fourier du signal principal (cf. figure I.21 a) et b)). Nous constatons que le spectre théorique est centré autour de 2.5 THz alors que le spectre expérimental est plutôt centré autour de 1 THz (cf. figure I.23 b) et d)). Le chapitre suivant sera consacré à ce désaccord entre théorie et expérience. Nous verrons que l'allure du spectre THz dépend fortement de l'intensité de l'impulsion laser génératrice et que la prise en compte du processus d'absorption à deux photons dans le cristal nous permettra d'interpréter les résultats expérimentaux.

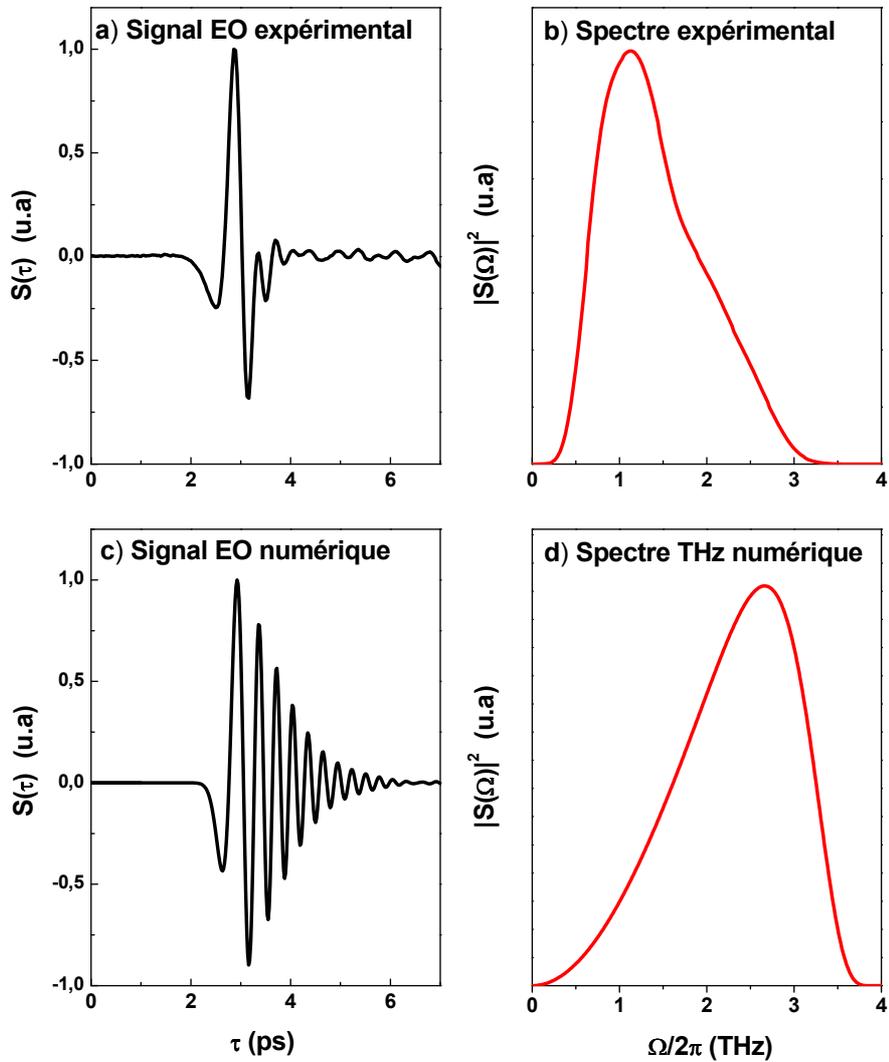


FIGURE I.23 – Comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus avec le programme de simulation lorsque les répliques du signal THz ne sont pas prises en compte : a) Signal électro-optique expérimental. b) Spectre THz expérimental. c) Signal électro-optique numérique. d) Spectre THz numérique.

Bibliographie

- [1] K. Reimann, "Table-top sources of ultrashort THz pulses," *Reports on Progress in Physics* **70**, 1597-1632 (2007).
- [2] J. I. Coutaz et al, *Optoélectronique térahertz*, (EDP Sciences, 2008).
- [3] 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**(16), 1555-58 (1984).
- [4] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer, J. B. Stark, Q. Wu, X. C. Zhang and J. F. Federici, "Coherent terahertz radiation detection : Direct comparison between free-space electro-optic sampling and antenna detection ," *Applied Physics letters* **73**(4), 444-46 (1998).
- [5] S. G. Park, M. R. Melloch and A. M. Weiner, "Comparison of terahertz waveforms measured by electro-optic and photoconductive sampling," *Applied Physics letters* **73**(22), 3184-86 (1998).
- [6] S. Kono, M. Tani and K. Sakai, "Ultrabroadband photoconductive detection : Comparison with free-space electro-optic sampling," *Applied Physics letters* **79**(7), 898-900 (2001).
- [7] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward and G. Weinreich, "Optical rectification," *Physical Review Letters* **9**(11), 446-48 (1962).
- [8] P. N. Butcher and D. Cotter, *The elements of nonlinear optics*, (Cambridge University Press, Cambridge 1990).
- [9] A. Nahata, A. S. Weling and T. F. Heinz, "A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling," *Applied Physics Letters* **69**(16), 2321-23 (1996).
- [10] G. Gallot, J. Zhang, R. W. McGowan, T. I. Jeon and D. Grischkowsky "Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation," *Applied Physics Letters* **74**(23), 3450-52 (1999).
- [11] J. J. Carey, "Near-field effects of terahertz pulses," Thèse, Université de Strathclyde (2002).
- [12] T. Hattori, Y. Homma, A. Mitsuishi and M. Tacke, "Indices of refraction of ZnS, ZnSe, ZnTe, CdS, and CdTe in the far infrared," *Optics Communications* **7**(3), 229-32 (1973).
- [13] D. T. F. Marple, "Refractive index of ZnSe, ZnTe, and CdTe," *Journal of Applied Physics* **35**(3), 539-42 (1964).
- [14] J. P. Caumes, L. Videau, C. Rouyer and E. Freysz, "Kerr-like nonlinearity induced via terahertz generation and the electro-optical effect in zinc blende crystals," *Physical Review Letters* **89**(4), 047401 1-4 (2002).
- [15] Z. Tian, C. Wang, Q. Xing, J. Gu, Y. Li, M. He, L. Chai, Q. Wang and W. Zhang "Quantitative analysis of kerr nonlinearity and kerr-like nonlinearity induced via terahertz generation in ZnTe," *Applied Physics Letters* **92**(041106), 1-3 (2008).
- [16] J. K. Wahlstrand and R. Merlin "Cherenkov radiation emitted by ultrafast laser pulses and the generation of coherent polaritons," *Physical Review B* **68**(054301), 1-12 (2003).

- [17] Q. Wu and X. C. Zhang "Ultrafast electro-optic field sensors," *Applied Physics Letters* **68**(12), 1604-06 (1996).
- [18] M. Walther, K. Jensby, S. R. Keiding, H. Takahashi and H. Ito "Far-infrared properties of DAST," *Optics Letters* **25**(12), 911-13 (2000).
- [19] C. Winnewisser, P. U. Jepsen, M. Schall, V. Schyja and H. Helm "Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃, LiNbO₃ and ZnTe," *Applied Physics letters* **70**(23), 3069-71 (1997).
- [20] P. C. M. Planken, H. K. Nienhuys, H. J. Bakker and T. Wenckebach "Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe," *Journal of the Optical Society of America B* **18**(3), 313-17 (2001).
- [21] L. Duvillaret, S. Rialland and J. L. Coutaz "Electro-optic sensors for electric field measurements. II. Choice of the crystals and complete optimization of their orientation," *Journal of the Optical Society of America B* **19**(11), 2704-15 (2002).
- [22] S. P. Jamison "The electro-optic effect for intense terahertz pulses," *Applied Physics B* **91**, 241-47 (2008).
- [23] G. Gallot and D. Grischkowsky "Electro-optic detection of terahertz radiation," *Journal of the Optical Society of America B* **16**(8), 1204-12 (1999).
- [24] Q. Wu and X. C. Zhang "Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses ," *Applied Physics Letters* **71**(10), 1285-86 (1997).
- [25] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu and X. C. Zhang "Distortion of terahertz pulses in electro-optic sampling," *Journal of the Optical Society of America B* **15**(6), 1795-1801 (1998).
- [26] B. Cagnac and J. P. Faroux, *LASERS : interaction lumière-atome*, (EDP Sciences, 2002).
- [27] J. P. Pérez, R. Carles and R. Fleckinger, *Electromagnétisme : Fondements et applications*, (Masson, 1996).

Chapitre II

REDRESSEMENT OPTIQUE D'IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES INTENSES

Le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes est une technique couramment utilisée pour générer des impulsions THz [1]. Elle est en effet relativement simple à mettre en œuvre dans un cristal de ZnTe qui remplit au mieux les conditions nécessaires à une bonne efficacité du processus de conversion de fréquence (transparent dans le domaine THz , forte susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, permet la réalisation de la condition d'accord de phase). Cependant, cette technique présente un inconvénient majeur lorsqu'on souhaite augmenter l'intensité laser incidente pour accroître l'énergie de l'onde THz générée : des effets non-linéaires dans le cristal limitent fortement l'efficacité de la génération de l'onde THz . Par exemple, certaines études ont clairement mis en évidence une saturation du processus de génération, due à l'absorption à deux photons, à relativement forte intensité [2, 3, 4, 5].

Dans ce chapitre, nous allons étudier l'influence, en fonction de l'intensité laser incidente, de ce phénomène non-linéaire sur le spectre et l'énergie de l'onde THz générée, ceci pour différentes épaisseurs du cristal de ZnTe. Nous verrons en particulier que le spectre se rétrécit et se décale vers les basses fréquences lorsque l'intensité augmente. Pour interpréter ces observations, nous étudierons l'effet des porteurs libres créés par absorption à deux photons sur l'indice complexe du ZnTe et donc sur la génération et la propagation de l'onde THz . Nous verrons que la compétition entre d'un côté la génération de l'onde THz par redressement optique et de l'autre la déplétion de l'onde pompe et la création de porteurs conduit à une évolution surprenante de l'énergie THz en fonction de l'intensité laser incidente suivant l'épaisseur du cristal utilisé. Ces études permettent de mieux clarifier la diversité des spectres THz rencontrés dans la littérature pour le cristal ZnTe [5, 6, 7, 8].

II.1 Mise en évidence de l'influence de l'intensité laser sur le redressement optique

Nous avons établi à la section I.1.3.3 que le champ électrique $E_{THz}(\Omega, z)$ généré par redressement optique dans un cristal de ZnTe d'épaisseur z était donné par :

$$E_{THz}(\Omega, z) = iz \frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \frac{1}{k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}} e^{i(k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}) \frac{z}{2}} \text{sinc} \left[\Delta k \frac{z}{2} \right]. \quad (\text{II.1})$$

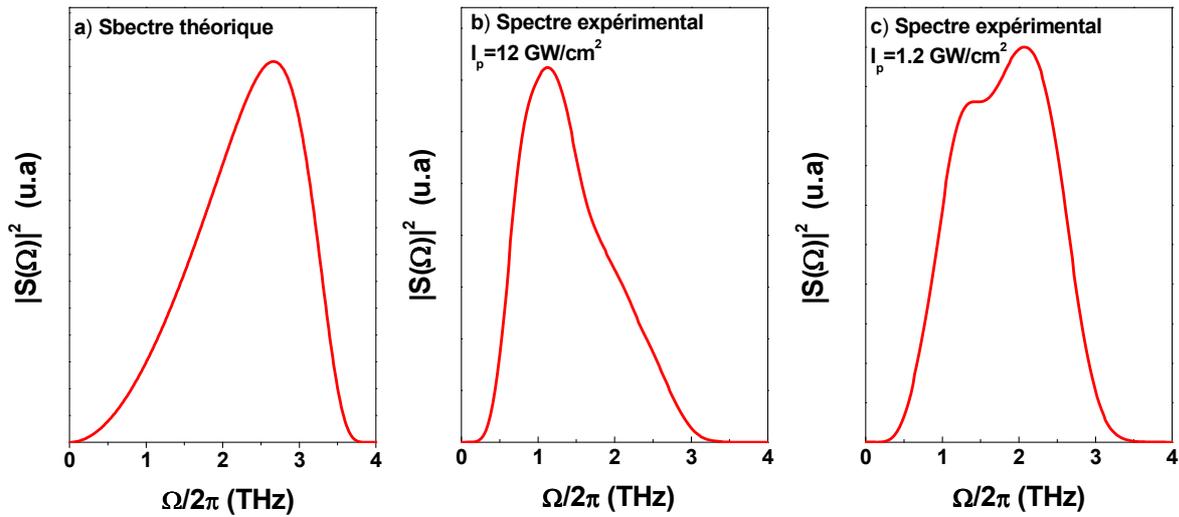


FIGURE II.1 – Spectres THz générés et détectés dans des cristaux de ZnTe d'épaisseur $z = L = 200 \mu\text{m}$: a) Spectre théorique obtenu pour $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. b) Spectre expérimental pour $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$ et c) spectre expérimental pour $I_p = 1.2 \text{ GW/cm}^2$.

Dans cette expression, c'est le terme $\text{sinc}(\Delta k \frac{z}{2})$ qui fixe la longueur d'onde à laquelle est centré le spectre THz (2.5 THz pour une onde optique à 800 nm se propageant dans le ZnTe). Cette équation a été utilisée pour déterminer le spectre théorique attendu lors de nos expériences. Par exemple, les figures II.1 a) et b) représentent les spectres, théorique et expérimental, générés et détectés dans des cristaux de ZnTe d'épaisseur $z = L = 200 \mu\text{m}$ pour une intensité de pompe de l'ordre de $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. Nous observons un important désaccord entre la théorie et l'expérience. Le spectre théorique est centré autour de 2.5 THz, en accord avec la condition d'accord de phase, tandis que le spectre expérimental est centré à plus basse fréquence, autour de 1 THz. L'expression II.1 semble donc ne pas décrire correctement la génération de l'onde THz pour de fortes valeurs de I_p . Cependant, cette équation a été établie en faisant certaines hypothèses (pas de déplétion de l'onde pompe, pas d'absorption pour les ondes optique et THz ... cf. section I.1.3.3), hypothèses qui ne sont sûrement plus vérifiées expérimentalement. Ceci est clairement mis en évidence sur la figure II.1 c) qui représente le spectre THz généré avec une intensité laser de l'ordre de 1.2 GW/cm^2 . Ce dernier est centré autour de 2 THz et son "allure" est plus proche du spectre théorique. L'allure du spectre THz généré dépend donc de I_p , dépendance qui n'est pas prise en compte par l'expression II.1. Dans la partie suivante, nous allons étudier de manière plus systématique, et pour différentes épaisseurs de cristaux générateurs, l'évolution du spectre THz avec l'intensité laser incidente.

II.2 Evolution du spectre THz avec l'intensité laser incidente

Cette partie est consacrée à l'étude de l'évolution du spectre THz en fonction de l'intensité laser incidente. Le dispositif expérimental est identique à celui présenté à la section I.3. Le diamètre du faisceau laser sur le cristal générateur est gardé constant (de l'ordre de 4.5 mm) tandis que l'on fait varier l'énergie incidente, c'est-à-dire I_p , à l'aide d'un filtre neutre. On mesure alors par effet électro-optique le champ électrique THz généré pour chaque valeur de I_p . Cette étude est menée pour différentes épaisseurs de cristal générateur, mais en conservant pour chaque mesure le même cristal de ZnTe détecteur d'épaisseur $L = 200 \mu\text{m}$.

II.2.1 Cristal générateur d'épaisseur $z = 200 \mu\text{m}$

La figure II.2 (colonne de gauche) représente l'évolution du champ électrique THz généré dans un cristal de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour quatre valeurs de l'intensité laser incidente I_p . Lorsque I_p augmente, nous observons d'une part une diminution progressive de l'amplitude des oscillations après le "lobe" principal et d'autre part une diminution du rapport d'intensité entre le signal principal et sa réplique (pour rappel cf. figure I.22). En effet, à faible intensité ($I_p = 0.12 \text{ GW/cm}^2$) la réplique correspond à environ 35 % de l'intensité du signal principal alors qu'à forte intensité ($I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$) elle ne correspond plus qu'à 17 % de ce signal. Notons que dans la configuration particulière où $z = L$, la réplique observée est la superposition des répliques provenant des cristaux générateur et détecteur. Il est donc impossible de savoir si ces deux répliques sont atténuées globalement ou si l'une est plus affectée que l'autre. Si on s'intéresse maintenant au spectre THz associé au signal principal (figure II.2 colonne de droite), on constate que pour une faible valeur de $I_p (= 0.12 \text{ GW/cm}^2)$, ce dernier est centré vers 2 THz en accord avec les prédictions théoriques. Par contre, lorsque I_p augmente, nous observons progressivement un décalage du spectre vers les basses fréquences, ce dernier étant finalement centré autour de 1 THz pour $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. Nous constatons également qu'au delà de $I_p = 7.4 \text{ GW/cm}^2$, l'allure du spectre reste pratiquement inchangée ce qui suggère l'existence d'un phénomène de saturation. Nous allons maintenant procéder à la même série de mesures pour un cristal générateur plus épais.

II.2.2 Cristaux générateurs d'épaisseur $z = 500 \mu\text{m}$ et $z = 1 \text{ mm}$

La figure II.3 (colonne de gauche) représente l'évolution du champ électrique THz généré dans un cristal de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour les quatre valeurs de l'intensité laser incidente I_p choisies précédemment. Comme pour le cristal de $200 \mu\text{m}$, nous observons une diminution progressive des oscillations après le "lobe" principal lorsque I_p augmente. L'épaisseur du cristal détecteur étant inchangée, les répliques provenant du générateur et du détecteur sont désormais séparées temporellement. En effet, la réplique liée au détecteur est située environ 5 ps après le signal principal, tandis que celle provenant du générateur est située environ 11 ps après ce dernier (cf. figure II.3 a)). Nous pouvons donc étudier séparément leur évolution en fonction de l'intensité laser. Nous constatons que lorsque I_p augmente, le rapport d'amplitude entre la ré-

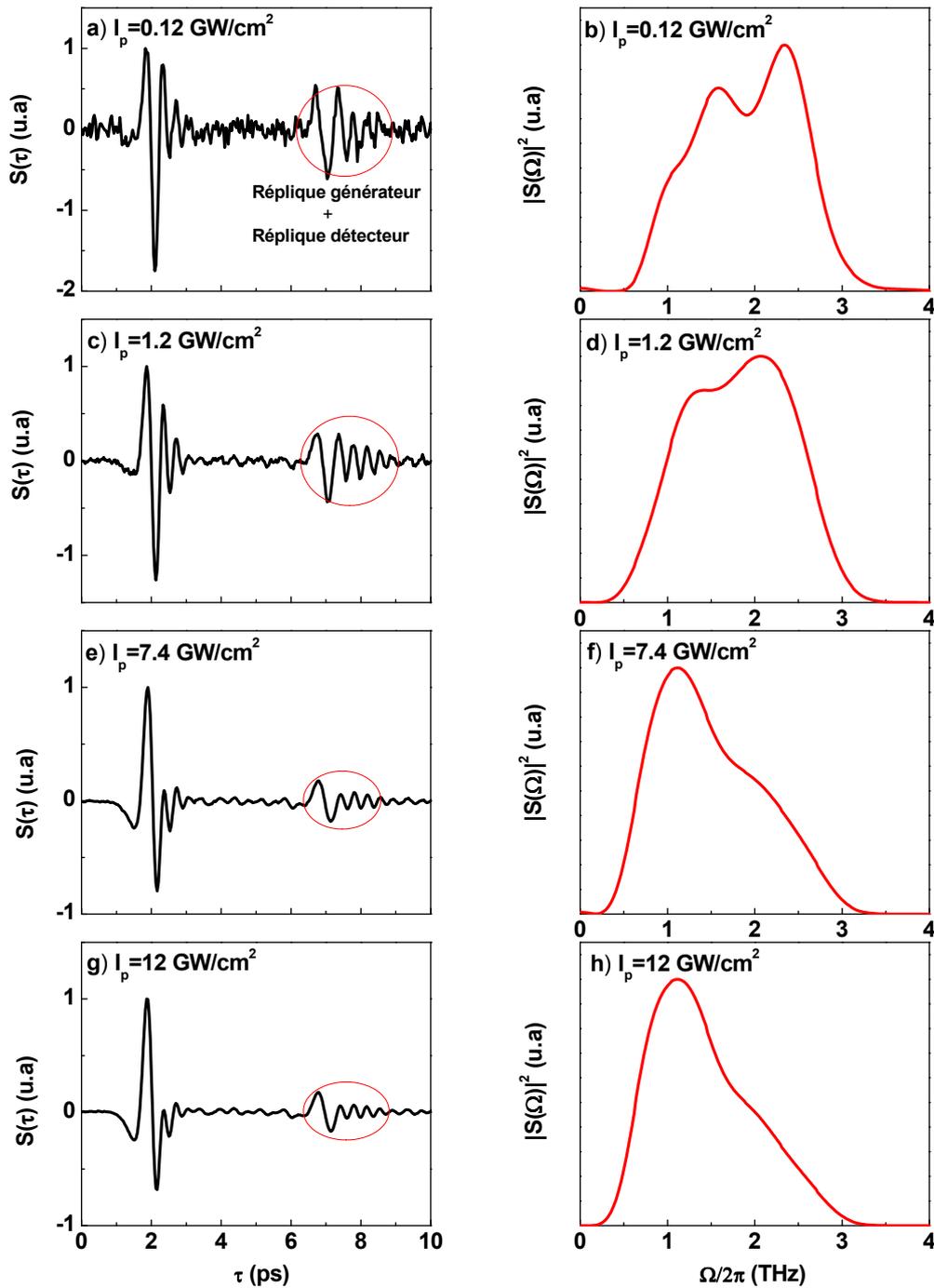


FIGURE II.2 – Colonne de gauche : Champ électrique THz généré dans un cristal de ZnTe de $200 \mu m$ d'épaisseur pour différentes intensités I_p de l'impulsion laser génératrice et détecté dans un cristal d'épaisseur valant $200 \mu m$. a) $I_p = 0.12 \text{ GW/cm}^2$. c) $I_p = 1.2 \text{ GW/cm}^2$. e) $I_p = 7.4 \text{ GW/cm}^2$. g) $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. Colonne de droite : Spectre THz associé au signal principal.

plique provenant du détecteur et le signal principal reste inchangé (de l'ordre de 18 %) alors que dans un même temps, la réplique liée au générateur disparaît complètement laissant apparaître la deuxième réplique provenant du détecteur située 10 ps environ après le signal principal. Nous pouvons supposer qu'il s'est passé la même chose dans le cristal de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur lors de l'expérience précédente, ce qui permet d'expliquer l'évolution du rapport d'intensité entre la réplique et le signal principal lorsque I_p augmente (diminution de 50 %). Ces observations indiquent donc que la réplique liée au cristal générateur est totalement absorbée lors de sa propagation dans ce dernier (un aller-retour). En ce qui concerne le spectre THz associé au signal principal (figure II.3 colonne de droite), son évolution avec l'intensité laser incidente est identique à celle observée pour le cristal de $200 \mu\text{m}$, c'est-à-dire un décalage progressif vers les basses fréquences lorsque I_p augmente et l'apparition d'une saturation pour des valeurs de I_p supérieures à $7.4 \text{ GW}/\text{cm}^2$. La seule différence observée concerne le support du spectre qui est plus étroit pour le cristal de $500 \mu\text{m}$, ce qui provient du fait que la largeur du terme $\text{sinc}(\Delta k \frac{z}{2})$ diminue lorsque l'épaisseur z du cristal générateur augmente (cf. figure I.8).

Pour compléter cette étude, nous avons réalisé la même série de mesures pour un cristal générateur de 1 mm d'épaisseur. La figure II.4 représente l'évolution du champ électrique THz (colonne de gauche) et du spectre associé au signal principal (colonne de droite) généré dans ce cristal pour quatre valeurs de l'intensité laser incidente I_p . Nous observons le même comportement que pour les cristaux plus fins à savoir un décalage du spectre THz vers les basses fréquences lorsque I_p augmente.

II.2.3 Bilan

Nous pouvons dresser un premier bilan de ces séries de mesures. Nous venons de mettre en évidence pour différentes épaisseurs du cristal générateur :

- une évolution anormale du spectre THz vers les basses fréquences lorsque l'intensité de l'impulsion laser génératrice augmente ;
- l'apparition d'un phénomène de saturation pour des valeurs de I_p supérieures à $7.5 \text{ GW}/\text{cm}^2$;
- la disparition des répliques associées à l'impulsion THz réfléchie dans le cristal générateur lorsque I_p augmente.

Ces premiers résultats suggèrent une forte dépendance de l'indice complexe $\tilde{n}(\Omega)$ du ZnTe avec l'intensité I_p . Plusieurs scénarios concernant l'évolution de $\tilde{n}(\Omega)$ avec I_p permettent d'interpréter les résultats précédents. Ainsi, une légère augmentation de la partie réelle $n(\Omega)$ ($\Delta n(\Omega)/n(\Omega) \simeq 3\%$) suffirait à décaler l'accord de phase vers de plus basses fréquences et ainsi obtenir un spectre centré autour de 1 THz. De même, une augmentation du coefficient d'atténuation $\kappa(\Omega)$ autour de 2 THz entraînerait une absorption préférentielle autour de cette valeur et donc un spectre centré à plus basse fréquence. La combinaison simultanée de ces deux effets pourraient également conduire aux résultats obtenus.

Pour compléter notre étude, nous avons parallèlement mesuré l'évolution de l'énergie THz, W_{THz} , en fonction de I_p pour les trois épaisseurs du cristal générateur.

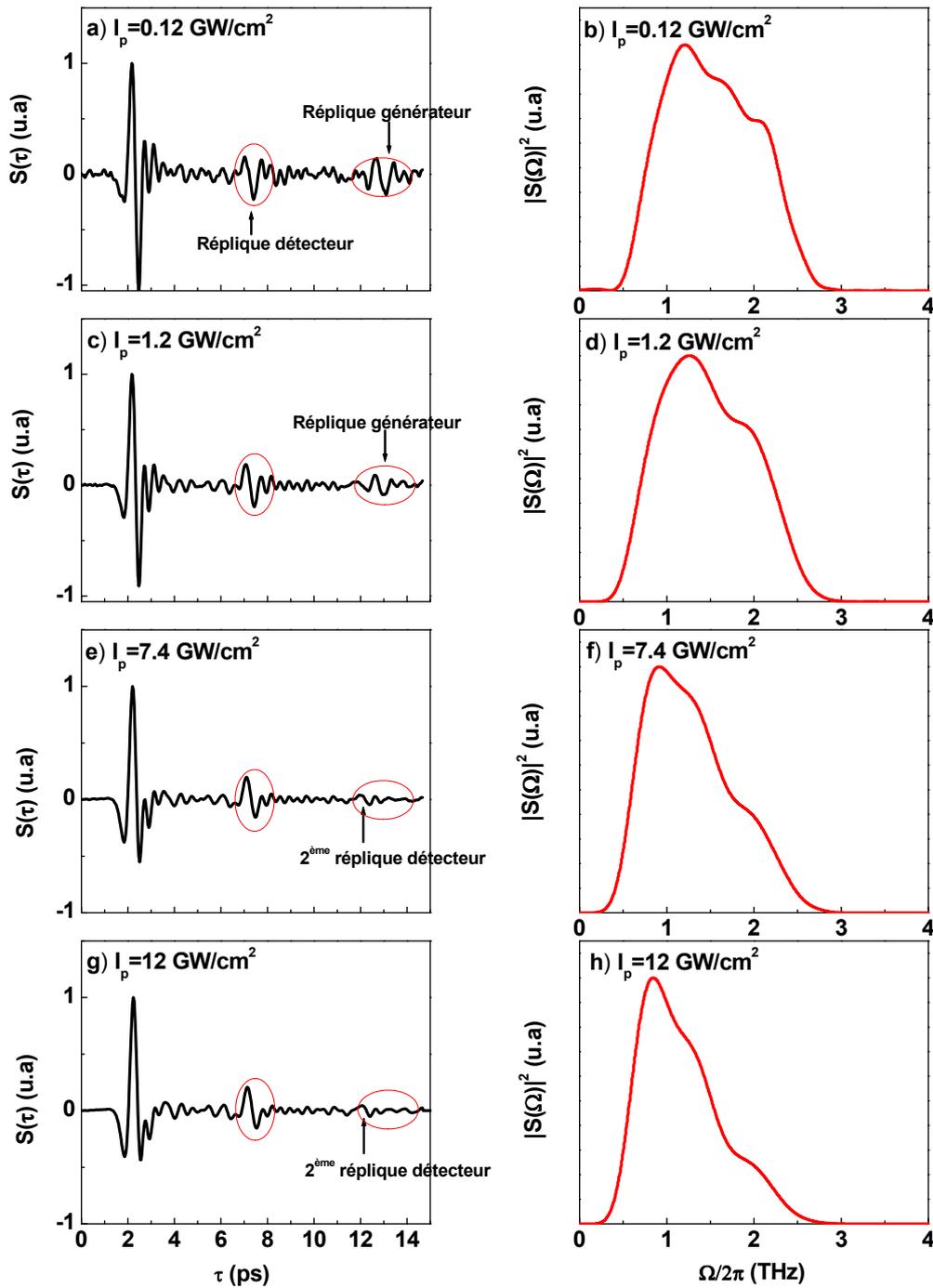


FIGURE II.3 – Colonne de gauche : Champ électrique THz généré dans un cristal de ZnTe de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour différentes intensités I_p de l'impulsion laser génératrice et détecté dans un cristal d'épaisseur valant $200 \mu\text{m}$. a) $I_p = 0.12 \text{ GW/cm}^2$. c) $I_p = 1.2 \text{ GW/cm}^2$. e) $I_p = 7.4 \text{ GW/cm}^2$. g) $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. Lorsque I_p augmente, la réplique liée au générateur disparaît complètement laissant apparaître la deuxième réplique provenant du détecteur située 10 ps environ après le signal principal. Colonne de droite : Spectre THz associé au signal principal.

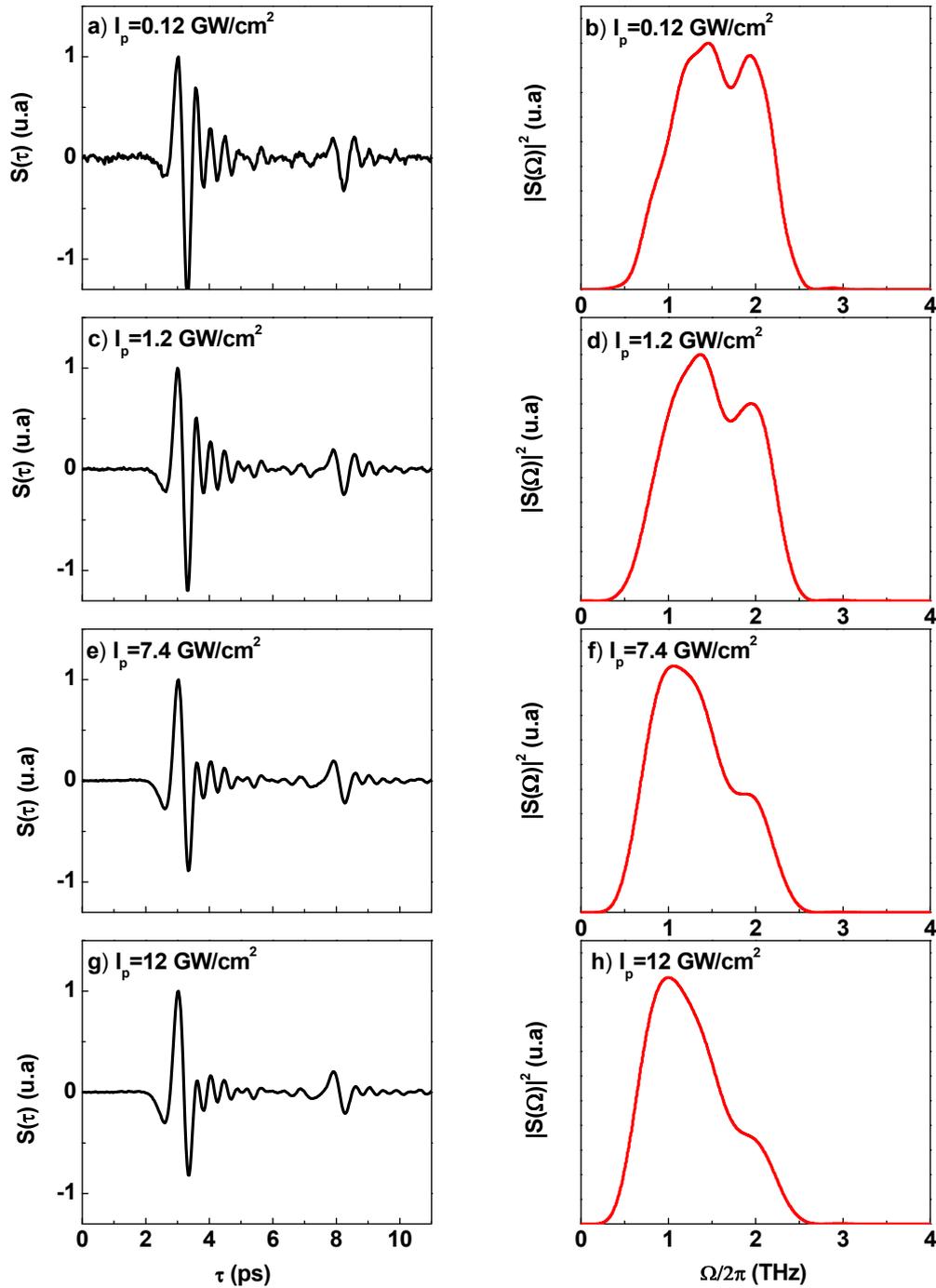


FIGURE II.4 – Colonne de gauche : Champ électrique THz généré dans un cristal de ZnTe de 1 mm d'épaisseur pour différentes intensités I_p de l'impulsion laser génératrice et détecté dans un cristal d'épaisseur valant $200 \mu\text{m}$. a) $I_p = 0.12 \text{ GW/cm}^2$. c) $I_p = 1.2 \text{ GW/cm}^2$. e) $I_p = 7.4 \text{ GW/cm}^2$. g) $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$. Colonne de droite : Spectre THz associé au signal principal.

II.3 Evolution de l'énergie THz avec l'intensité laser incidente

Nous avons déterminé l'énergie THz en notant que l'aire sous le spectre est proportionnelle à l'énergie THz. Autrement dit,

$$W_{THz} \propto \int |S(\Omega)|^2 d\Omega. \quad (II.2)$$

La procédure expérimentale adoptée pour déterminer l'évolution de W_{THz} avec I_p est donc la suivante : on prend un cristal générateur d'épaisseur z et on fait varier l'intensité incidente à l'aide d'un filtre variable. Pour chaque valeur de I_p , on mesure le champ électrique THz par effet électro-optique dans un cristal de ZnTe de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur puis on effectue la transformée de Fourier du signal principal pour obtenir le spectre $|S(\Omega)|^2$ dont on évalue l'intégrale. La génération par redressement optique étant un processus non-linéaire d'ordre 2, on s'attend à trouver, en régime linéaire, une évolution quadratique de W_{THz} avec I_p .

La figure II.5 représente l'évolution de $\sqrt{W_{THz}}$ en fonction de l'intensité laser incidente I_p pour trois épaisseurs du cristal générateur. Dans cette représentation, $\sqrt{W_{THz}}$ doit varier linéairement avec I_p . On note que ceci est le cas pour le cristal de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur (cercles noirs) dans la gamme $I_p = 0 - 12 \text{ GW/cm}^2$. Cependant, nous mettons clairement en évidence un écart à cette évolution linéaire pour les cristaux plus épais ($z = 500 \mu\text{m}$ (triangles verts) et $z = 1 \text{ mm}$

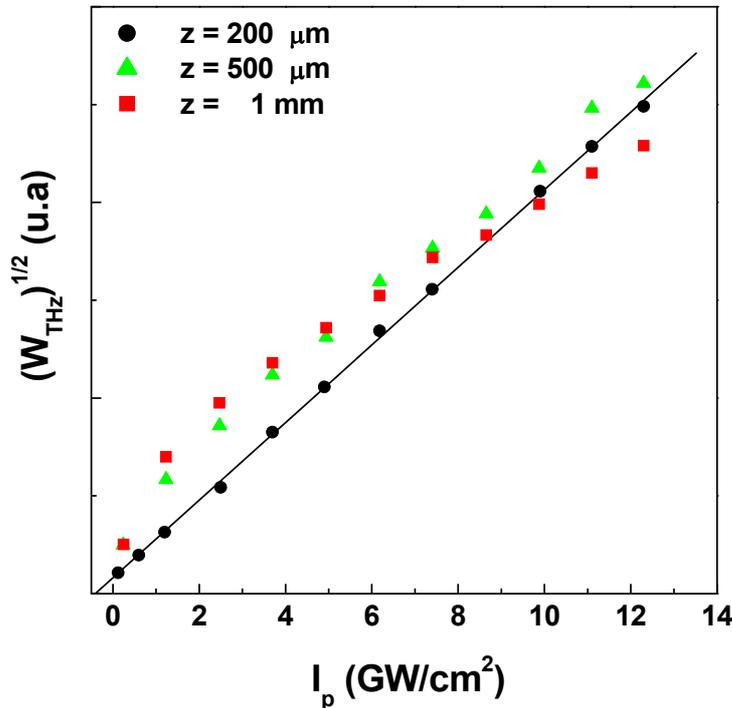


FIGURE II.5 – Evolution de $\sqrt{W_{THz}}$ en fonction de l'intensité laser incidente I_p pour trois épaisseurs z du cristal générateur : $z = 200 \mu\text{m}$ (cercles noirs), $z = 500 \mu\text{m}$ (triangles verts) et $z = 1 \text{ mm}$ (carrés rouges).

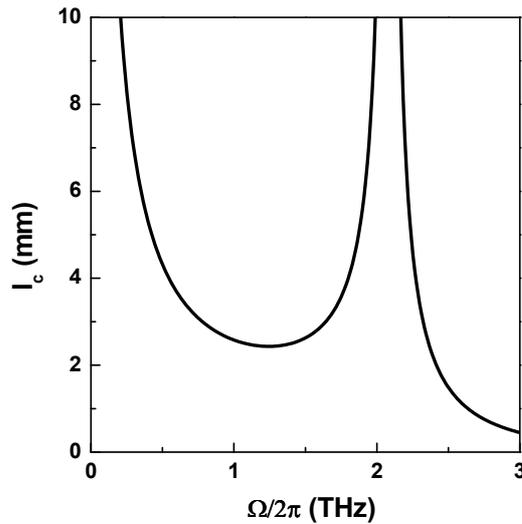


FIGURE II.6 – Evolution de la longueur de cohérence l_c en fonction de la fréquence en THz.

(carrés rouges)). Paradoxalement, nous constatons que pour de fortes valeurs de I_p l'énergie THz générée dans un cristal fin peut être supérieure à celle obtenue pour des cristaux plus épais !

Afin d'analyser ces résultats, introduisons la longueur de génération effective $L_{gen}(\Omega, z)$ qui correspond à la longueur sur laquelle la génération de l'onde THz par redressement optique est optimale [9]. En l'absence d'absorption pour les ondes optique et THz, l'expression de $L_{gen}(\Omega, z)$ est la suivante [10] :

$$L_{gen}(\Omega, z) = z \left| \text{sinc} \left(\frac{\Delta k z}{2} \right) \right|. \quad (\text{II.3})$$

Cette fonction est maximale pour la longueur $l_c = \pi/|\Delta k|$ appelée longueur de cohérence. L'évolution de l_c en fonction de la fréquence THz est représentée sur la figure II.6. Nous constatons que l_c est infinie à la fréquence pour laquelle il y a accord de phase et qu'elle est toujours supérieure à 1 mm jusqu'à environ 3 THz. Par conséquent, pour les trois épaisseurs de cristal utilisées, nous sommes toujours dans le cas où $z < l_c$. L'expression II.3 prévoit alors que L_{gen} (et donc W_{THz}) doit augmenter avec z . Ces résultats indiquent clairement un écart à cette évolution lorsque I_p augmente (cf. figure II.5). Ceci signifie que $L_{gen} < z$ pour les cristaux d'épaisseur $z = 500 \mu\text{m}$ et $z = 1 \text{ mm}$. Cette observation peut notamment résulter de la présence d'une absorption non négligeable pour l'onde optique et/ou pour l'onde THz lors de la propagation dans ces deux cristaux. Par ailleurs, comme pour de faibles valeurs de I_p , l'efficacité du processus de redressement optique augmente avec z , tandis que cette tendance s'inverse lorsque I_p augmente, nos observations indiquent donc que L_{gen} est une fonction de I_p .

S'il y a absorption de l'onde optique à 800 nm, le cristal de ZnTe étant transparent à cette longueur d'onde (énergie de gap étant de $E_g = 2.2 \text{ eV}$), l'absorption ne peut résulter que d'une transition à deux photons, processus d'autant plus probable que l'intensité augmente. Les porteurs créés dans la bande de conduction par ce processus peuvent alors modifier fortement l'impulsion laser, ainsi que la génération et la propagation de l'onde THz.

II.4 Création de porteurs par absorption à deux photons

Cette partie est consacrée à l'étude de la création de porteurs libres dans le cristal de ZnTe par absorption à deux photons. Nous allons tout d'abord nous intéresser à la déplétion de l'impulsion laser au cours de la propagation dans le cristal puis nous déterminerons l'ordre de grandeur du nombre de porteurs photo-crés.

II.4.1 Déplétion de l'impulsion laser

L'augmentation du processus d'absorption à deux photons lorsque I_p augmente doit se manifester par une diminution de l'intensité laser au cours de la propagation dans le cristal. Pour étudier cet effet, nous avons mesuré l'intensité laser en sortie d'un cristal de ZnTe d'épaisseur z , notée I_s , pour différentes valeurs de l'intensité incidente I_p . Le cristal de ZnTe est préalablement orienté suivant l'axe cristallographique $Z = \langle 001 \rangle$ afin d'annihiler la génération THz (cf. figure I.6).

Pour déduire de ces mesures les paramètres liés à l'absorption à deux photons, il faut tenir compte des réflexions aux interfaces air-cristal et cristal-air. On note I_{in} l'intensité qui pénètre dans le cristal. Elle est reliée à I_p par la relation suivante :

$$I_{in} = I_p (1 - R_{12}) , \quad (\text{II.4})$$

où R_{12} est le coefficient de réflexion en intensité à 800 nm à l'interface air-cristal (cf. partie I.3.3 pour la définition des notations) défini de la manière suivante :

$$R_{12} = \left(\frac{n - 1}{n + 1} \right)^2 , \quad (\text{II.5})$$

avec n l'indice de réfraction du ZnTe à 800 nm. D'après la référence [11], $n = 2.88$ ce qui donne un coefficient de réflexion de l'ordre de $R_{12} \simeq 23\%$. De même, on note I_t l'intensité laser incidente sur la face de sortie du cristal reliée à l'intensité mesurée I_s par la relation suivante :

$$I_t = \frac{I_s}{1 - R_{21}} , \quad (\text{II.6})$$

où R_{21} est le coefficient de réflexion en intensité à l'interface cristal-air, coefficient égal à R_{12} .

La figure II.7 représente l'évolution du rapport I_t/I_{in} en fonction de I_{in} pour deux épaisseurs de cristal de ZnTe : $z = 200 \mu\text{m}$ (carrés rouges) et $z = 1 \text{ mm}$ (cercles noirs). Nous observons une diminution de ce rapport lorsque I_{in} augmente et qui est d'autant plus marquée que l'épaisseur du cristal est importante. En effet, nous constatons une variation de 70% de l'intensité laser pour un cristal de 1 mm lorsque $I_{in} = 10 \text{ GW}/\text{cm}^2$. Cette évolution est essentiellement liée à la déplétion de l'impulsion laser par absorption à deux photons. En effet, nous verrons par la suite que les variations des coefficients de réflexion R_{12} et R_{21} liées à une variation de l'indice du milieu avec l'intensité laser sont négligeables.

L'évolution de l'intensité laser I_{in} au cours de la propagation dans le cristal, en prenant en compte l'absorption à deux photons, peut être obtenue en résolvant l'équation différentielle suivante :

$$dI_{in} = -\beta^I (I_{in}) I_{in}^2 dz , \quad (\text{II.7})$$

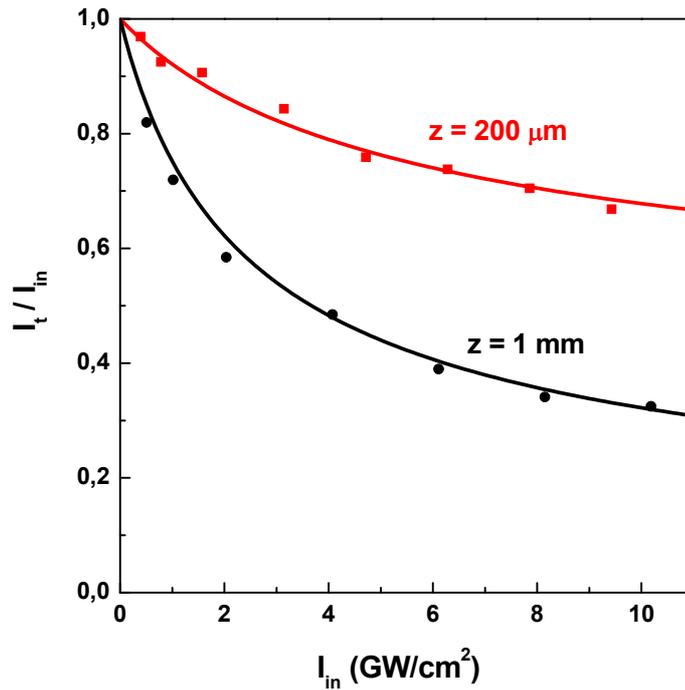


FIGURE II.7 – Evolution du rapport I_t/I_{in} en fonction de l'intensité laser incidente I_{in} pour deux épaisseurs de cristal de ZnTe : $z = 200 \mu\text{m}$ (carrés rouges) et $z = 1 \text{ mm}$ (cercles noirs).

où $\beta^I(I_{in})$ représente le coefficient d'absorption à deux photons qui peut s'écrire de la manière suivante [12] :

$$\beta^I(I_{in}) = \frac{\beta_0^I}{1 + \frac{I_{in}}{I_{sat}}}, \quad (\text{II.8})$$

où β_0^I et I_{sat} correspondent respectivement au coefficient d'absorption à faible intensité et à l'intensité de saturation (valeur pour laquelle β_0^I est divisé par 2). La solution de l'équation II.7 s'exprime de la manière suivante [13] :

$$\frac{1}{I_{in}} - \frac{1}{I_t} + \frac{1}{I_{sat}} \ln \left| \frac{I_t}{I_{in}} \right| = -\beta_0^I z. \quad (\text{II.9})$$

A partir de l'expression II.9, le rapport I_t/I_{in} a été évalué numériquement et utilisé comme fonction d'ajustement pour les points expérimentaux de la figure II.7. Nous obtenons comme paramètres d'ajustement : $\beta_0^I = (4.0 \pm 0.4) \text{ cm/GW}$ et $I_{sat} = (7.5 \pm 0.5) \text{ GW/cm}^2$ pour le cristal d'épaisseur $z = 200 \mu\text{m}$ et $\beta_0^I = (3.8 \pm 0.4) \text{ cm/GW}$ et $I_{sat} = (7.1 \pm 0.5) \text{ GW/cm}^2$ pour celui de 1 mm d'épaisseur. Ces résultats sont en bon accord avec ceux trouvés dans la littérature : $\beta_0^I = 4.7 \text{ cm/GW}$ et $I_{sat} = (7.9 \pm 0.9) \text{ GW/cm}^2$ (cf. références [12, 14]).

II.4.2 Densité de porteurs libres photo-crés

A partir des résultats de la figure II.7, nous pouvons déterminer l'ordre de grandeur du nombre de porteurs créés dans ces deux cristaux. L'intensité absorbée au cours de la propagation,

I_{in} (GW/cm ²)	1.6	3.1	6.3	9.4
N_e ($z = 200 \mu\text{m}$)	2.2×10^{12}	9.7×10^{12}	3.3×10^{13}	7.1×10^{13}
N_e ($z = 1 \text{ mm}$)	7.5×10^{12}	2.5×10^{13}	6.9×10^{13}	1.2×10^{14}

TABLE II.1 – Nombre de porteurs créés par absorption à deux photons en fonction de l'intensité laser I_{in} pour deux épaisseurs du cristal de ZnTe. Il est difficile de définir une densité moyenne car l'intensité laser (donc N_e) diminue fortement au cours de la propagation.

notée I_{abs} , est directement donnée par la relation :

$$I_{abs} = I_{in} - I_t. \quad (\text{II.10})$$

Le nombre de photons absorbés, noté N_{ph} , s'exprime quant à lui de la manière suivante :

$$N_{ph} = \frac{I_{abs} \tau_p S \lambda_0}{hc}, \quad (\text{II.11})$$

où $S = \pi r^2/2$ est la surface d'excitation (avec $r = 3.5 \text{ mm}$ le waist du faisceau laser) et $\tau_p = 50 \text{ fs}$ est la durée de l'impulsion. Le nombre de porteurs créés dans le volume d'excitation par absorption à deux photons, notée N_e , est alors directement donné par l'expression :

$$N_e = \frac{N_{ph}}{2}. \quad (\text{II.12})$$

Le tableau II.1 représente le nombre de porteurs créés en fonction de l'intensité laser I_{in} pour deux épaisseurs du ZnTe. On peut définir une densité moyenne de porteurs, notée n_v^e , donnée par :

$$n_v^e = \frac{N_e}{V}. \quad (\text{II.13})$$

Dans le cas d'un cristal fin ($z = 200 \mu\text{m}$), cette densité peut être supposée constante sur toute l'épaisseur du cristal, elle est de l'ordre de 2×10^{16} electrons/cm³ pour $I_{in} = 9.4 \text{ GW/cm}^2$. Pour un cristal plus épais, il est difficile de définir une densité moyenne car l'intensité laser (donc N_e) diminue fortement au cours de la propagation.

Nous avons constaté dans cette partie que la création de porteurs par absorption à deux photons est un processus significatif qui peut contribuer à une importante variation de l'indice complexe du ZnTe. Afin d'étudier l'influence de ces porteurs libres sur la propagation de l'onde THz, nous avons également réalisé une expérience pompe optique - sonde THz dans des cristaux de ZnTe de différentes épaisseurs.

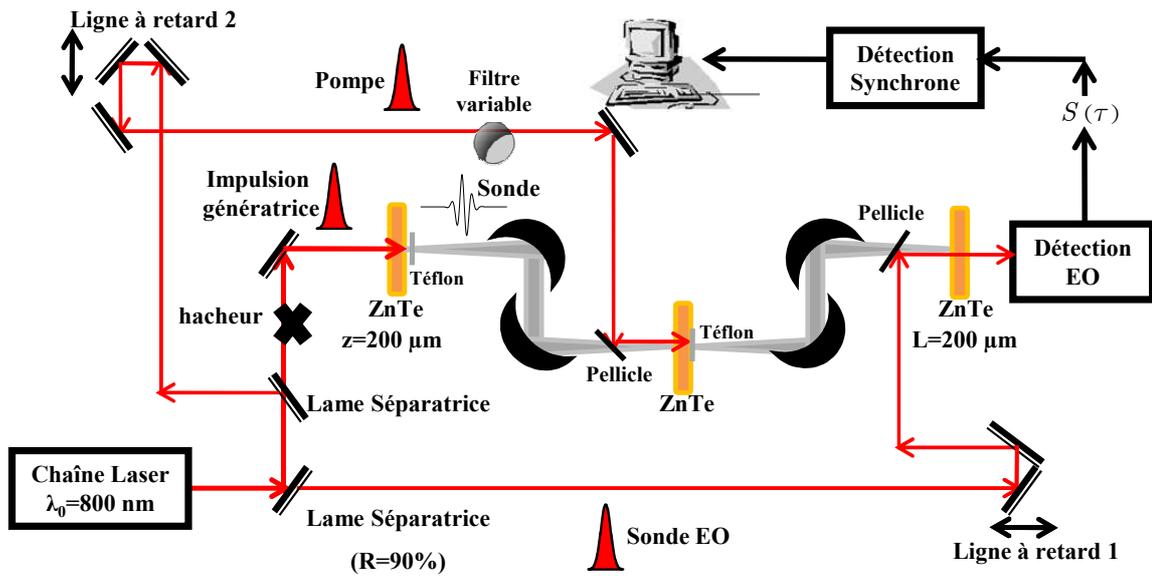


FIGURE II.8 – Schéma de principe de l'expérience pompe optique - sonde THz dans un cristal de ZnTe d'épaisseur L_e . La ligne à retard 1 permet la mesure du champ électrique THz par effet électro-optique tandis que la ligne à retard 2 permet de faire varier le délai entre l'impulsion pompe optique et l'impulsion sonde THz.

II.5 Expérience Pompe optique - Sonde THz

Dans notre expérience, la pompe est une impulsion laser femtoseconde centrée à 800 nm et la sonde est une impulsion THz.

II.5.1 Principe de l'expérience

Le dispositif expérimental utilisé est représenté sur la figure II.8. L'échantillon étudié est un cristal de ZnTe, d'épaisseur L_e , préalablement orienté suivant l'axe cristallographique $Z = \langle 001 \rangle$ (pour éviter la génération THz). L'impulsion sonde est générée par redressement optique d'une impulsion laser femtoseconde d'intensité $I_p = 12 \text{ GW/cm}^2$ dans un cristal d'épaisseur $z = 200 \mu\text{m}$. L'impulsion pompe est prélevée sur le trajet du faisceau permettant la génération de l'impulsion THz. Nous utilisons un pellicule pour que les deux impulsions se propagent de façon colinéaire dans le cristal. En effet, nous avons constaté expérimentalement qu'un petit angle entre les directions de propagation des impulsions suffit à allonger les temps caractéristiques mesurés. On peut faire varier l'intensité I_{exc} de l'impulsion pompe, et donc la densité de porteurs créés, à l'aide d'un filtre neutre variable. Nous utilisons deux lignes à retard afin d'effectuer deux séries d'expériences complémentaires :

- pour la première série de mesures, la position de la ligne à retard 1 est fixée, et le délai entre la pompe optique et la sonde THz est modifié via la ligne à retard 2. On mesure ainsi l'évolution de l'onde THz (plus précisément du signal EO) en un point donné en fonction du délai pompe-sonde. On se place généralement sur le maximum de l'impulsion car c'est l'endroit où toutes les

composantes spectrales sont *a priori* en phase [15]. Cette étude permet de mesurer la dynamique moyenne de retour à l'équilibre de l'échantillon et a notamment permis la caractérisation de matériaux semi-conducteurs [16, 17] et de liquides [18].

– la seconde expérience consiste à mesurer la totalité du champ électrique THz par effet électro-optique pour un retard pompe-sonde donné. Dans ce cas de figure, la position de la ligne à retard 2 est fixée et on déplace la ligne à retard 1. Cette expérience permet d'obtenir des informations complémentaires puisqu'on peut accéder simplement à $|S(\Omega)|^2$ pour différents retards pompe-sonde [19].

La propagation de la sonde THz , dont la durée est de l'ordre de la picoseconde, dans le cristal de ZnTe photo-excité dépend fortement de la dynamique ultra-rapide des porteurs. Cette technique expérimentale ne nous permet donc pas d'effectuer une mesure résolue en temps de l'influence des porteurs sur la propagation de l'onde THz . Nous obtenons simplement une information intégrée sur la durée de propagation dans l'échantillon. La technique la plus judicieuse pour déterminer la réponse de l'échantillon au cours du temps serait d'effectuer une cartographie en deux dimensions de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 3 décrivant le phénomène étudié [20, 21]. Dans la section suivante, nous allons étudier de manière plus systématique l'influence de la densité de porteurs sur la propagation de l'onde THz pour différentes épaisseurs de cristaux.

II.5.2 Résultats

Dans cette section, nous présentons les principaux résultats des expériences pompe-sonde réalisées dans des cristaux de ZnTe de différentes épaisseurs ($L_e = 200 \mu\text{m}$ et $L_e = 1 \text{ mm}$) et pour plusieurs valeurs de l'intensité I_{exc} de l'impulsion pompe.

La figure II.9 a) représente l'évolution du maximum de l'impulsion THz ayant traversé un cristal de ZnTe d'épaisseur $L_e = 200 \mu\text{m}$ en fonction du retard pompe-sonde Δt pour différentes valeurs de l'intensité I_{exc} . On note T_0 (respectivement T) la valeur du signal électro-optique pour des délais pompe-sonde négatifs (respectivement positifs). Lorsque I_{exc} augmente, nous observons une importante diminution de la transmission du signal EO. Ceci s'explique par une forte augmentation de l'absorption de l'onde THz due à la présence de porteurs libres créés par absorption à deux photons. Notons que dans ces expériences, la résolution temporelle est de l'ordre de la durée de l'impulsion sonde THz , ce qui explique les temps de descente observés sur la figure II.9 a). Des résultats similaires ont été obtenus pour un cristal plus épais (cf. figure II.9 b) où $L_e = 1 \text{ mm}$) et montrent que l'absorption de l'onde THz augmente avec l'épaisseur du cristal.

Pour compléter notre étude, nous avons aussi mesuré la totalité du champ électrique THz ayant traversé des cristaux d'épaisseur $L_e = 200 \mu\text{m}$ (cf. figure II.9 c)) et $L_e = 1 \text{ mm}$ (figure II.9 d)) pour quatre valeurs de Δt et pour une intensité de l'impulsion pompe fixée à $I_{exc} = 6.3 \text{ GW/cm}^2$. Lorsque la valeur du délai pompe-sonde augmente, nous observons (pour les deux épaisseurs du cristal) d'une part une diminution de l'amplitude du signal électro-optique et d'autre part un léger décalage temporel des oscillations correspondant à une diminution de l'indice du ZnTe de l'ordre de -0.05 . Des résultats similaires ont été observés pour un échantillon de GaAs [22].

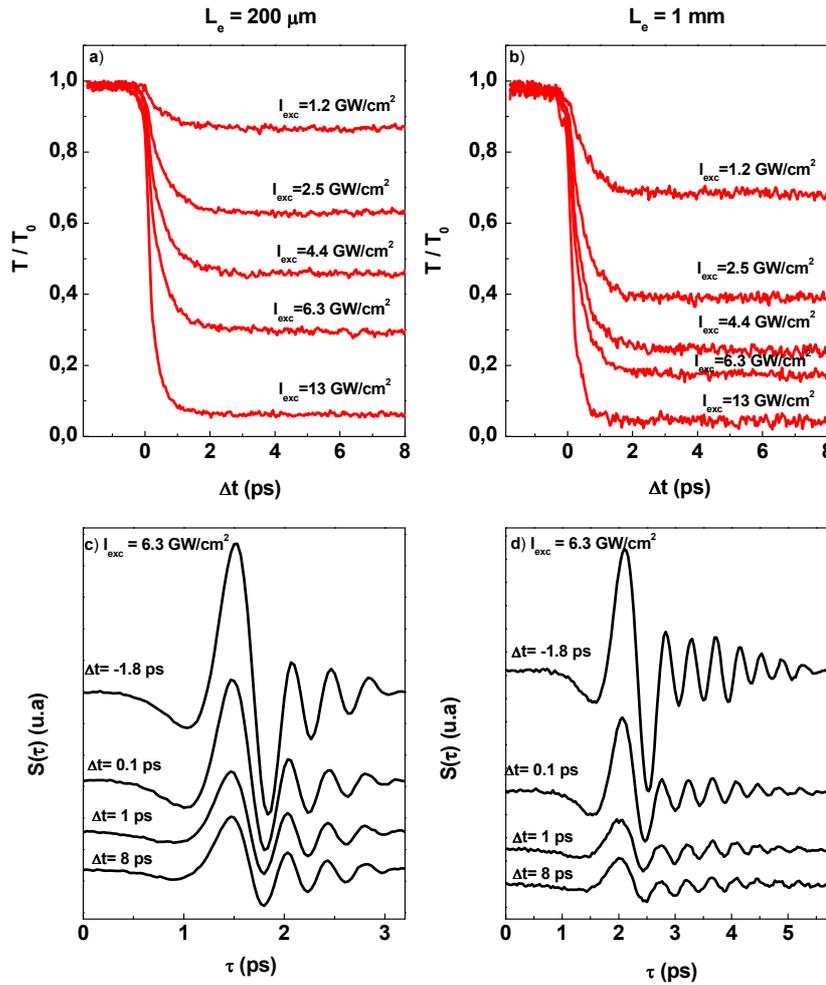


FIGURE II.9 – a) Mesure de la variation du maximum de l'impulsion THz transmise par un cristal de $ZnTe$ d'épaisseur $L_e = 200 \mu m$ en fonction du retard pompe-sonde Δt pour différentes valeurs de l'intensité I_{exc} . On note T_0 (respectivement T) la valeur du signal électro-optique pour des délais pompe-sonde négatifs (respectivement positifs). b) Série de mesures identique à celle du cas a) pour un cristal d'épaisseur $L_e = 1 \text{ mm}$. c) Mesure de la totalité du champ électrique THz transmis par un $ZnTe$ d'épaisseur $L_e = 200 \mu m$ pour plusieurs valeurs de Δt à une intensité fixée : $I_{exc} = 6.3 \text{ GW/cm}^2$. d) Série de mesures identique à celles du cas c) pour un cristal de 1 mm d'épaisseur.

En ce qui concerne l'évolution du spectre THz transmis, nous obtenons pour les deux cristaux qu' :

- aux temps courts ($\Delta t = 0.1 \text{ ps}$), l'absorption est uniforme sur la gamme spectrale étudiée (cf. figure II.10) ;
- aux temps plus longs, l'absorption de l'onde THz est quasiment uniforme sur la plage de fréquence allant de 1 à 3 THz et elle est légèrement moindre autour de 0.5 THz .

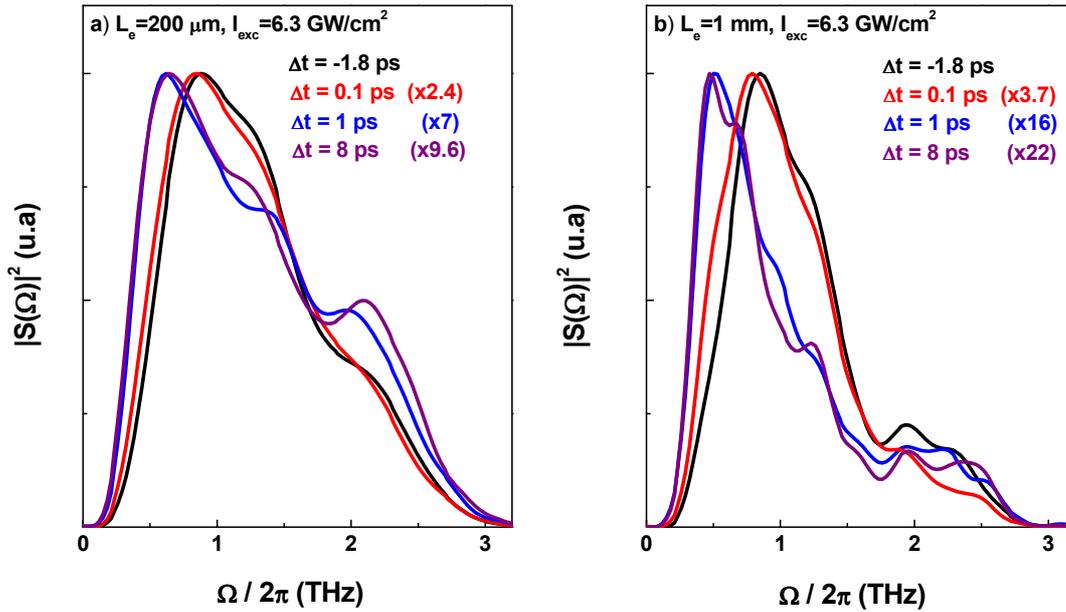


FIGURE II.10 – a) Spectres THz transmis par un ZnTe d'épaisseur $L_e = 200 \mu\text{m}$ pour plusieurs valeurs de Δt à une intensité fixée : $I_{exc} = 6.3 \text{ GW/cm}^2$. b) Spectres THz transmis par un ZnTe d'épaisseur $L_e = 1 \text{ mm}$. Pour la clarté de la figure, tous les spectres ont été ramenés à la même échelle (les facteurs multiplicatifs sont indiqués entre parenthèses).

II.5.3 Bilan

Les expériences pompe optique - sonde THz confirment que les porteurs libres créés par absorption à deux photons absorbent fortement l'onde THz . Cependant, nous avons mis en évidence que la dépendance spectrale de l'absorption aux temps courts est légèrement différente de celle observée aux temps plus longs. Ces porteurs sont créés avec un excès d'énergie de l'ordre de 1 eV et sont donc dans un état hors d'équilibre. Les temps caractéristiques de thermalisation électronique à température ambiante étant de l'ordre de la centaine de femtosecondes, nous pouvons raisonnablement supposer que pour des délais pompe-sonde relativement courts, l'impulsion THz nous renseigne sur l'absorption des porteurs non-thermalisés.

Pour des temps plus longs, nous obtenons uniquement des informations concernant l'influence des porteurs thermalisés sur la propagation de l'onde THz . Le modèle de Drude permet de décrire parfaitement le comportement de ce gaz d'électrons libres thermalisés et prévoit d'une part une diminution de l'indice du cristal induite par ces porteurs et d'autre part une absorption relativement uniforme sur la gamme spectrale considérée [23], ce qui est en accord avec les observations expérimentales. Ces derniers sont également responsables de l'absorption des répliques des impulsions THz dans les cristaux générateurs (cf. section II.2).

II.6 Discussion

II.6.1 Position du problème

Des résultats précédents, il ressort plus particulièrement qu'à forte intensité, l'impulsion laser génératrice est fortement affectée au cours de la propagation dans le cristal. L'équation utilisée au chapitre I pour décrire l'évolution de cette dernière est donc incomplète. Si on souhaite décrire correctement celle-ci, il faut tenir compte du processus d'absorption à deux photons, de la dispersion de vitesse de groupe et de l'automodulation de phase. Dans l'hypothèse où l'enveloppe de l'impulsion $E_0(z, t)$ varie lentement, son équation d'évolution est la suivante :

$$\frac{\partial E_0(z, t)}{\partial z} + \frac{i}{2} k_0'' \frac{\partial^2 E_0(z, t)}{\partial t^2} = ik_0 n_2 (1 + ir) |E_0(z, t)|^2 E_0(z, t), \quad (\text{II.14})$$

avec $k_0'' = (d^2k/d\omega^2)_{\omega_0}$ et n_2 l'indice non-linéaire du ZnTe responsable du phénomène d'automodulation de phase. Le paramètre sans dimension r caractérise l'importance relative du processus d'absorption à deux photons par rapport à celui d'automodulation de phase et est défini de la manière suivante :

$$r = \frac{\beta}{2k_0 n_2}, \quad (\text{II.15})$$

avec $\beta = 2\beta^I/\varepsilon_0 cn$ (n étant l'indice du ZnTe à 800 nm).

L'expression II.14 est appelée équation de Schrödinger non-linéaire et régit également la propagation d'impulsions laser femtosecondes dans les fibres optiques [24]. En général, elle n'admet pas de solution exacte et doit être résolue numériquement. La méthode la plus simple, appelée "split-step", consiste alors à utiliser un algorithme où on sépare les effets dus à la dispersion de vitesse de groupe de ceux liés à l'automodulation de phase et à l'absorption à deux photons [25]. Il existe néanmoins une solution analytique qui correspond à des impulsions se propageant sans déformations appelées solitons.

Ces mécanismes ont des conséquences directes sur l'efficacité du processus de redressement optique puisqu'ils entraînent une diminution de l'intensité de l'impulsion laser au cours de la propagation et donc une variation de la densité spectrale d'énergie, ainsi qu'une diminution de la densité de porteurs créés par absorption à deux photons. Afin de décrire correctement la génération de l'onde THz, il faut prendre en compte l'ensemble de ces mécanismes et résoudre l'équation de propagation suivante, établie dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable [9] :

$$\frac{\partial E_{THz}(\Omega, z)}{\partial z} = -\frac{\alpha(\Omega, z)}{2} E_{THz}(\Omega, z) - \frac{\Omega^2}{c^2} \frac{\chi^{(2)}(\Omega)}{2ik_{THz}(\Omega)} e^{i\Delta k(\Omega)z} C(\Omega, z). \quad (\text{II.16})$$

Dans cette équation, $\alpha(\Omega, z)$ correspond au coefficient d'absorption de l'onde THz par les porteurs libres et $C(\Omega, z)$ est la densité spectrale d'énergie, ce terme dépendant maintenant de z et s'exprimant de la manière suivante :

$$C(\Omega, z) = \frac{1}{2\pi} \int E_0(\omega, z) E_0^*(\omega - \Omega, z) d\omega. \quad (\text{II.17})$$

Nous allons maintenant examiner l'influence des nouveaux termes introduits dans les équations de propagation sur le spectre de l'impulsion THz en sortie du cristal de ZnTe.

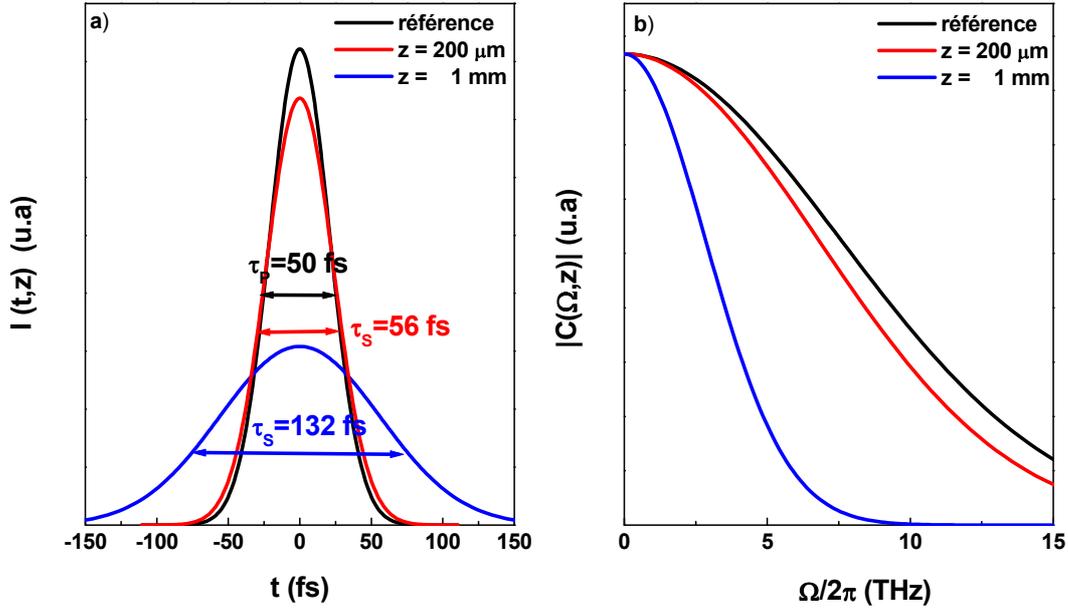


FIGURE II.11 – a) Influence de la dispersion de vitesse de groupe sur la propagation d'une impulsion laser de durée initiale $\tau_p = 50$ fs (en noir) dans deux cristaux d'épaisseur respectives $z = 200 \mu\text{m}$ (en rouge) et $z = 1 \text{ mm}$ (en bleu). b) Influence de la dérive de fréquence sur la densité spectrale d'énergie d'une impulsion (centrée à 800 nm et de largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda = 20$ nm) pour $z = 200 \mu\text{m}$ (en rouge) et $z = 1 \text{ mm}$ (en bleu).

II.6.2 Influence de la dispersion de vitesse de groupe sur $|C(\Omega, z)|$

La dispersion de vitesse de groupe dépend uniquement de l'épaisseur z traversée et pas de l'intensité de l'impulsion laser incidente. Dans le domaine temporel, le principal effet de cette dispersion est d'allonger la durée de l'impulsion de $\tau_p = 50$ fs à τ_s avec :

$$\tau_s = \tau_p \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \varphi_0^{(2)}}{\tau_p^2} \right)^2}, \quad (\text{II.18})$$

où $\varphi_0^{(2)} = (d^2\varphi/d\omega^2)_{\omega_0}$ ($\varphi(\omega)$ étant la phase spectrale de l'impulsion) [26]. Pour un milieu dispersif d'indice n et de longueur z , on peut écrire [26] :

$$\varphi_0^{(2)} = k_0'' z = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} n_0^{(2)} z, \quad (\text{II.19})$$

où $n_0^{(2)} = (d^2n/d\lambda^2)_{\lambda_0}$. L'indice du ZnTe étant donné par la formule de Sellmeier suivante (cf. section I.1.2) :

$$n(\lambda) = \sqrt{4.27 + \frac{3.01\lambda^2}{\lambda^2 - 0.142}}, \quad (\text{II.20})$$

où λ représente la longueur d'onde en μm , nous obtenons que $k_0'' = 2.2 \mu\text{m}^{-1} \cdot \text{fs}^2$, soit $\tau_s = 56 \text{ fs}$ pour $z = 200 \mu\text{m}$ et $\tau_s = 132 \text{ fs}$ pour un cristal de 1 mm d'épaisseur (cf. figure II.11 a)).

La figure II.11 b) représente l'influence de la dispersion de vitesse de groupe sur $|C(\Omega, z)|$. On observe que le support de cette fonction se décale progressivement vers les basses fréquences au fur et à mesure que la dérive de fréquence de l'impulsion optique augmente. Cependant, que ce soit pour $z = 200 \mu\text{m}$ ou 1 mm on constate que ce rétrécissement spectral n'est pas suffisant pour interpréter nos observations expérimentales.

II.6.3 Influence de l'absorption à deux photons sur $|C(\Omega, z)|$

Cette section est consacrée à l'étude de l'influence du processus d'absorption à deux photons sur la densité spectrale d'énergie. Si on néglige la dispersion de vitesse de groupe, la propagation de l'impulsion laser est gouvernée par l'équation suivante :

$$\frac{\partial E_0(z, t)}{\partial z} = ik_0 n_2 (1 + ir) |E_0(z, t)|^2 E_0(z, t) . \quad (\text{II.21})$$

Pour interpréter qualitativement l'influence de ce processus sur le spectre THz , on se place dans le cas simple où on néglige la saturation de l'absorption à deux photons. En posant $E_0(z, t) = \sqrt{I_{in}(z, t)} \exp[i\varphi(z, t)]$ et en résolvant l'équation de propagation, on obtient :

$$I_{in}(z, t) = \frac{I_{in}(0, t)}{1 + \beta_0^I I_{in}(0, t) z} , \quad (\text{II.22})$$

$$\varphi(z, t) = \frac{1}{2r} \ln [1 + \beta_0^I I_{in}(0, t) z] , \quad (\text{II.23})$$

où $I_{in}(0, t)$ est l'intensité laser à l'entrée du cristal.

Les simulations de la figure II.12 a) ont été réalisées à partir de l'expression II.22 en prenant $\beta_0^I = 4 \text{ cm/GW}$ et $I(0, t) = 10 \text{ GW/cm}^2$. On constate sur cette figure que le processus d'absorption à deux photons entraîne une importante diminution de l'intensité laser (70%) pour un cristal de 1 mm d'épaisseur (ceci est en accord avec les résultats expérimentaux de la section II.4.1). L'expression II.23 nous indique quant à elle que l'absorption à deux photons réduit le processus d'automodulation de phase (en effet, en l'absence d'absorption la modulation de phase induite est $\varphi = k_0 n_2 I_{in} z$).

Nous pouvons étudier l'influence du processus d'absorption à deux photons sur la densité spectrale d'énergie sachant que $C(\Omega, z) = \int I_{in}(z, t) \exp(i\Omega t) dt$. La figure II.12 b) indiquent que pour de fortes intensités ($I_{in}(0, t) = 10 \text{ GW/cm}^2$), l'absorption à deux photons entraîne une diminution globale de l'intensité de la fonction $|C(\Omega, z)|$ sans modifier l'allure de cette dernière. Ce processus ne peut donc pas être directement responsable du décalage du spectre THz vers les basses fréquences lorsque I_p augmente.

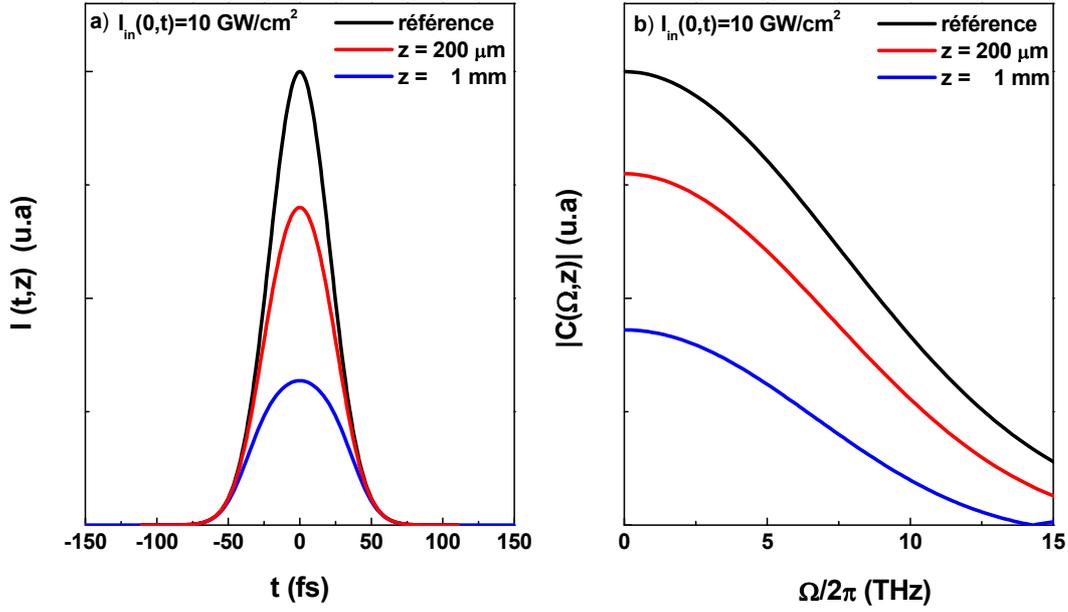


FIGURE II.12 – a) Influence du processus d'absorption à deux photons sur la propagation d'une impulsion laser d'intensité incidente $I_{in}(0,t) = 10 \text{ GW/cm}^2$ (en noir) dans deux cristaux d'épaisseur respectives $z = 200 \mu\text{m}$ (en rouge) et $z = 1 \text{ mm}$ (en bleu). b) Influence de l'absorption à deux photons sur la densité spectrale d'énergie d'une impulsion (centrée à 800 nm et de largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda = 20 \text{ nm}$) pour $z = 200 \mu\text{m}$ (en rouge) et $z = 1 \text{ mm}$ (en bleu).

II.6.4 Influence de l'automodulation de phase sur $|C(\Omega, z)|$

A forte intensité, il est nécessaire de prendre en compte les variations de l'indice du cristal avec l'éclairement. En effet, des variations importantes peuvent entraîner le phénomène d'automodulation de phase responsable de la création de nouvelles fréquences et donc d'un élargissement spectral de l'impulsion laser. L'expression de cette variation d'indice Δn est la suivante [27] :

$$\Delta n = n_2^I I_{in}, \quad (\text{II.24})$$

où $n_2^I (= 2n_2/\varepsilon_0 cn)$ est donné par :

$$n_2^I = K \frac{\hbar c \sqrt{E_p}}{2n^2(\lambda) E_g^4} G(\hbar\omega/E_g). \quad (\text{II.25})$$

Dans l'expression II.25, E_p est une constante égale à 21 eV, E_g représente l'énergie de la bande interdite (2.2 eV), K est un paramètre égal à 3.1×10^3 si E_p et E_g sont exprimés en eV et $G(x)$ est une fonction définie de la manière suivante :

$$G(x) = \frac{-2 + 6x - 3x^2 - x^3 - \frac{3}{4}x^4 - \frac{3}{4}x^5 + 2(1-2x)^{3/2}\theta(1-2x)}{64x^6}, \quad (\text{II.26})$$

où $\theta(y)$ représente la fonction de Heaviside définie par $\theta(y) = 0$ pour $y < 0$ et $\theta(y) = 1$ pour $y \geq 0$. En utilisant les relations II.24 et II.25, nous obtenons un Δn relativement faible variant de 1.4×10^{-5} pour $I_{in} = 0.12 \text{ GW/cm}^2$ à 1.4×10^{-3} pour $I_{in} = 12 \text{ GW/cm}^2$.

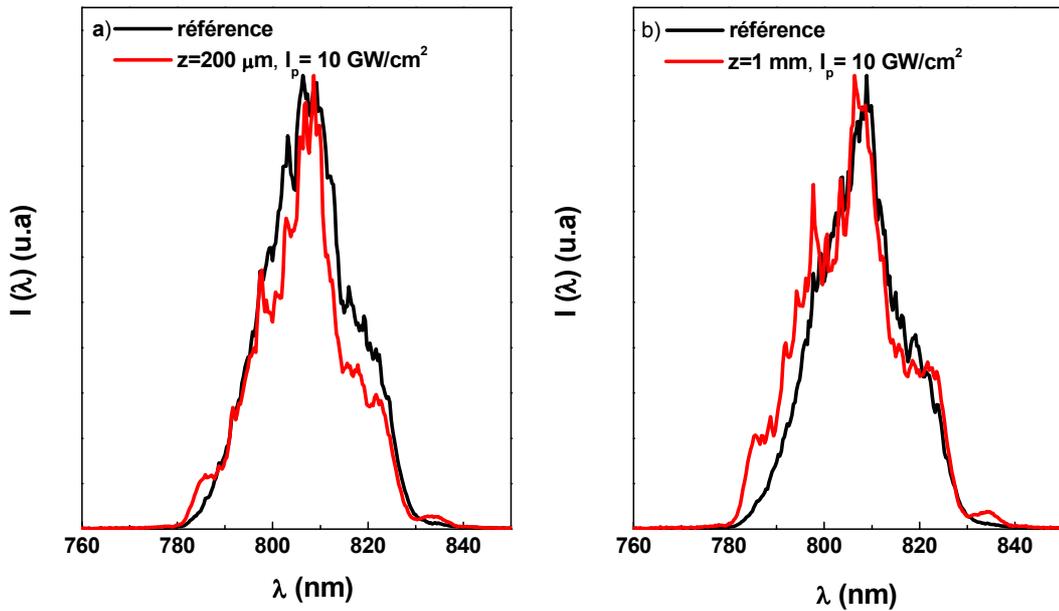


FIGURE II.13 – a) Spectre d’une impulsion laser après traversée d’un cristal de ZnTe d’épaisseur $z = 200 \mu\text{m}$ (en rouge). L’intensité sur la face d’entrée du cristal est de l’ordre de $I_p = 10 \text{ GW}/\text{cm}^2$. Le spectre en amont du cristal est représenté en noir. b) Mesures identiques au cas a) pour un cristal plus épais : $z = 1 \text{ mm}$. Pour la clarté des figures, tous les spectres ont été ramenés à la même échelle.

L’effet d’automodulation de phase semble donc négligeable, ce qui est confirmé par les résultats expérimentaux des figures II.13 a) et b) où on constate que le spectre de l’impulsion laser, à forte intensité ($I_p = 10 \text{ GW}/\text{cm}^2$), n’est pas trop affecté par la propagation dans les cristaux de ZnTe.

Nous venons d’étudier l’influence des nouveaux termes pris en compte dans l’équation de propagation de l’impulsion laser (dispersion de vitesse de groupe, automodulation de phase et absorption à deux photons) sur la densité spectrale d’énergie $|C(\Omega, z)|$ et nous sommes arrivés à la conclusion suivante : ces mécanismes ont des conséquences directes sur l’efficacité du processus de redressement optique lorsque z augmente mais ne peuvent pas être directement responsables du décalage du spectre THz vers les basses fréquences à forte intensité. Nous allons étudier maintenant l’influence du terme $\alpha(\Omega, z)$ sur le spectre THz.

II.6.5 Influence de $\alpha(\Omega, z)$ sur le spectre THz

L'expression du coefficient d'absorption $\alpha(\Omega, z)$ de l'onde THz par les porteurs libres est la suivante [9] :

$$\alpha(\Omega, z) = \frac{\gamma(\Omega, z)}{\varepsilon_0 c n(\Omega)}, \quad (\text{II.27})$$

avec $\gamma(\Omega, z)$ la conductivité des porteurs libres donnée par :

$$\gamma(\Omega, z) = \gamma(0, z) \frac{1}{1 + (\Omega\tau)^2}, \quad (\text{II.28})$$

où $\gamma(0, z)$ représente la conductivité statique et τ le temps de collision des porteurs qui est de l'ordre de 50 fs pour un gaz d'électrons libres thermalisés [15]. La conductivité statique peut s'exprimer en fonction de la densité de porteurs $n_v^e(z)$ de la manière suivante :

$$\gamma(0, z) = n_v^e(z) q \mu, \quad (\text{II.29})$$

où q est la charge de l'électron et μ la mobilité des porteurs donnée par :

$$\mu = \frac{q\tau}{m^*}, \quad (\text{II.30})$$

avec m^* la masse effective des porteurs.

L'absorption de l'onde THz est directement liée à la densité de porteurs libres $n_v^e(z, t)$ régie par l'équation d'évolution suivante [14] :

$$\frac{dn_v^e(z, t)}{dt} = \frac{\beta^I I_{in}^2(z, t)}{2\hbar\omega} - \frac{n_v^e(z, t)}{\tau_R}, \quad (\text{II.31})$$

où τ_R représente le temps de recombinaison des paires électron-trou. τ_R étant très grand devant les durées des impulsions laser et THz, nous pouvons négliger la contribution du second terme. L'équation II.31 se réduit alors à :

$$\frac{dn_v^e(z, t)}{dt} = \frac{\beta^I I_{in}^2(z, t)}{2\hbar\omega}. \quad (\text{II.32})$$

En utilisant l'expression de β^I (cf. équation II.8), nous obtenons pour la densité de porteurs créés par l'impulsion à 800 nm :

$$n_v^e(z) = \frac{\beta_0^I}{2\hbar\omega} \int_0^{+\infty} \frac{I_{in}^2(z, t)}{1 + \frac{I_{in}(z, t)}{I_{sat}}} dt + n_0^e(z), \quad (\text{II.33})$$

où $n_0^e(z)$ est la densité initiale de porteurs dans la bande de conduction que nous supposons négligeable. L'équation II.33 se résoud simplement en supposant que l'impulsion laser a un profil temporel carré (c'est-à-dire $I(z, t) = I_{in}(z)$ pour $0 < t < \tau_p$). On obtient alors :

$$n_v^e(z) = \frac{\beta_0^I \tau_p}{2\hbar\omega} \frac{I_{in}^2(z)}{1 + \frac{I_{in}(z)}{I_{sat}}}. \quad (\text{II.34})$$

L'absorption de l'onde THz augmente avec la densité de porteurs libres créés et donc avec l'intensité laser incidente (cf. équation II.34). Cependant, l'expression II.29 indique clairement que cette absorption dépend fortement de la mobilité des porteurs et donc du paramètre τ . Aux temps courts, les porteurs sont dans un état hors d'équilibre caractérisé par une faible mobilité et donc par une faible absorption de l'onde THz. En revanche, la thermalisation du gaz d'électrons libres, puis la relaxation de ces porteurs vers le minimum de la bande de conduction va s'accompagner d'une augmentation de la mobilité et donc de l'absorption dans le domaine THz [15, 28]. Les expériences pompe optique - sonde THz ont donc mis en évidence que la dépendance spectrale de l'absorption aux temps courts est légèrement différente de celle observée aux temps plus longs, mais globalement elle peut être considérée comme uniforme sur la gamme spectrale étudiée. La prise en compte de la déplétion de l'onde optique et de l'absorption de l'onde THz par les porteurs libres semblent donc aller dans le bon sens en ce qui concerne l'évolution de l'énergie THz en fonction de l'intensité de pompe et de l'épaisseur du cristal (dépendance quadratique en I_p pour un cristal fin où l'absorption à deux photons est relativement faible), cependant cela ne permet pas d'interpréter le décalage du spectre vers les basses fréquences lorsque l'intensité laser augmente.

Nous n'avons rencontré jusqu'à présent que des effets affectant principalement l'amplitude des ondes optiques et THz sans toutefois parvenir à interpréter l'ensemble des résultats expérimentaux. Cependant, pour un cristal fin l'évolution de l'énergie THz avec I_p étant quadratique, on est en droit de penser que le décalage spectral avec l'intensité laser résulte avant tout d'un effet d'accord de phase plutôt que d'un effet d'amplitude. Pour étudier plus en détail l'influence des porteurs libres sur la génération de l'onde THz, nous avons donc réalisé une expérience du type "pompe optique - génération THz" que nous allons présenter dans la partie suivante.

II.7 Expérience Pompe optique - Génération THz

II.7.1 Principe de l'expérience

Le dispositif expérimental utilisé pour cette expérience est représenté sur la figure II.14. Deux impulsions laser sont successivement envoyées dans un cristal générateur de ZnTe de 200 μm d'épaisseur. Une première impulsion très intense ($I_p = 20 \text{ GW/cm}^2$), appelée impulsion pompe, et polarisée suivant l'axe cristallographique $Z = \langle 001 \rangle$ (pour éviter la génération THz) est utilisée afin de créer une forte densité de porteurs libres par absorption à deux photons (de l'ordre de 5×10^{16} électrons/ cm^3). Une seconde impulsion, peu intense ($I_p = 2.4 \text{ GW/cm}^2$) afin d'éviter la création de porteurs et correctement polarisée pour optimiser le processus de génération THz, est ensuite utilisée pour générer une impulsion THz. Ainsi, nous pouvons étudier l'influence des porteurs libres sur la génération de l'onde THz en faisant varier le retard Δt entre ces deux impulsions laser à l'aide de la ligne à retard 2. La ligne à retard 1 permet quant à elle la mesure du champ électrique THz par effet électro-optique dans un cristal détecteur de 200 μm d'épaisseur.

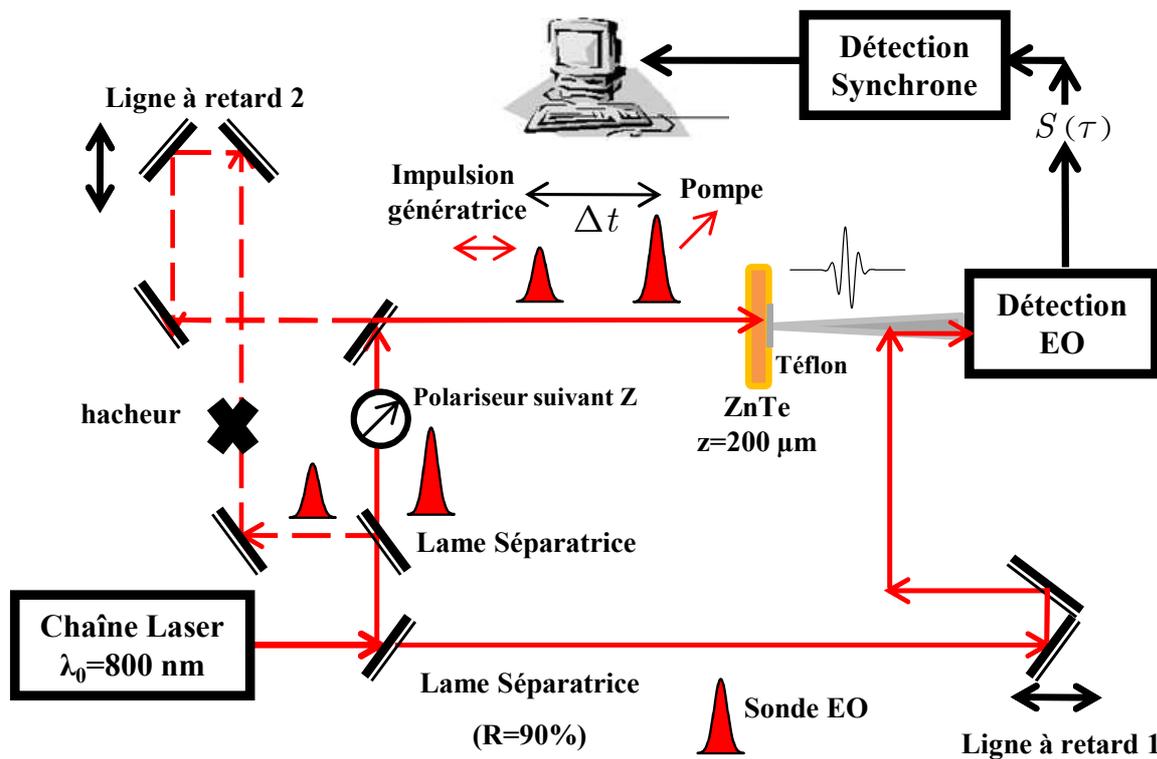


FIGURE II.14 – Schéma de principe de l'expérience pompe optique - génération THz . Deux impulsions laser sont successivement envoyées dans un cristal générateur de ZnTe de $200\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. La première, très intense ($I_p = 20\ \text{GW}/\text{cm}^2$) et polarisée suivant l'axe cristallographique $Z = \langle 001 \rangle$, est utilisée afin de créer une forte densité de porteurs libres par absorption à deux photons (trajet en traits pleins). La deuxième, peu intense ($I_p = 2.4\ \text{GW}/\text{cm}^2$), est ensuite utilisée pour générer une impulsion THz dans le cristal photo-excité (trajet en pointillés).

II.7.2 Résultats et discussion

Dans cette section, nous présentons les principaux résultats des expériences pompe optique - génération THz réalisées dans le cristal de ZnTe de $200\ \mu\text{m}$ d'épaisseur pour différentes valeurs du retard Δt .

La figure II.15 a) représente le spectre THz obtenu pour $\Delta t < 0$. Dans cette configuration où l'impulsion laser génératrice précède l'impulsion pompe (il n'y a donc pas de porteurs libres dans le cristal générateur), le spectre généré est centré autour de 2 THz en accord avec la condition d'accord de phase.

Pour des valeurs de Δt comprises entre 0 et 100 fs, le spectre obtenu est anormalement centré autour de 1 THz (cf. figure II.15 b)). Dans ce cas, l'impulsion THz est générée dans un cristal photo-excité qui présente une forte densité de porteurs libres. Les expériences pompe optique - sonde THz ont révélé que l'absorption de l'onde THz par les porteurs est uniforme sur tout le spectre THz . En outre, la normalisation des spectres de la figure II.15 montre que cette absorption reste négligeable aux temps courts (cf. figure II.15 b) où le facteur multiplicatif vaut 1.1). Le décalage spectral ne peut donc s'expliquer que par une modification de la condition d'accord de

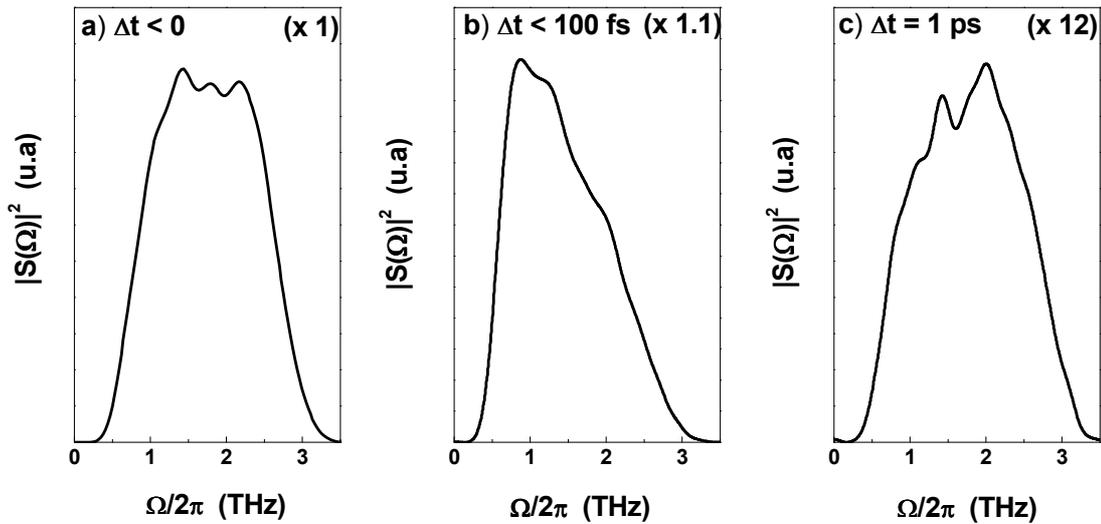


FIGURE II.15 – Résultats des expériences pompe optique - génération THz réalisées dans le cristal de ZnTe de $200 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour différentes valeurs du retard Δt : a) $\Delta t < 0$, b) $\Delta t = 100 \text{ fs}$ et c) $\Delta t = 1 \text{ ps}$. Les spectres ont été normalisés, les facteurs multiplicatifs étant indiqués entre parenthèse.

phase, le spectre généré étant identique à celui obtenu dans la partie II.2.1 pour de fortes valeurs de I_p .

Lorsqu'on augmente le délai entre les deux impulsions ($\Delta t = 1 \text{ ps}$), nous constatons que le spectre THz se recentre autour de 2 THz (cf. figure II.15 c)). Dans cette configuration, le cristal présente toujours une forte densité de porteurs, leur durée de vie étant de l'ordre de la nanoseconde, mais il semble que ces derniers n'affectent plus l'allure du spectre généré. En revanche, l'absorption de l'onde THz est relativement importante (cf. figure II.15 c) où le facteur multiplicatif vaut 12), mais elle est globalement uniforme sur la gamme spectrale considérée (cf. les expériences pompe optique - sonde THz de la partie II.5).

Pour interpréter ces résultats, il est important de rappeler que pour des délais $\Delta t < 100 \text{ fs}$, les porteurs sont dans un état hors d'équilibre, tandis que pour $\Delta t = 1 \text{ ps}$, ils ont fini de thermaliser (cf. partie II.5.3). Les résultats précédents indiquent donc que les porteurs chauds n'absorbent quasiment pas l'onde THz, mais qu'ils conduisent à un décalage spectral vers les basses fréquences. Ensuite, la thermalisation du gaz d'électrons puis la relaxation de ces porteurs vers le minimum de la bande de conduction s'accompagne d'une importante augmentation de l'absorption dans le domaine THz. Pour faire le lien entre ces expériences et celles de redressement optique d'impulsions lasers femtosecondes intenses, il est important de noter que lors de la génération de l'onde THz, cette dernière reste toujours dans le sillage immédiat de l'impulsion laser (délai de l'ordre de la centaine de femtosecondes) [29], de sorte qu'elle interagit préférentiellement avec le gaz de porteurs en cours de thermalisation. Nous pouvons donc expliquer le décalage spectral observé dans ces expériences lorsque I_p augmente par une modification de la condition d'accord de phase induite par les porteurs chauds.

II.8 Conclusion

Lors de nos expériences de redressement optique d'impulsions lasers femtosecondes intenses, nous avons clairement mis en évidence l'influence de l'intensité de l'impulsion redressée sur le spectre et l'énergie THz émis en sortie du cristal.

Nous avons notamment constaté que le spectre THz se décalait progressivement vers les basses fréquences lorsque l'intensité de l'impulsion laser génératrice augmentait, ceci indépendamment de l'épaisseur du cristal. De tels spectres anormalement centrés à basse fréquence (autour de 1 THz au lieu de 2.3 THz selon la condition d'accord de phase) avaient déjà été présentés dans la littérature, mais sans avoir pour autant été interprétés. Nos expériences suggèrent que l'absorption à deux photons de l'impulsion à 800 nm et les porteurs libres qui en découlent sont à l'origine des comportements observés. En effet, nous avons constaté qu'une onde pompe intense était atténuée au cours de sa propagation dans le cristal et que l'évolution du spectre THz présentait un phénomène de saturation à des intensités comparables à l'intensité de saturation de l'absorption à deux photons. Les expériences pompe optique - sonde THz ont révélé que l'absorption de l'onde THz par les porteurs libres était globalement uniforme sur la gamme spectrale considérée et qu'elle ne pouvait donc pas être responsable du décalage spectral observé. Nous en sommes donc arrivés à la conclusion que seule une modification de la condition d'accord de phase par les porteurs pouvait expliquer l'évolution du spectre. Ainsi, afin de mieux comprendre l'influence des porteurs libres sur la génération de l'onde THz , nous avons été amenés à réaliser des expériences du type pompe optique - génération THz . Ces expériences ont clairement montré que seuls les porteurs chauds sont susceptibles de modifier la condition d'accord de phase, entraînant alors un décalage du spectre vers les basses fréquences. Comme l'impulsion THz générée reste toujours dans le sillage immédiat de l'impulsion laser, elle subit donc fortement l'influence de ces porteurs chauds, ce qui explique le décalage spectral observé lorsque I_p , et donc la densité de porteurs, augmentent.

En plus du décalage spectral, nous avons également mis en évidence un écart à l'évolution quadratique de l'énergie THz avec l'intensité laser pour des cristaux épais. Nous avons constaté de manière surprenante qu'un cristal de 200 μm avait un rendement de conversion en énergie comparable à celui d'un cristal de 1 mm pour de fortes valeurs de l'intensité laser. D'après ce qui précède, on peut attribuer à ces comportements une origine double : la déplétion de l'onde pompe par absorption à deux photons qui augmente avec l'épaisseur du cristal (jusqu'à 70% d'absorption dans un cristal de 1 mm) et l'absorption de l'onde THz par le gaz de porteurs libres en cours de thermalisation. En effet, les expériences pompe-sonde et pompe optique-génération THz ont révélé que la thermalisation du gaz d'électrons libres et la relaxation des porteurs vers le minimum de la bande de conduction s'accompagnait d'une importante augmentation de l'absorption dans le domaine THz . Comme la durée de l'impulsion THz augmente avec l'épaisseur du cristal, il paraît évident que l'onde THz est plus sensible à l'absorption des porteurs froids dans un cristal épais que dans un cristal fin.

Nous avons donc montré dans ce chapitre la complexité du processus de génération de l'onde THz où interviennent différents mécanismes tels que la déplétion de l'impulsion laser

génératrice au cours de sa propagation, l'absorption de l'onde *THz* par les porteurs libres qui thermalisent et la modification de la condition d'accord de phase induite par les porteurs chauds.

Bibliographie

- [1] K. Reimann, "Table-top sources of ultrashort THz pulses," *Reports on Progress in Physics* **70**, 1597-1632 (2007).
- [2] F. G. Sun, W. Ji and X. C. Zhang, "Two-photon absorption induced saturation of THz radiation in ZnTe," *Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, CLEO*, 479-80 (2000).
- [3] M. C. Hoffmann, K. L. Yeh, J. Hebling and K. A. Nelson, "Efficient terahertz generation by optical rectification at 1035 nm," *Optics Express*, **15**(18), 11706-13 (2007).
- [4] Q. Xing, L. Lang, Z. Tian, N. Zhang, S. Li, K. Wang, L. Chai and Q. Wang, "The effect of two-photon absorption and optical excitation area on the generation of THz radiation," *Optics Communication*, **267**, 422-26 (2006).
- [5] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob and H. G. Roskos, "Large-area electro-optic ZnTe terahertz emitters," *Optics Express*, **13**(14), 5353-62 (2005).
- [6] A. Nahata, A. S. Weling and T. F. Heinz, "A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling," *Applied Physics Letters* **69**(16), 2321-23 (1996).
- [7] J. Ahn, A. V. Efimov, R. D. Averitt, and A. J. Taylor, "Terahertz waveform synthesis via optical rectification of shaped ultrafast laser pulses," *Optics Express* **11**(20), 2486-96 (2003).
- [8] R. A. Akhmedzhanov, A. I. Korytin, A. G. Litvak, A. M. Sergeev and E. V. Suvorov, "Generation and detection of ultrashort pulses of electromagnetic field in the terahertz range and their application for spectroscopy," *Radiophysics and Quantum Electronics* **48**(10), 837-43 (2005).
- [9] A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R. U. A. Khan and P. Gunter, "Generation of terahertz pulses through optical rectification in organic DAST crystals : theory and experiment," *Journal of the Optical Society of America B* **23**(9), 1822-35 (2006).
- [10] J. L. Coutaz et al, *Optoélectronique térahertz*, (EDP Sciences, 2008).
- [11] D. T. F. Marple, "Refractive index of ZnSe, ZnTe, and CdTe," *Journal of Applied Physics* **35**(3), 539-42 (1964).
- [12] B. Gu, Y. X. Fan, J. Chen, H. T. Wang, J. He and W. Ji, "Z-scan theory of two-photon absorption saturation and experimental evidence," *Journal of Applied Physics* **102**(083101), 1-5 (2007).
- [13] J. F. Lami, P. Gilliot and C. Hirlimann, "Observation of Interband Two-Photon Absorption Saturation in CdS," *Physical Review Letters* **77**(8), 1632-35 (1996).
- [14] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T. H. Wei, J. Wang, J. Young and E. W. Van Stryland, "Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe," *Journal of the Optical Society of America B* **9**(3), 405-14 (1992).
- [15] M. Schall and P. U. Jepsen, "Above-band gap two-photon absorption and its influence on ultrafast carrier dynamics in ZnTe and CdTe," *Applied Physics Letters* **80**(25), 4771-73 (2002).

- [16] P. N. Saeta, J. F. Federici, B. I. Greene and D. R. Dykaar, "Intervalley scattering in GaAs and InP probed by pulsed far-infrared transmission spectroscopy," *Applied Physics Letters* **60**(12), 1477-79 (1992).
- [17] M. Wraback, H. Shen, J. C. Carrano, C. J. Collins, J. C. Campbell, R. D. Dupuis, M. J. Schurman and I. T. Ferguson, "Time-resolved electroabsorption measurement of the transient electron velocity overshoot in GaN," *Applied Physics Letters* **79**(9), 1303-05 (2001).
- [18] E. Knoesel, M. Bonn, J. Shan and T. F. Heinz, "Charge Transport and Carrier Dynamics in Liquids Probed by THz Time-Domain Spectroscopy," *Physical Review Letters* **86**(2), 340-43 (2001).
- [19] M. C. Beard, G. M. Turner and C. A. Schmuttenmaer, "Terahertz Spectroscopy," *Journal of Physical Chemistry B* **106**(29), 7146-59 (2002).
- [20] H. Nemeč, F. Kadlec and P. Kuzel, "Methodology of an optical pump-terahertz probe experiment : An analytical frequency-domain approach," *Journal of Chemical Physics* **117**(18), 8454-66 (2002).
- [21] R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstreiter and A. Leitenstorfer, "How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma," *Nature* **414**, 286-89 (2001).
- [22] J. L. Coutaz et al, *Optoélectronique térahertz* p 228-229, (EDP Sciences, 2008).
- [23] P. Drude , "The theory of metals," *Annalen der Physik* **1**(566) (1900).
- [24] L. Yin and G. P. Agrawal, "Impact of two-photon absorption on self-phase modulation in silicon waveguides," *Optics Letters* **32**(14), 2031-33 (2007).
- [25] G. P. Agrawal et al, *Nonlinear fiber optics*, (Academic Press, 1989).
- [26] C. Le Blanc, "Principes et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde haute intensité basée sur le Saphir dopé au Titane," Thèse, Ecole Polytechnique (1993).
- [27] M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland, "Dispersion and Band Gap Scaling of the Electronic Kerr Effect in Solids associated with Two-Photon Absorption," *Physical Review Letters* **65**(1), 96-99 (1990).
- [28] N. W. Ashcroft and D. Mermin, *Physique des solides*, (EDP Sciences, 2002).
- [29] J. P. Caumes, L. Videau, C. Rouyer and E. Freysz, "Kerr-Like Nonlinearity Induced via Terahertz Generation and the Electro-Optical Effect in Zinc Blende Crystals," *Physical Review Letters* **89**(4), 047401 1-4 (2002).

Chapitre III

MISE EN FORME D'IMPULSIONS FEMTOSECONDES

Depuis de nombreuses années, les impulsions lumineuses femtosecondes sont largement employées dans différents domaines de l'interaction lumière-matière tels que la physique moléculaire, la photochimie ou encore la biologie [1]. Cependant, dans un grand nombre d'applications, la structure même de l'impulsion ultra-brève joue un rôle majeur et sa maîtrise parfaite permet d'affiner, voire de contrôler, l'interaction lumière-matière. Le façonnage d'impulsions, réalisé par la modification des paramètres du champ électrique de l'impulsion (amplitude, phase, polarisation), a été remarquablement appliqué au domaine en émergence du contrôle cohérent et du contrôle optimal dont le but principal est le contrôle et l'optimisation des processus photo-induit dans des systèmes quantiques en adaptant judicieusement la forme de l'impulsion laser excitatrice [2, 3]. Il a notamment permis d'étudier et de manipuler avec succès des systèmes atomiques [4, 5, 6, 7], moléculaires [3, 8, 9] et biologiques [10].

Ce chapitre est consacré à la description du dispositif de mise en forme développé au laboratoire au cours de cette thèse et utilisé pour contrôler la génération d'impulsions *THz* par redressement optique.

Pour façonner une impulsion laser, nous disposons de quelques méthodes relativement simples comme la propagation dans un milieu dispersif qui permet le contrôle de la durée et de la dérive de fréquence de l'impulsion, ou l'utilisation d'un interféromètre de Michelson qui permet la création d'une paire d'impulsions de délai ajustable [11]. Cependant, les paramètres de contrôle de ces modulateurs étant relativement peu nombreux, les possibilités de mise en forme restent très limitées. Notre attention s'est donc portée sur un dispositif présentant un plus grand nombre de paramètres ajustables composé d'un modulateur à cristaux liquides (Spatial Light Modulator noté SLM) et d'une ligne 4f, appelée encore ligne à dispersion nulle. Une mise en forme directe dans le domaine temporel à une échelle femtoseconde n'étant pas envisageable, cette technique repose sur une mise en forme indirecte dans le domaine spectral. Nous verrons ultérieurement que l'utilisation d'un seul masque à cristaux liquides permet de contrôler uniquement la phase spectrale de l'impulsion laser. Bien qu'une mise en forme à la fois en phase et en amplitude à l'aide de deux SLM permettent de générer presque tous les profils temporels souhaités [12], notre dispositif permet cependant la synthèse d'un grand nombre de formes temporelles.

Le système laser utilisé pour la mise en forme des impulsions est présenté en détail dans la thèse d'Emilie Marmois [13]. Il s'agit d'une chaîne laser amplifiée conçue par Femtolasers. L'amplification des impulsions provenant d'un oscillateur femtoseconde titane : saphir est réalisée à l'aide d'un amplificateur multi-passages et repose sur le principe de l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence ou CPA (chirped pulses amplification). Les caractéristiques des

impulsions de sortie sont les suivantes :

- longueur d'onde centrale : $\lambda_0 = 785$ nm.
- largeur spectrale à mi-hauteur : $\Delta\lambda = 40$ nm.
- durée d'impulsion (largeur à mi-hauteur en intensité) : $\tau_p = 30$ fs.
- taux de répétition : 400 Hz.
- énergie par impulsion : $400 \mu\text{J}$.

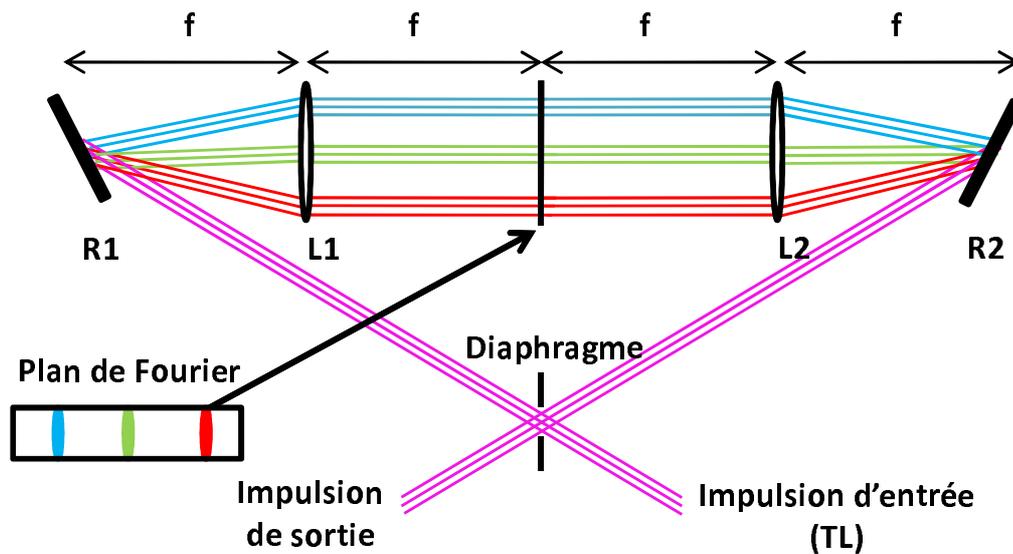
Nous allons maintenant décrire le dispositif de mise en forme ainsi que le masque à cristaux liquides, puis nous présenterons les tests effectués avec notre façonneur ainsi que ses principales limitations avant de présenter son utilisation dans une configuration en boucle fermée.

III.1 La ligne $4f$

Cette partie est consacrée à la description de la ligne à dispersion nulle développée au cours de cette thèse. Après avoir présenté de manière générale le principe du dispositif expérimental et la géométrie retenue, nous apporterons quelques explications sur la procédure d'alignement. Toutes les informations nécessaires à la construction d'un tel dispositif sont cependant décrites de manière exhaustive dans la thèse d'Antoine Monmayrant [14].

III.1.1 Principe de base

Une ligne $4f$ se compose en général de deux éléments dispersifs identiques (2 réseaux) et de deux éléments de focalisation. Son principe est représenté sur la figure III.1. L'impulsion laser femtoseconde incidente, limitée par transformée de Fourier (TL) et possédant un spectre large, est tout d'abord dispersée angulairement par un premier réseau ($R1$) placé dans le plan focal objet d'une lentille cylindrique $L1$. $L1$ permet de rendre les différentes composantes spectrales parallèles entre elles tout en les focalisant dans son plan focal image appelé plan de Fourier. Fondamentalement, le rôle de ce premier couple lentille-réseau est d'effectuer la transformée de Fourier du champ électrique associé à l'impulsion à mettre en forme. L'utilisation d'un second couple lentille ($L2$)-réseau ($R2$), symétrique du premier par rapport au plan de Fourier, permet de reconstruire l'impulsion dans le domaine temporel et de récupérer un faisceau bien collimaté en sortie de la ligne. Un tel dispositif est appelé ligne à dispersion nulle car il n'introduit aucune dispersion. Un de ses intérêts est qu'il permet d'avoir accès au spectre de l'impulsion. En effet, dans le plan de Fourier les composantes spectrales de l'impulsion sont focalisées et séparées spatialement au mieux. Dans ce plan, la pulsation et la position transverse sont couplées : toute modification du profil spatial affecte le profil spectral. C'est donc l'endroit où placer un masque (ou un modulateur) si l'on souhaite façonner l'impulsion. En fonction du modulateur choisi, l'expérimentateur peut contrôler uniquement la phase de l'impulsion, la phase et l'amplitude de l'impulsion [12] et même sa polarisation [15]. Nous avons choisi de travailler avec un masque à cristaux liquides de chez Jenoptik constitué de 640 pixels. Les pixels font 10 mm de haut par 97 μm de large, et sont séparés par des interstices de 3 μm de large. Sa zone active est de 10 mm par 64 mm. Son principe de fonctionnement sera décrit dans la partie suivante. Il permet de moduler uniquement la phase spectrale de l'impulsion.

FIGURE III.1 – Schéma de principe d'une ligne $4f$ ou ligne à dispersion nulle.

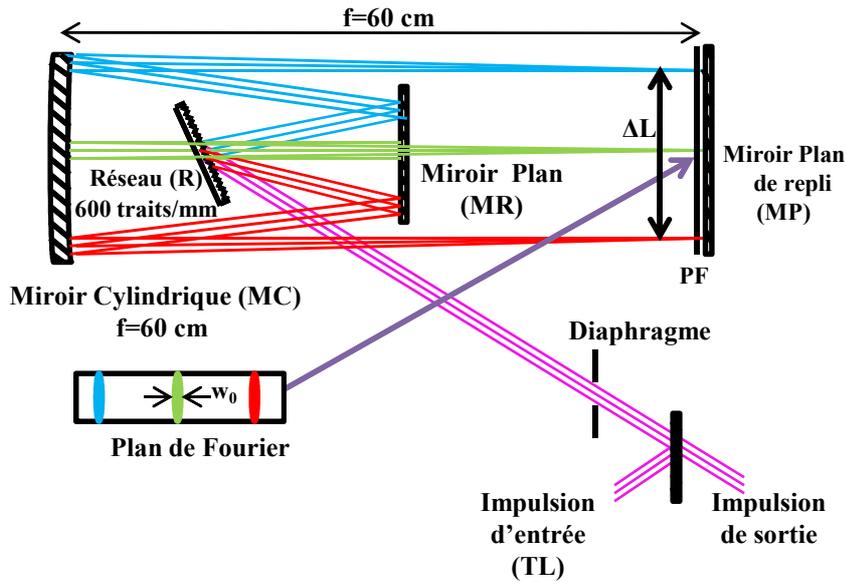
III.1.2 Géométrie utilisée

Comme nous utilisons des impulsions ultra-courtes (30 fs), nous avons remplacé chaque lentille par un couple miroir plan (MR) - miroir cylindrique (MC) afin de travailler uniquement en réflexion et ainsi éviter toute dispersion et toute aberration chromatique. Dans cette configuration, les composantes spectrales sont “imagées” au mieux [14]. Un “petit” inconvénient de cette géométrie réside dans le changement de hauteur que doit introduire (MR). Dans ce cas, tous les composants optiques ne sont pas sur une même ligne horizontale (cf. figure III.2).

Dans un souci de réduction de l'encombrement, nous avons décidé de replier la ligne $4f$, c'est-à-dire de travailler avec une demi-ligne, en introduisant un miroir plan de repli (MP) juste après le plan de Fourier (PF) [16]. Cette configuration présente en plus l'avantage de faciliter l'alignement car le faisceau retour suit le trajet du faisceau aller. Les angles sur le réseau sont donc identiques par construction. Le principal inconvénient de notre dispositif réside dans le double passage dans le SLM qui divise sa dynamique par deux. En effet, la tension commandant le déphasage est digitalisée. Le plus petit déphasage que l'on peut introduire correspond à l'application d'un digit de tension : en double passage il est deux fois plus grand qu'en simple passage [14]. La géométrie utilisée pour la ligne à dispersion nulle est représentée sur la figure III.2. L'encombrement de notre dispositif est donc de f cm alors qu'il est de $4f$ cm dans le cas de la configuration de la figure III.1.

III.1.3 Choix des optiques

Après avoir retenu une géométrie particulière pour notre ligne à dispersion nulle et choisi le façonneur, nous allons déterminer les caractéristiques de nos éléments optiques, c'est-à-dire le pas d du réseau et la focale f du miroir cylindrique permettant d'associer ces deux systèmes. Afin de réaliser le plus grand nombre de mises en forme souhaitées, il faut disposer de la meilleure

FIGURE III.2 – Géométrie de la ligne $4f$ adoptée pour notre façonneur.

résolution spectrale possible. Pour cela, notre dispositif doit satisfaire au mieux deux conditions.

- Il est tout d'abord indispensable d'étaler au maximum le spectre de l'impulsion sur la barrette de cristaux liquides du SLM. L'étalement spatial ΔL du spectre au niveau du plan de Fourier est le suivant [12, 14] :

$$\Delta L = f \tan \left(\frac{\Delta \lambda}{d \cos \theta_{d0}} \right), \quad (\text{III.1})$$

où $\Delta \lambda$ représente la largeur à mi-hauteur en intensité du spectre de l'impulsion et θ_{d0} l'angle de diffraction introduit par le réseau pour la longueur d'onde centrale λ_0 . Afin de ne pas tronquer le spectre, il est préférable que ΔL corresponde à un tiers de la longueur L de la barrette.

- Il est également indispensable de bien choisir la taille des composantes spectrales au niveau du plan de Fourier. Il faut que leur waist soit adapté à la taille des pixels. En effet, si une longueur d'onde est étalée sur plusieurs pixels la résolution spectrale est moins bonne. Au contraire, une composante spectrale trop focalisée entraîne l'exaltation des effets des interstices. Le waist w_0 d'une composante spectrale dans le plan de Fourier s'écrit de la manière suivante [17] :

$$w_0 = \frac{\lambda_0 f \cos \theta_i}{\pi w_{in} \cos \theta_{d0}}, \quad (\text{III.2})$$

où w_{in} représente le waist du faisceau d'entrée et θ_i l'angle d'incidence sur le réseau. L'optimum est obtenu lorsque w_0 est de l'ordre de $\ell/3$ où ℓ représente la distance entre deux pixels. Le couple réseau-miroir cylindrique doit donc satisfaire également à cette deuxième condition.

Dans le cas particulier de notre façonneur, les impulsions ont une largeur spectrale $\Delta \lambda = 40$ nm et une longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 785$ nm. Le waist du faisceau laser est $w_{in} = 4$ mm. L'angle d'incidence sur le réseau est $\theta_i = 5^\circ$ et l'angle diffracté θ_{d0} est de l'ordre de 24° . Afin de satisfaire au mieux aux deux conditions mentionnées ci-dessus, nous avons choisi un réseau

ayant 600 traits par mm et un miroir cylindrique de focale $f = 60$ cm. Avec ces valeurs, nous obtenons finalement $w_0 = 41 \mu\text{m}$ et un étalement spatial ΔL de l'ordre de 16 mm.

III.1.4 Procédure d'alignement de la ligne $4f$ repliée

Le réglage de la ligne $4f$ étant très délicat, nous apportons dans cette partie quelques explications sur la procédure d'alignement de cette dernière. Comme mentionné précédemment, notre demi-ligne est constituée d'un réseau de diffraction R et d'un miroir cylindrique MC . R est placé dans le plan focal objet de MC à l'aide d'un miroir plan de repli qui fait face à MC , ce miroir plan introduisant le changement de hauteur du faisceau nécessaire lorsqu'on travaille avec la géométrie de la figure III.2. Avant toute chose, il faut fixer la hauteur du faisceau incident sur R et la hauteur de MC . Les supports du réseau et du miroir cylindrique doivent permettre de régler finement tous les degrés de liberté. De plus, le support de R doit permettre un retour du faisceau réfléchi par le miroir plan, ce faisceau étant légèrement surélevé par rapport au faisceau incident, ainsi qu'une rotation de R autour de sa normale. Dans notre cas, la hauteur de MC est fixée par la hauteur du SLM et celle du faisceau incident sur le réseau lui est très légèrement inférieure. Ensuite, il faut déterminer l'angle entre le faisceau entrant et l'axe de la ligne (angle qui est égal à la différence entre l'angle d'incidence choisi et l'angle de diffraction correspondant). De plus, deux diaphragmes placés en amont de la ligne définissent le trajet du faisceau d'entrée dans cette dernière.

Pour effectuer le réglage du réseau R , il est préférable de disposer d'un faisceau quasi-monochromatique centré à la longueur d'onde centrale (785 nm dans notre cas). Nous avons choisi de travailler avec le faisceau provenant de l'oscillateur en mode continu. Tout d'abord, il faut que les traits du réseau soient bien verticaux afin que la diffraction d'un faisceau horizontal se fasse dans le même plan. Pour cela, on commence par renvoyer l'ordre 0 sur lui-même par autocollimation. Le faisceau réfléchi doit alors passer par les deux diaphragmes placés précédemment. Il faut ensuite vérifier, en tournant le réseau, que les autres ordres de diffraction passent bien (en hauteur) par les diaphragmes. Si ce n'est pas le cas, il est nécessaire de tourner le réseau autour de sa normale. Il faut ensuite retoucher légèrement au réglage de l'ordre 0 et ainsi de suite jusqu'à obtention du résultat désiré. Il faut ensuite régler l'angle d'incidence sur le réseau en tournant ce dernier jusqu'à ce que la longueur d'onde centrale soit diffractée suivant l'axe de la ligne. Notre réseau est blasé à l'ordre 1 afin de récupérer un maximum d'intensité diffractée à cet ordre. Une fois ces étapes accomplies, il ne faut plus toucher au réseau.

L'étape suivante consiste à positionner le miroir plan de repli (MR). Le support de ce dernier doit permettre une translation fine suivant l'axe de la ligne. La distance réseau-miroir plan est libre mais il faut garder en tête que la distance (optique) entre le réseau et le miroir cylindrique doit être de 60 cm (f). Nous avons choisi de placer MR à 20 cm de R ($f/3$) afin de ne pas introduire une différence de hauteur trop importante entre les faisceaux incident et réfléchi. Pour conserver le faisceau réfléchi sur l'axe de la ligne, nous avons réglé la vis latérale de MR par autocollimation en superposant les faisceaux incident et réfléchi sur le réseau. Cette technique n'est possible que si l'on dispose d'un faisceau quasi monochromatique. Sinon, l'étalement du spectre serait trop important et le réglage deviendrait difficile.

Il faut ensuite bien positionner le miroir cylindrique sur l'axe de la ligne, à 40 cm du miroir plan. Pour vérifier que le faisceau réfléchi reste bien sur l'axe, la vis latérale de MC peut

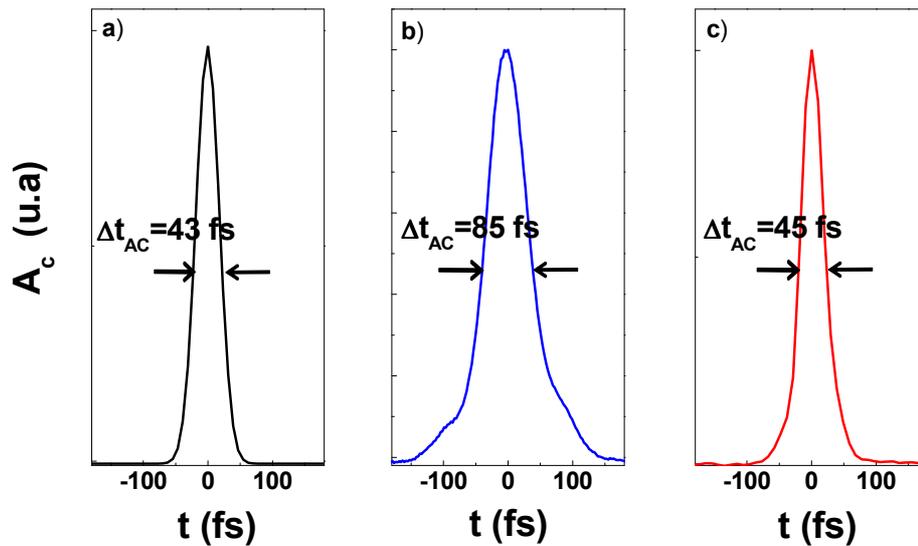


FIGURE III.3 – Traces d'autocorrélation a) impulsion TL à l'entrée de la ligne. b) impulsion en sortie de la ligne avant compression avec MR. c) impulsion en sortie de la ligne après compression

être réglée en renvoyant le faisceau sur lui-même et en vérifiant la superposition sur *MR*. Il reste ensuite à régler la hauteur en ramenant le faisceau à la hauteur souhaitée (imposée par le SLM). Un dernier réglage reste à faire en utilisant l'impulsion laser sortant de l'amplificateur qui possède un spectre large. En champ lointain, le spectre réfléchi par *MC* doit rester horizontal. Si ce n'est pas le cas, il est nécessaire de tourner légèrement *MC* autour de sa normale.

Il reste encore à insérer le miroir plan (*MP*) au niveau du plan de Fourier pour replier la ligne $4f$. Il faut cependant veiller à laisser un minimum de place pour positionner le SLM. Le réglage de *MP* ne pose pas de grande difficulté. Il suffit de s'assurer que le faisceau retour suit bien le parcours du faisceau aller. Nous avons cependant introduit un très léger décalage en hauteur afin de pouvoir séparer les deux faisceaux.

Pour terminer l'alignement de la ligne, il faut s'assurer que cette dernière n'induit aucune dispersion, c'est-à-dire qu'il y a bien la distance f entre deux optiques consécutives. Pour cela, il faut vérifier qu'une impulsion limitée par transformée de Fourier (TF) en entrée de la ligne l'est encore en sortie. La mesure des durées d'impulsions est réalisée à l'aide d'un autocorrélateur monocoup. Les figure III.3 a) et b) représentent respectivement les traces d'autocorrélation A_c des impulsions en entrée et en sortie de la ligne repliée.

Nous constatons que l'alignement n'est pas encore parfait car l'impulsion en sortie de la ligne présente une largeur à mi-hauteur deux fois supérieure à l'impulsion incidente. Cependant, en déplaçant légèrement *MR* il est possible d'optimiser le réglage et d'obtenir des impulsions presque aussi courtes qu'en entrée (cf. figure III.3 c)). On peut relier la largeur à mi-hauteur de la trace d'autocorrélation Δt_{AC} à la durée τ_p de l'impulsion en faisant une hypothèse sur le profil temporel de l'impulsion. Pour un profil gaussien, $\Delta t_{AC}/\tau_p = \sqrt{2}$. Nous vérifions ainsi que la durée des impulsions en sortie de la ligne est de l'ordre de $\tau_p = 30$ fs.

Il ne reste plus maintenant qu'à insérer le masque à cristaux liquides au niveau du plan

de Fourier, ce qui ne pose généralement pas de grandes difficultés. Cependant, si le SLM entraîne une légère augmentation de la durée des impulsions en sortie de la ligne, l'utilisateur doit réajuster la position de MR.

III.2 Le masque à cristaux liquides

Cette partie est consacrée à la description du masque à cristaux liquides et à son principe de fonctionnement. Le SLM est composé d'une fine couche ($9 \mu\text{m}$) de cristaux liquides en phase nématique. Il est constitué de 640 pixels, chaque pixel ayant une largeur w_p de $97 \mu\text{m}$ et une hauteur h de 10 mm, la distance entre deux pixels successifs w_g étant de $3 \mu\text{m}$. Les dimensions de la zone active sont donc : 10 mm par 64 mm (cf. figure III.4). Les cristaux liquides sont placés entre deux substrats en verre. L'un des substrats porte 640 électrodes transparentes permettant d'appliquer une tension différente sur chaque pixel et donc de les contrôler indépendamment les uns des autres. L'autre substrat est constitué d'une seule électrode qui sert de masse. Les cristaux liquides ont une forme de bâtonnet allongé et sont orientés, par construction, perpendiculairement au substrat et suivant l'axe \vec{a}_0 , parallèlement à l'axe \vec{e}_x . Lorsque l'utilisateur applique une tension V sur un pixel, les cristaux liquides ont tendance à s'orienter dans le sens du champ électrique ainsi créé, de l'axe \vec{a}_0 vers l'axe \vec{e}_z , entraînant alors une modification de l'indice de réfraction vu par une onde se propageant suivant \vec{e}_z et polarisée suivant \vec{e}_x . En appliquant des tensions différentes sur les pixels, il est ainsi possible d'introduire une différence de chemin optique entre les différentes composantes spectrales et donc de contrôler leur déphasage relatif. Les pixels se comportent donc comme des lames d'onde commandées en tension ayant toutes les mêmes lignes neutres. Pour une longueur d'onde λ , le déphasage $\Delta\Phi$ introduit par la lame est donné par :

$$\Delta\Phi(\lambda, V) = \frac{2\pi\Delta n(\lambda, V)e}{\lambda}, \quad (\text{III.3})$$

où Δn représente la différence d'indice entre l'axe lent et l'axe rapide et e représente l'épaisseur de cristaux liquides traversée. Les gaps entre pixels ne sont, en revanche, pas contrôlables. Dans ces régions, les cristaux liquides se comportent comme si aucune tension n'était appliquée. Ils ne peuvent donc introduire aucun déphasage [14].

Pour une onde incidente polarisée suivant l'axe \vec{e}_x , le pixel n se comporte comme un masque de phase de fonction de transfert F_n donnée par [18] :

$$F_n = \exp(i\Delta\Phi(V_n)). \quad (\text{III.4})$$

Le constructeur fournit la calibration du déphasage introduit en fonction de la tension appliquée à un pixel et de la longueur d'onde de la lumière incidente. Cette calibration peut également être déterminée expérimentalement comme indiqué dans la référence [14].

Pour réaliser un dispositif permettant de moduler la phase et l'amplitude, il faut combiner deux SLM dont les cristaux liquides ont des directions d'ancrage à $+45^\circ$ (suivant \vec{a}_2) et -45° (suivant \vec{a}_1) de la direction de polarisation de la lumière incidente parallèle à \vec{e}_x , suivis d'un polariseur parallèle à \vec{e}_x en sortie de la ligne 4f. Dans ce cas, la fonction de transfert pour le

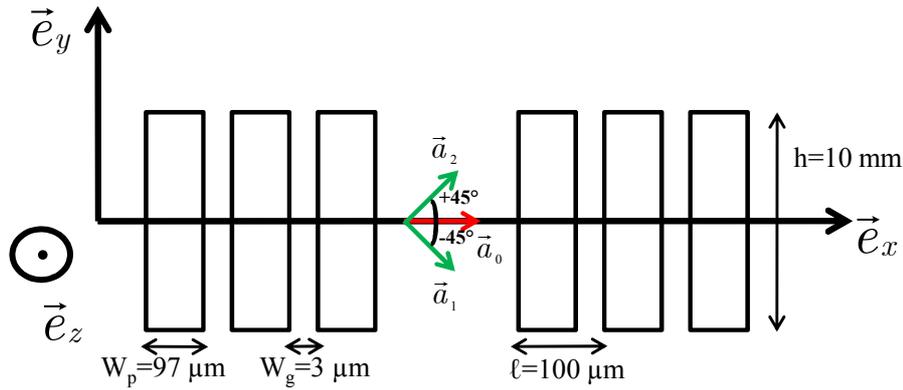


FIGURE III.4 – Modulateur à cristaux liquides. \vec{a}_0 est l'axe d'ancrage des cristaux liquides pour une modulation en phase uniquement. Quant à \vec{a}_1 et \vec{a}_2 , ils correspondent aux axes d'ancrage des deux masques à cristaux liquides pour une modulation en phase et en amplitude.

pixel n est donné par [7] :

$$F_n = \exp\left(\frac{i\left[\Delta\Phi_n^{(1)} + \Delta\Phi_n^{(2)}\right]}{2}\right) \cos\left(\frac{\left[\Delta\Phi_n^{(1)} - \Delta\Phi_n^{(2)}\right]}{2}\right), \quad (\text{III.5})$$

où $\Delta\Phi_n^{(1)}$ et $\Delta\Phi_n^{(2)}$ sont les retards introduits respectivement par les SLM 1 et 2 pour le pixel n . Dans cette expression, la dépendance des retards en fonction des tensions a été omise.

En résumé, notre dispositif de mise en forme, présenté sur la figure III.5, est constitué d'une ligne $4f$ repliée et d'un seul SLM permettant de moduler uniquement la phase spectrale de l'impulsion laser. Le champ électrique $E_{out}(\omega)$ en sortie de ce façonneur peut s'exprimer en fonction du champ électrique incident $E_{in}(\omega)$ de la manière suivante :

$$E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega) \exp(i\Delta\Phi(\omega)), \quad (\text{III.6})$$

où $\exp(i\Delta\Phi(\omega))$ représente la fonction de transfert associée à notre façonneur. Toutes les composantes spectrales initialement comprises dans l'impulsion incidente à 800 nm se retrouvent dans l'impulsion en sortie : l'énergie est donc conservée.

Dans de nombreuses expériences, il peut être intéressant de disposer d'une impulsion mise en forme centrée à une autre longueur d'onde. Pour cela, il est possible d'utiliser une mise en forme initiale sur une impulsion centrée à 800 nm pour générer une impulsion façonnée à une autre longueur d'onde (par exemple à 400 nm) à l'aide d'un processus non-linéaire. Cependant, il faut bien garder en tête que pour chaque mise en forme l'efficacité du processus de conversion de fréquence est différent et donc que l'énergie n'est plus conservée.

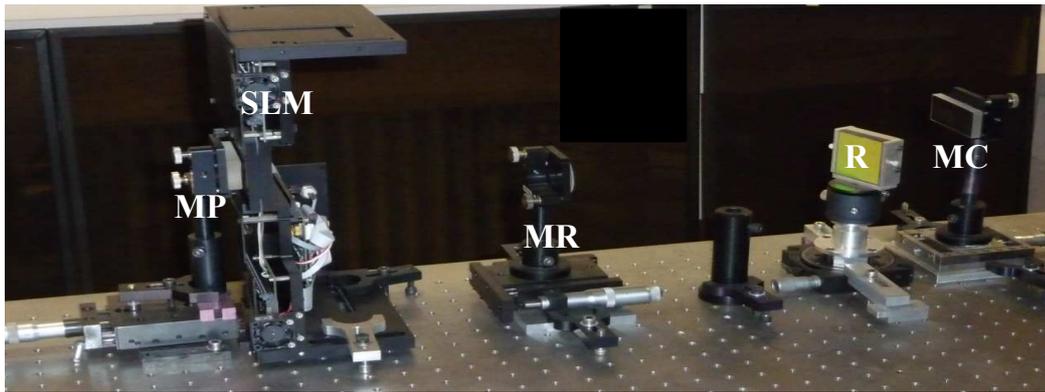


FIGURE III.5 – Photographie de la ligne à dispersion nulle repliée et du masque à cristaux liquides. R représente le réseau de diffraction, MC le miroir cylindrique, MR le miroir plan et MP le miroir permettant de replier la ligne.

III.3 Calibration de la dispersion

Pour utiliser correctement notre façonneur, il faut déterminer quel pixel contrôle quelle composante spectrale de l'impulsion à mettre en forme. Autrement dit, il faut déterminer la relation de dispersion au niveau du plan de Fourier, c'est-à-dire la relation entre la position transverse X et la pulsation ω .

Pour cela, nous avons suivi la procédure suivante : nous avons tout d'abord placé en entrée de la ligne une lame demi-onde (appelée $\lambda/2$) afin de tourner de 45° la direction de polarisation \vec{e}_x de l'impulsion incidente et un polariseur orienté suivant l'axe \vec{e}_1 à 45° de \vec{e}_x . Nous avons enfin placé un analyseur en sortie de la ligne orienté suivant \vec{e}_2 à 90° de \vec{e}_1 (voir figure III.6). Nous sommes donc entre polariseur et analyseur croisés : l'extinction est quasi-totale. L'idée consiste à introduire, à l'aide du SLM, un déphasage $\Delta\Phi_c$ bien choisi afin de rétablir une transmission maximum pour un certain nombre de pixels de positions connues. Il est ensuite aisé à l'aide d'un spectromètre de déterminer la relation entre la position sur le masque et la longueur

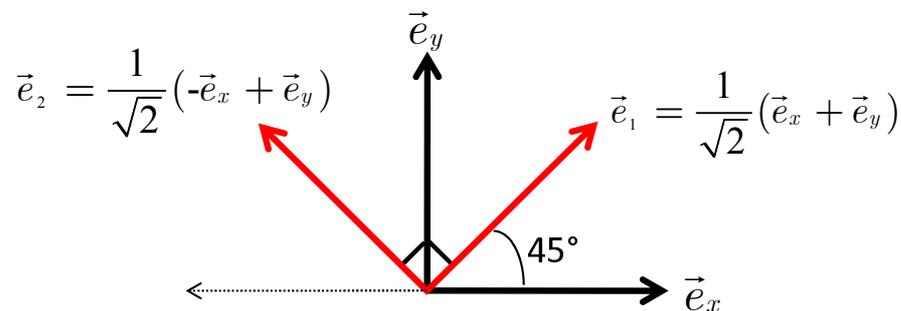


FIGURE III.6 – Calibration de la dispersion : \vec{e}_x est la direction de polarisation du faisceau incident, le polariseur en entrée de la ligne est orienté suivant \vec{e}_1 et l'analyseur en sortie de ligne est orienté suivant \vec{e}_2 .

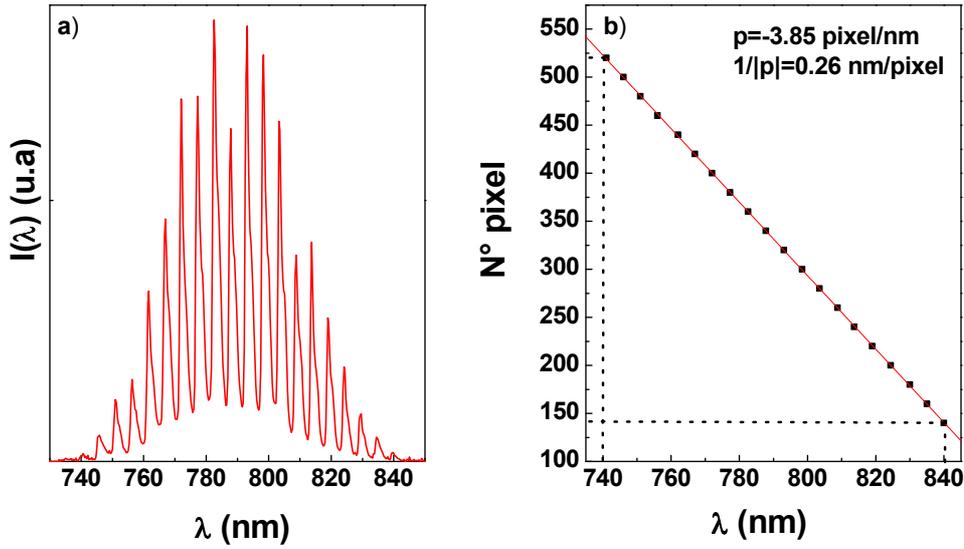


FIGURE III.7 – a) Spectre typique lors d'une calibration. b) Correspondance pixel-longueur d'onde, p étant le coefficient directeur de la régression linéaire.

d'onde. Il nous reste maintenant à déterminer la valeur du déphasage à appliquer. Après traversée du premier polariseur, le champ électrique associé à l'impulsion est polarisé suivant \vec{e}_1 . Après le double passage dans le SLM, la direction de polarisation \vec{e} du champ électrique est la suivante :

$$\vec{e} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\exp(i\Delta\Phi_c) \vec{e}_x + \vec{e}_y). \quad (\text{III.7})$$

Enfin, en sortie de l'analyseur le champ électrique est polarisé suivant \vec{e}' :

$$\vec{e}' = \frac{1}{2} (-\exp(i\Delta\Phi_c) + 1) \vec{e}_2, \quad (\text{III.8})$$

expression que l'on peut réécrire sous la forme :

$$\vec{e}' = \frac{1}{2} \left[\exp\left(\frac{-i\Delta\Phi_c}{2}\right) - \exp\left(\frac{i\Delta\Phi_c}{2}\right) \right] \exp\left(\frac{i\Delta\Phi_c}{2}\right) \vec{e}_2. \quad (\text{III.9})$$

L'intensité résultante I en sortie de l'analyseur est alors donnée par :

$$I = I_{in} \sin^2\left(\frac{\Delta\Phi_c}{2}\right), \quad (\text{III.10})$$

où I_{in} représente l'intensité lumineuse incidente sur le polariseur en entrée de la ligne. Pour obtenir une transmission maximale, on voit que le déphasage $\Delta\Phi_c$ résultant d'un double passage dans le masque doit être : $\Delta\Phi_c = \pi$. Autrement dit, on obtient une transmission maximale pour les longueurs d'ondes situées sur les pixels où l'on applique un saut de phase de $\frac{\pi}{2}$ et une transmission quasi-nulle partout ailleurs. La figure III.7 a) présente un spectre typique, mesuré après l'analyseur, obtenu lors d'une calibration. Le fond continu résulte de l'extinction, entre polariseur et analyseur croisés, qui n'est pas totale. Le point de départ de notre calibration consiste

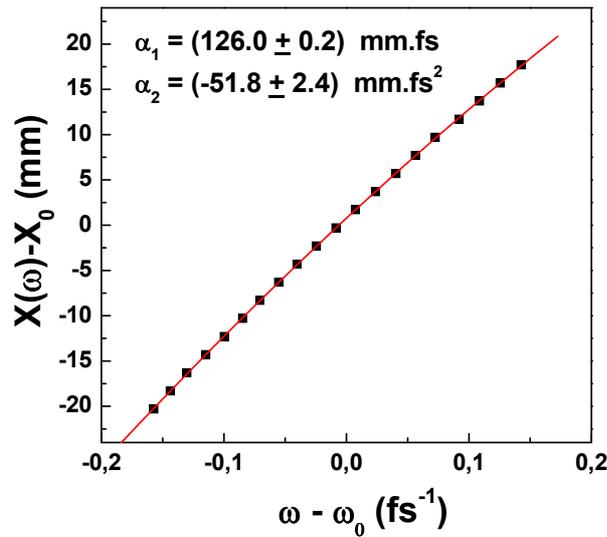


FIGURE III.8 – Position transverse des différentes composantes spectrales sur le masque en fonction de la pulsation.

à déterminer sur quel pixel se situe l’extrémité “rouge” du spectre. Pour cela, nous déplaçons progressivement un saut de phase de $\frac{\pi}{2}$ sur les pixels jusqu’à voir apparaître un pic sur le spectre transmis. Ainsi, le premier pic de transmission correspondant à une longueur d’onde de 840 nm est obtenu lorsque le saut de phase se situe au pixel 140. Ensuite, nous appliquons un saut de phase de $\frac{\pi}{2}$ sur 20 pixels, à partir du pixel numéro 140, espacés les uns des autres de 20 pixels. La longueur d’onde correspondant à l’extrémité “bleue” du spectre (740 nm) se situe alors sur le pixel numéro 520. Nous pouvons ainsi déterminer la correspondance pixel-longueur d’onde (figure III.7 b)). La figure III.8 représente la position transverse des différentes composantes spectrales sur le masque en fonction de la pulsation. Les points de cette figure sont utilisés pour déterminer la formule de dispersion liant X à ω . Dans le cas de notre façonneur, une régression à l’ordre 2 en $\omega - \omega_0$ de la forme :

$$X(\omega) - X_0 = \sum_{i=1}^2 \alpha_i (\omega - \omega_0)^i, \quad (\text{III.11})$$

où X_0 représente la position correspondant à la pulsation centrale ω_0 et α_1 et α_2 représentent respectivement la dispersion linéaire et non-linéaire, est suffisante. Nous obtenons expérimentalement : $\alpha_1 = (126.0 \pm 0.2) \text{ mm.fs}$ et $\alpha_2 = (-51.8 \pm 2.4) \text{ mm.fs}^2$. α_1 et α_2 peuvent s’exprimer en fonction du pas du réseau et de la focale du miroir cylindrique de la manière suivante [18] :

$$\alpha_1 = \frac{2\pi c f}{d\omega_0^2 \cos \theta_{d0}}, \quad (\text{III.12})$$

et

$$\alpha_2 = \frac{-2\pi c f}{d\omega_0^3 \cos \theta_{d0}}. \quad (\text{III.13})$$

En utilisant les paramètres de notre façonneur, on obtient théoriquement : $\alpha_1 = 129 \text{ mm.fs}$ et $\alpha_2 = -53.7 \text{ mm.fs}^2$. Nous observons un très bon accord entre la théorie et l'expérience. Bien que l'incertitude sur la valeur expérimentale de α_1 ne recouvre pas la valeur théorique, l'erreur est relativement faible (inférieure à 2.5%). Pour α_2 , la valeur théorique est comprise dans la barre d'erreur de la valeur expérimentale.

Cependant, si des écarts par rapport à la mise en forme programmée sont observés en sortie du façonneur, comme c'est le cas pour des façonneurs plus dispersifs [19, 20], il faut utiliser la formule de dispersion complète donnée par [14] :

$$X(\omega) - X_0 = f \tan \left[\arcsin \left(\frac{2\pi c}{\omega d} - \sin \theta_i \right) - \arcsin \left(\frac{2\pi c}{\omega_0 d} - \sin \theta_i \right) \right]. \quad (\text{III.14})$$

Pour la description des limitations du dispositif, nous nous limiterons à une dispersion linéaire au niveau du plan de Fourier de la forme :

$$X(\omega) - X_0 = \alpha(\omega - \omega_0), \quad (\text{III.15})$$

avec $\alpha = \alpha_1 = 126 \text{ mm.fs}$. En d'autres unités, la dispersion spectrale dans le plan de Fourier est de l'ordre de $1/|p| = 0.26 \text{ nm/pixel}$ (cf. figure III.7 b)).

Nous avons constaté une très bonne stabilité de la position du spectre sur le masque, la variation d'un jour à l'autre n'excédant pas un pixel.

III.4 Tests du dispositif

Notre dispositif de mise en forme est désormais bien réglé (il n'introduit aucune dispersion) et nous savons quel pixel agit sur quelle longueur d'onde. Dans cette partie, nous allons tester notre façonneur d'impulsions en appliquant des phases spectrales relativement simples.

III.4.1 Modulation de phase quadratique

L'impulsion incidente dans la ligne $4f$, de durée $\tau_p = 30 \text{ fs}$, est limitée par transformée de Fourier. Le premier test consiste à appliquer à cette impulsion une phase spectrale quadratique de la forme :

$$\varphi(\omega) = \frac{1}{2} \varphi_0^{(2)} (\omega - \omega_0)^2, \quad (\text{III.16})$$

où $\varphi_0^{(2)} = \left(\frac{d^2 \varphi}{d\omega^2} \right)_{\omega_0}$ et ω_0 représente la pulsation centrale. L'effet d'une telle mise en forme est d'allonger la durée de l'impulsion de τ_p à τ_s , avec [7] :

$$\tau_s = \tau_p \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \varphi_0^{(2)}}{\tau_p^2} \right)^2}. \quad (\text{III.17})$$

Pour caractériser l'impulsion mise en forme, nous avons utilisé une technique de corrélation intensimétrique ("cross-corrélation"). C'est une technique de mesure incomplète qui ne renseigne

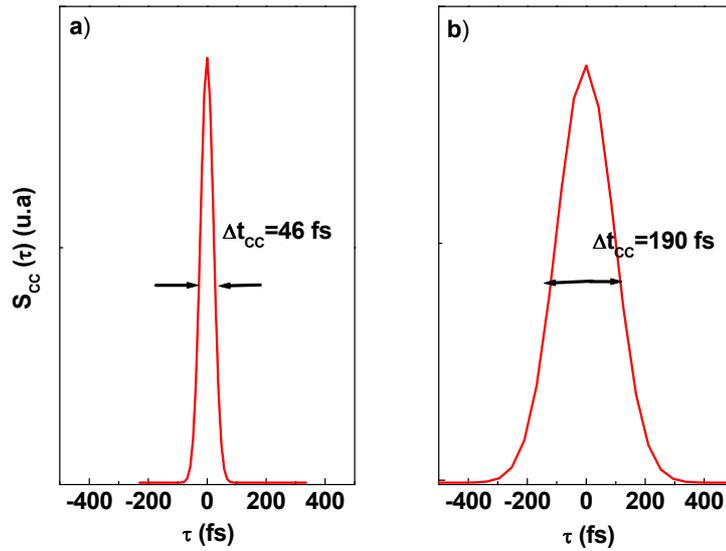


FIGURE III.9 – Traces de cross-corrélation : a) phase plate : $\varphi_0^{(2)} = 0 \text{ fs}^2$. b) phase quadratique : $\varphi_0^{(2)} = 2000 \text{ fs}^2$.

que sur la durée de l'impulsion. L'idée consiste à faire interagir dans un cristal non-linéaire (BBO type 1) deux impulsions différentes, l'une parfaitement connue, d'intensité $I_{ref}(t)$, et limitée par transformée de Fourier et l'autre mise en forme, d'intensité $I(t)$. L'intensité de seconde harmonique générée $I_{SHG}(t)$ en fonction du délai τ entre les deux impulsions s'écrit :

$$I_{SHG}(t, \tau) \propto I_{ref}(t) I(t - \tau). \quad (\text{III.18})$$

Cette dernière est détectée par une photodiode qui renvoie un signal $S_{CC}(\tau)$ tel que :

$$S_{CC}(\tau) \propto \int I_{ref}(t) I(t - \tau) dt. \quad (\text{III.19})$$

Avec deux impulsions de profil temporel gaussien et de largeur à mi-hauteur en intensité : τ_s et Δt_{ref} , le signal de cross-corrélation présente aussi un profil gaussien de largeur à mi-hauteur Δt_{CC} donné par :

$$\Delta t_{CC} = \sqrt{\tau_s^2 + (\Delta t_{ref})^2}. \quad (\text{III.20})$$

Nous avons appliqué à l'impulsion une phase quadratique telle que $\varphi_0^{(2)} = 2000 \text{ fs}^2$. D'après la formule III.17, on s'attend à trouver une durée d'impulsion $\tau_s \approx 187 \text{ fs}$. La figure III.9 représente la trace de cross-corrélation mesurée en sortie du façonneur. Un fit gaussien de cette trace donne : $\Delta t_{CC} = 190 \text{ fs}$, soit en utilisant l'expression III.20 : $\tau_s \approx 188 \text{ fs}$. Cette valeur est en très bon accord avec la valeur théorique (erreur < 1%). Ce premier test est donc concluant.

III.4.2 Modulation de phase sinusoïdale

Dans cette partie, nous allons appliquer des modulations de phase sinusoïdale. Considérons le cas d'une impulsion laser femtoseconde de profil temporel gaussien, limitée par transformée

de Fourier, de durée τ_p . L'expression du champ électrique, d'amplitude E_0 , qui lui est associé est donnée par :

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{T_p^2}\right) \exp(-i\omega_0 t), \quad (\text{III.21})$$

où ω_0 est la pulsation centrale et $T_p = \tau_p / \sqrt{2 \ln 2}$ représente la demi-largeur à $1/e$ du champ. Une telle impulsion a une amplitude spectrale gaussienne $E(\omega)$ donnée par :

$$E(\omega) = E_0 T_p \sqrt{\pi} \exp\left[-((\omega - \omega_0) / \Delta\omega)^2\right], \quad (\text{III.22})$$

où $\Delta\omega$ représente la demi-largeur à $1/e$. Appliquée à cette impulsion une modulation sinusoïdale de sa phase spectrale de la forme :

$$\varphi(\omega) = a \times \sin(T_{rep}\omega), \quad (\text{III.23})$$

où a est l'amplitude de la modulation et T_{rep} la "fréquence" de modulation, conduit, dans le domaine temporel, à la génération d'un train d'impulsions laser de taux de répétition $F_{rep} = 1/T_{rep}$ [21] dont le champ électrique a pour expression [22] :

$$E_{out}(t) = E_0 \exp(-i\omega_0 t) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(a) \exp\left[i\left(\frac{n\pi}{2}\right)\right] \exp\left[-\frac{(t - nT_{rep})^2}{4} \Delta\omega^2\right], \quad (\text{III.24})$$

J_n représentant des fonctions de Bessel du premier ordre. L'intensité maximale de la $n^{\text{ième}}$ impulsion, centrée en $t - nT_{rep}$, est alors proportionnelle à $J_n^2(a)$.

La figure III.10 représente des trains d'impulsions théoriques calculés pour des modulations de phase sinusoïdale de différentes amplitudes a , avec une fréquence de modulation fixe $F_{rep} = 2.4$ THz. Nous observons qu'une augmentation du paramètre a entraîne une augmentation du nombre d'impulsions dans le train laser. La modulation étant uniquement en phase, toutes les composantes spectrales initialement comprises dans l'impulsion TL se retrouvent dans le train d'impulsions : l'énergie est conservée. Une amplitude de modulation plus élevée entraîne donc une répartition de l'énergie sur un plus grand nombre d'impulsions laser et donc une diminution globale de l'intensité. Les figures e) et f) ont été normalisées par rapport à l'intensité de l'impulsion TL (figure d). Pour une meilleure lisibilité, l'échelle des ordonnées a été dilatée.

Les propriétés des fonctions de Bessel entraînent que :

- pour $a < 1.43$ rad, l'impulsion la plus intense est l'impulsion centrale ($n = 0$).
- pour $1.43 < a < 2.63$ rad, ce sont les impulsions adjacentes à l'impulsion centrale ($n = 1, -1$) qui sont les plus intenses.
- pour $a = 2.63$ rad les impulsions obtenues pour ($n = 2, -2$) deviennent les plus intenses.

Il faut noter que la phase spectrale sinusoïdale que nous utilisons (cf. expression III.23) ne permet pas d'obtenir plus de trois impulsions d'égale intensité [9]. Pour générer un train d'impulsions où toutes les impulsions ont la même intensité, il faut appliquer une phase spectrale plus complexe de la forme :

$$\varphi(\omega) = \sum_{m=1}^M a_m \sin\left(\frac{m\omega}{F_{rep}} + \phi_m\right), \quad (\text{III.25})$$

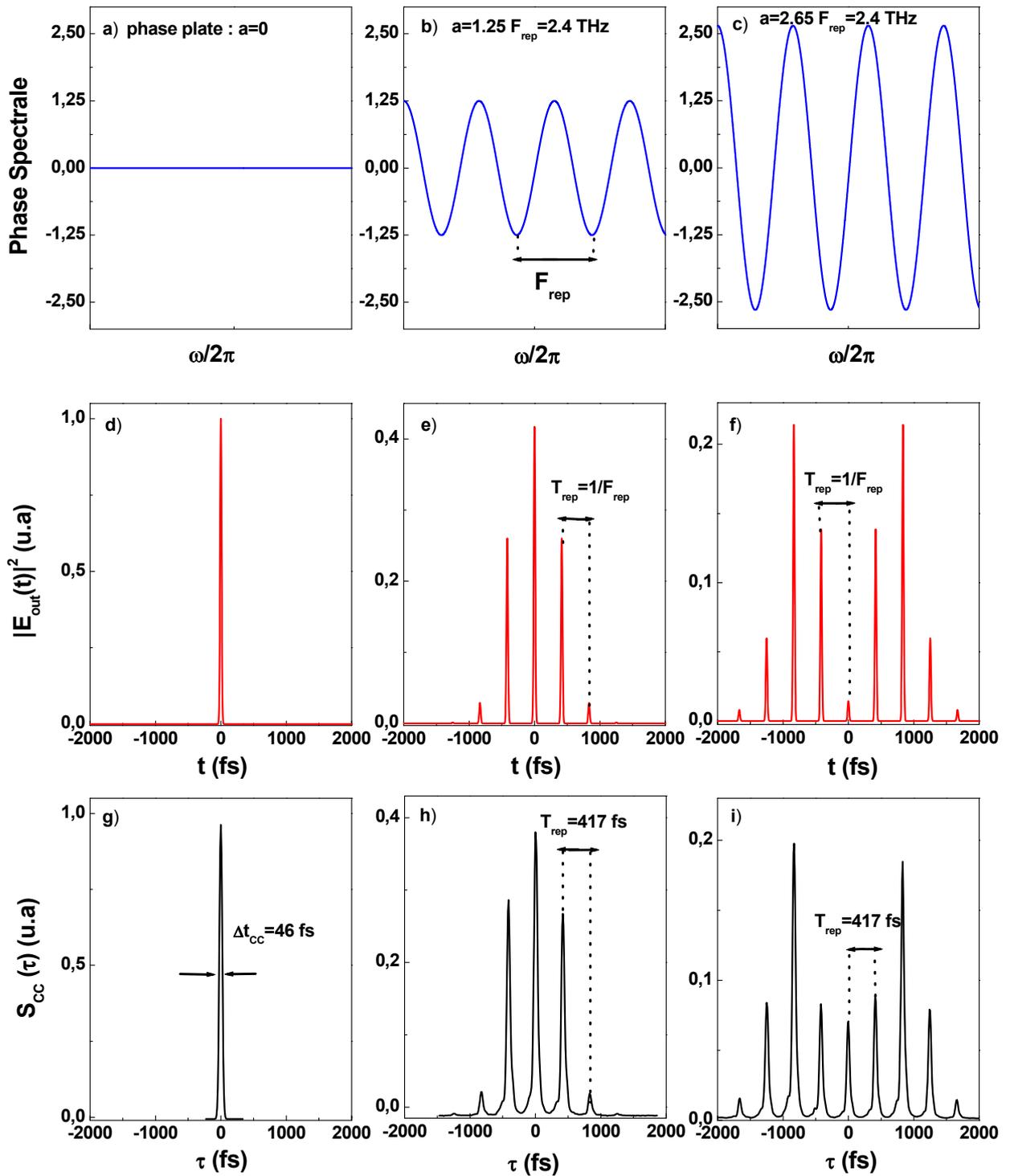


FIGURE III.10 – a) Phase spectrale plate : $a = 0$. b) Modulation sinusoïdale de la phase : $a = 1.25$ et $F_{\text{rep}} = 2.4$ THz. c) $a = 2.65$ et $F_{\text{rep}} = 2.4$ THz. d) Impulsion TL théorique associée au cas a. e) Train d’impulsions théorique associé au cas b. f) Train d’impulsions théorique associé au cas c. g) Trace de cross-corrélation pour le cas a. h) Cross-corrélation pour le cas b. i) Cross-corrélation associée au cas c.

où M représente le nombre d'harmoniques utilisées, a_m et ϕ_m représentant respectivement l'amplitude et la phase de l'harmonique m . Pour déterminer le poids et la phase relative de chaque harmonique, il faut généralement avoir recours à des algorithmes d'optimisation de type Gerchberg-Saxton [23]. L'idée générale est la suivante : l'utilisateur se fixe une mise en forme souhaitée dans le domaine temporel et connaissant le spectre initial de l'impulsion il utilise l'algorithme afin de déterminer les paramètres de la phase spectrale à appliquer. L'utilisateur est cependant tributaire de la vitesse et de la capacité de l'algorithme à converger.

Pour caractériser les impulsions mises en forme, nous avons utilisé la technique de cross-corrélation présentée dans la partie précédente. Les résultats expérimentaux (voir la figure III.10) sont en bon accord avec la théorie. Les figures h) et i) ont été normalisées par rapport à l'intensité de l'impulsion TL (figure g). Lorsqu'aucune phase n'est appliquée, la trace de cross-corrélation présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de $\Delta t_{CC} = 46$ fs ce qui correspond à une durée d'impulsion $\tau_p = 35$ fs. Dans le domaine temporel, les deux mises en forme correspondent bien à la génération de trains d'impulsions de période $T_{rep} = 1/F_{rep} = 417$ fs. On peut vérifier que la durée de chaque impulsion dans le train est celle de l'impulsion initiale limitée par transformée de Fourier. Cependant, nous observons une légère différence entre la théorie et l'expérience lorsque l'amplitude de la modulation est de 2.65. En effet, dans ce cas le poids des impulsions adjacentes à l'impulsion centrale ($n = 1$ et $n = -1$) est plus faible sur la trace expérimentale (figure III.10 i)) que sur la courbe théorique (figure III.10 f)).

En conclusion de cette partie, pour des modulations de phase relativement simples les impulsions obtenues en sortie du façonneur correspondent bien aux mises en forme souhaitées. Cependant, nous verrons dans la partie suivante que certaines limitations du dispositif peuvent entraîner des différences entre la mise en forme programmée et celle réellement obtenue.

III.5 Limitations du façonneur

Dans cette partie, nous allons présenter les deux principales limitations inhérentes à ce type de façonneur. La première est liée à la limite de la résolution spectrale de la ligne $4f$ dans le plan de Fourier et la deuxième provient de la pixellisation du masque à cristaux liquides utilisé. Nous supposons une dispersion linéaire dans le plan de Fourier ce qui facilitera les calculs et nous permettra d'introduire ces limitations d'une manière relativement simple.

III.5.1 Limitation liée à la ligne $4f$

En entrée de la ligne $4f$, le champ électrique associé à l'impulsion laser peut s'écrire dans le domaine spectral sous la forme :

$$E_{in}(\omega, x) = E_{in}(\omega) e^{-\left(\frac{x}{w_{in}}\right)^2}, \quad (\text{III.26})$$

où w_{in} représente le waist du faisceau d'entrée et x est la coordonnée transverse le long de l'axe de polarisation du champ incident. Au niveau du plan de Fourier, l'expression du champ électrique est la suivante [12] :

$$E_{PF}(\omega, X) = E_{in}(\omega) e^{-\left(\frac{X - \alpha\omega}{w_0}\right)^2}, \quad (\text{III.27})$$

où α est la dispersion spectrale dans le plan de Fourier (cf. section III.3) et w_0 la taille d'une composante spectrale dans ce plan (cf. section III.3). On retrouve ici l'expression du champ spectral à l'entrée de la ligne multiplié par une gaussienne qui traduit l'étalement du spectre dans le plan de Fourier. Après la traversée du SLM, l'expression du champ devient :

$$E_M(\omega, X) = E_{PF}(\omega, X) M(X), \quad (\text{III.28})$$

où $M(X)$ représente la modulation spatiale introduite par le SLM. En sortie de la ligne, le champ spectral peut s'exprimer en fonction du champ incident par la relation suivante :

$$E_{out}(\omega) = H(\omega) E_{in}(\omega), \quad (\text{III.29})$$

où $H(\omega)$ est la fonction de transfert associée au façonneur. Si l'on place un diaphragme en sortie du dispositif pour ne garder que le mode Hermite-gaussien TEM_{00} alors cette fonction de transfert s'écrit de la manière suivante [12] :

$$H(\omega) = \sqrt{\frac{2}{\pi w_0^2}} \int_{-\infty}^{+\infty} M(X) e^{-\frac{2(X-\alpha\omega)^2}{w_0^2}} dX. \quad (\text{III.30})$$

Ce terme est le produit de convolution de la fonction $M(X)$ introduite par le masque et de l'intensité transverse dans le plan de Fourier $I(X)$. Le champ spectral en sortie de la ligne peut donc s'écrire sous la forme [17, 18, 24] :

$$E_{out}(\omega) = [M * I](\alpha\omega) \times E_{in}(\omega). \quad (\text{III.31})$$

Il est important de constater que le champ spectral en sortie n'est pas simplement le champ en entrée multiplié par la modulation spatiale introduite par le SLM. Dans le domaine temporel, on obtient finalement :

$$E_{out}(t) = [M(t) \times g(t)] * E_{in}(t), \quad (\text{III.32})$$

où $M(t)$ est la fonction introduite par le masque dans le domaine temporel :

$$M(t) = \frac{1}{2\pi} \int M(\alpha\omega) e^{i\omega t} d\omega, \quad (\text{III.33})$$

et

$$g(t) = \exp\left(\frac{-w_0^2 t^2}{8\alpha^2}\right) = \exp\left(\frac{-\delta\omega^2 t^2}{8 \ln 2}\right), \quad (\text{III.34})$$

où $\delta\omega$ représente la résolution spectrale limite de la ligne $4f$ donnée par [12] :

$$\delta\omega = \sqrt{\ln 2} \frac{w_0}{\alpha}. \quad (\text{III.35})$$

Pour que la mise en forme obtenue reflète parfaitement la mise en forme programmée, c'est-à-dire pour que le champ en sortie de la ligne dans le domaine temporel soit simplement le produit de convolution de la fonction appliquée et du champ d'entrée, il faut que :

$$\delta\omega \rightarrow 0 \Leftrightarrow \frac{w_0}{\alpha} \ll 1. \quad (\text{III.36})$$

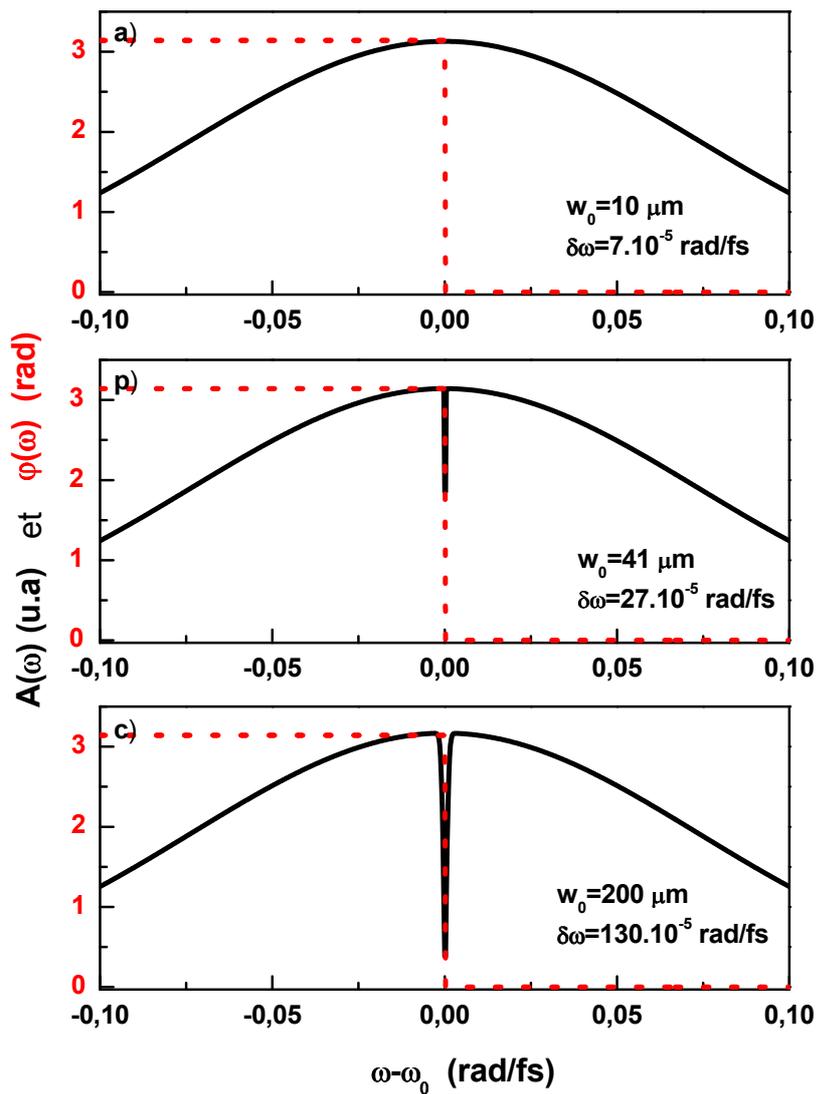


FIGURE III.11 – Effet d’une variation abrupte de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ (un saut de phase de π centré en ω_0 (en pointillés rouges)) sur l’amplitude spectrale $A(\omega)$ (traits pleins noirs) pour différentes tailles w_0 des composantes spectrales dans le plan de Fourier. a) $w_0 = 10 \mu\text{m}$. b) $w_0 = 41 \mu\text{m}$. c) $w_0 = 200 \mu\text{m}$. Ici $\alpha = 126 \text{ mm.fs}$, soit $\delta\omega = 7.10^{-5} \text{ rad/fs}$ pour le cas a), $27.10^{-5} \text{ rad/fs}$ pour le cas b) et $130.10^{-5} \text{ rad/fs}$ pour le cas c).

Dans le cas contraire, toute structure sur le masque plus petite que w_0 sera éliminée par la convolution. Physiquement, cela correspond à une diffraction d’une partie du spectre dans le mode TEM_{00} dans les modes d’ordre supérieur TEM_{mn} , qui est ensuite perdue lors de la propagation dans le reste de la ligne. Il y a un couplage spatio-spectral qui conduit à une modulation d’amplitude alors qu’on ne module que la phase spectrale. Pour illustrer ce phénomène, considérons une variation abrupte de la phase spectrale $\varphi(\omega)$, par exemple un saut de phase de π centré en ω_0 . On peut observer sur la figure III.11 qu’une telle variation de phase peut entraîner une modulation de l’amplitude spectrale $A(\omega)$ suivant la taille w_0 des composantes spectrales dans

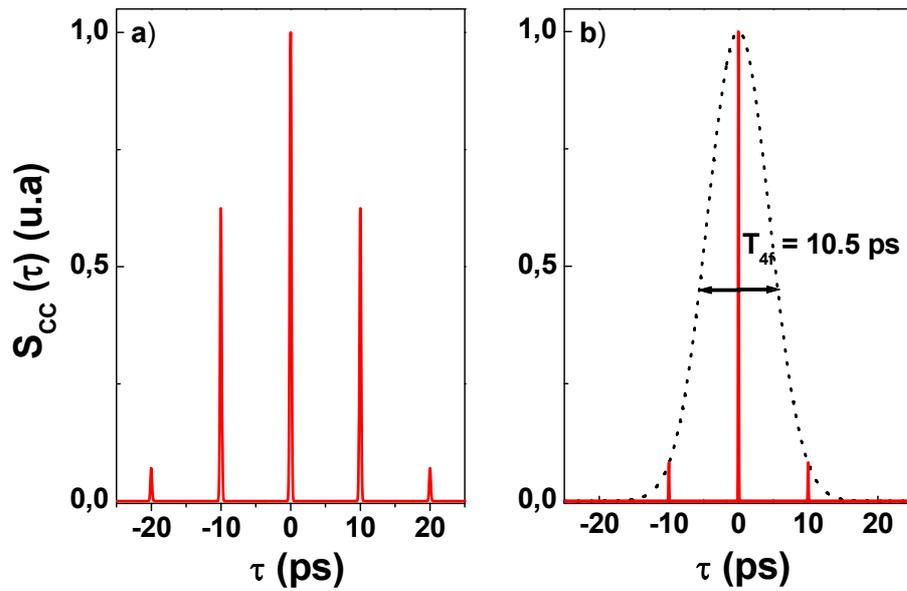


FIGURE III.12 – a) Train d’impulsions attendu pour une modulation de phase sinusoïdale avec : $a = 1.25$ et $T_{rep} = 10$ ps. b) Simulation numérique présentant l’effet de la résolution spectrale finie de la ligne $4f$, qui se traduit par l’existence d’une fenêtre gaussienne de largeur : $T_{4f} = 10.5$ ps venant multiplier l’impulsion mise en forme.

le plan de Fourier. Pour le cas a), c’est-à-dire pour $w_0 = 10 \mu\text{m}$, le saut de phase n’affecte pas l’amplitude spectrale. Cependant, pour les cas b) et c) le spectre est progressivement “creusé” à l’endroit du saut de phase et cet effet est d’autant plus accentué que w_0 est grand. Bien que la mise en forme soit uniquement en phase, l’amplitude spectrale se trouve affectée. Il y a donc un couplage phase-amplitude qui limite les possibilités de ce façonneur. Cependant, cet effet indésirable peut être mis à profit pour calibrer la dispersion dans le plan de Fourier en appliquant un saut de phase de π à des positions connues et en repérant les différents “trous” creusés dans le spectre. Dans notre cas, cette procédure s’est révélée infructueuse car l’effet d’une telle variation de phase sur le spectre n’était pas conséquent (cf. la simulation sur la figure III.11 b)) et le spectromètre utilisé ne présentait pas une résolution spectrale suffisante pour voir les “trous”.

Dans le domaine temporel, cette limitation réduit, via la fonction $g(t)$, la fenêtre sur laquelle l’impulsion mise en forme reflète la modulation appliquée au niveau du masque. Cette fenêtre a une largeur temporelle T_{4f} :

$$T_{4f} = \frac{4 \ln 2}{\delta\omega} = \frac{2\sqrt{\ln 2} w_{in} \lambda}{cd \cos \theta_i}. \quad (\text{III.37})$$

Pour notre façonneur, cette largeur est de $T_{4f} = 10.5$ ps. Pour diminuer la limite de résolution temporelle imposée par la ligne $4f$, il est préférable de travailler avec des réseaux très dispersifs. Les impulsions issues de notre chaîne laser présentant une grande largeur spectrale ($\Delta\lambda = 40$ nm), nous utilisons un réseau faiblement dispersif (600 traits par mm) afin de ne pas tronquer le spectre sur la barrette de cristaux liquides, ce qui explique la valeur relativement faible de T_{4f} .

On observe sur la figure III.12 un exemple de limitations introduites par la fenêtre temporelle. Cette figure représente la mise en forme attendue et programmée par l'expérimentateur. Il s'agit d'une modulation sinusoïdale de la phase spectrale conduisant dans le domaine temporel à la génération d'un train d'impulsions de période $T_{rep} = 10$ ps similaire à ceux présentés sur la figure III.10. La figure III.12 b), quant à elle, représente la mise en forme réellement obtenue et l'effet de la résolution spectrale limitée due à la ligne $4f$. Nous constatons que les amplitudes des impulsions adjacentes à l'impulsion centrale ($n = 1$ et $n = -1$) sont fortement atténuées et que les impulsions correspondant à $n = 2$ et $n = -2$ sont éliminées.

Nous venons de présenter une première limitation de notre façonneur qui est uniquement liée à la résolution spectrale limitée du dispositif ; elle est indépendante du masque utilisé. Nous allons maintenant passer aux limitations liées à l'utilisation d'un modulateur pixellisé.

III.5.2 Limitation liée au SLM

Dans cette partie, nous allons présenter les limitations introduites par le SLM. Tout d'abord, la fonction de transfert appliquée par l'expérimentateur est échantillonnée sur les 640 pixels du SLM, ce qui peut introduire des distorsions entre la mise en forme programmée et celle réellement appliquée. Nous allons voir que le principal effet d'un tel échantillonnage spectral est d'introduire dans le domaine temporel des répliques de l'impulsion mise en forme. Cette limitation est un résultat bien connu dans le domaine du traitement du signal [25]. De plus, les gaps entre les pixels, qui ne sont pas contrôlables, peuvent produire un jeu de répliques temporelles qui seront liées à l'impulsion entrant dans le façonneur.

La fonction $M(X)$ appliquée par l'expérimentateur peut s'écrire sous la forme suivante [14, 18] :

$$M(X) = \underbrace{\sum_{n=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}-1} F_n \text{rect} \left[\frac{\omega - n\delta\omega_{pix}}{r\delta\omega_{pix}} \right]}_{\text{contribution des pixels}} + \underbrace{\sum_{n=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}-1} G_n \text{rect} \left[\frac{\omega - \left(n + \frac{1}{2}\right)\delta\omega_{pix}}{(1-r)\delta\omega_{pix}} \right]}_{\text{contribution des gaps}}, \quad (\text{III.38})$$

où N représente le nombre de pixels, F_n la fonction de transfert du pixel n , G_n la fonction de transfert du gap n (non contrôlable par l'expérimentateur et donc identique pour tous les gaps), ℓ la distance entre deux pixels consécutifs, $r = w_p/\ell = 0.97$, $\text{rect}()$ est la fonction rectangle définie par :

$$\text{rect}(u) = \begin{cases} 1 & \text{si } |u| \leq 1/2 \\ 0 & \text{si } |u| > 1/2 \end{cases}, \quad (\text{III.39})$$

et $\delta\omega_{pix}$ est reliée à la distance entre pixels et à la dispersion spectrale linéaire dans le plan de Fourier α par :

$$\delta\omega_{pix} = \frac{\ell}{\alpha}. \quad (\text{III.40})$$

Dans le cas de notre façonneur, nous obtenons $\delta\omega_{pix} = 7.94 \cdot 10^{-4} \text{ rad.fs}^{-1}$.

Le premier terme de l'expression III.38 correspond à la fonction de transfert échantillonnée spectralement avec un pas $\delta\omega_{pix}$. Le dénominateur $r\delta\omega_{pix}$ correspond à la largeur spectrale de la

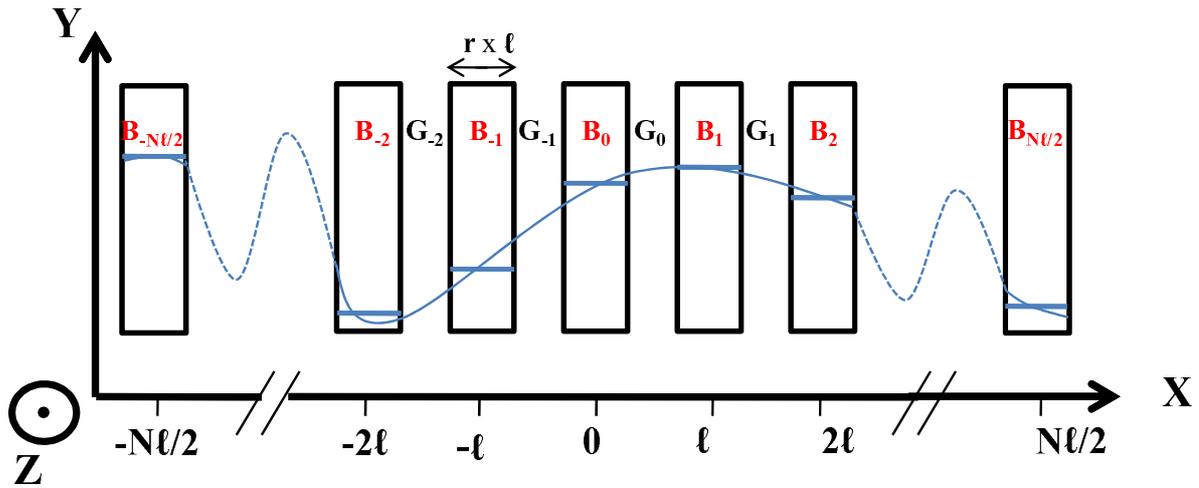


FIGURE III.13 – Echantillonnage de la fonction de transfert sur les pixels du SLM.

portion du spectre s'étalant sur un pixel. Le deuxième terme de cette expression concerne la contribution des gaps qui, bien qu'inactifs du point de vue de la mise en forme, laissent passer 3.1% de l'énergie incidente. On suppose que la transmission d'un gap correspond à celle d'un pixel soumis à une tension nulle.

En supposant que le masque est infini, ce qui revient à faire tendre N vers l'infini, et en effectuant la transformée de Fourier de l'expression III.38 on obtient dans le domaine temporel [14] :

$$M(t) = \underbrace{r \operatorname{sinc}\left(\frac{r\pi t}{T_{pix}}\right) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} F_n e^{in\delta\omega_{pix}t}}_{\text{contribution des pixels}} + \underbrace{(1-r) \operatorname{sinc}\left(\frac{(1-r)\pi t}{T_{pix}}\right) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} G_n e^{i(n+1/2)\delta\omega_{pix}t}}_{\text{contribution des gaps}}, \quad (\text{III.41})$$

Le premier terme de l'expression III.41 est lié à la contribution des pixels. L'échantillonnage de la fonction de transfert se traduit, dans le domaine temporel, par l'apparition de répliques de l'impulsion mise en forme espacées d'un délai :

$$T_{pix} = \frac{2\pi}{\delta\omega_{pix}}. \quad (\text{III.42})$$

Dans le cas de notre façonneur, nous obtenons : $T_{pix} = 7.91$ ps. Pour la suite, nous considérons que $T_{pix} = 8$ ps. De plus, les pixels ont un profil carré ce qui entraîne l'apparition d'une enveloppe en sinus cardinal, de pseudo-période $T_{pix}/r = 8.2$ ps, qui va moduler les répliques.

Le deuxième terme de l'expression III.41 provient de la contribution des gaps. Ces derniers sont responsables de l'apparition de répliques non mises en forme, séparées de T_{pix} , qui sont modulées par une enveloppe en sinus cardinal de pseudo-période $T_{pix}/(1-r) = 267$ ps. Nous observons également que le rapport en intensité entre les contributions des pixels et celle des gaps est de l'ordre de : $[r/(1-r)]^2 \approx 1045$. Nous pouvons donc négliger les répliques provenant des gaps.

Pour illustrer l'effet de la pixellisation, nous allons prendre le cas d'une phase linéaire de la forme : $F_n(\omega) = \exp(i\omega\tau)$ qui correspond à l'application d'un retard τ dans le domaine temporel. Dans ce cas précis, l'expression III.41 peut s'écrire sous la forme :

$$M(t) = r \operatorname{sinc}\left(\frac{r\pi t}{T_{pix}}\right) \exp(i\omega\tau) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp(in\delta\omega_{pix}t). \quad (\text{III.43})$$

En utilisant la relation suivante :

$$\sum_{n=-\infty}^{+\infty} \exp(in\delta\omega_{pix}t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(t - nT_{pix}), \quad (\text{III.44})$$

nous obtenons finalement :

$$M(t) = r \operatorname{sinc}\left(\frac{r\pi t}{T_{pix}}\right) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(t - \tau - nT_{pix}). \quad (\text{III.45})$$

En plus de l'impulsion mise en forme souhaitée, nous obtenons une série de répliques, espacées les unes des autres de $T_{pix} = 8$ ps, dont l'amplitude est modulée par une enveloppe en sinus cardinal de pseudo-période $T_{pix}/r = 8.2$ ps. La figure III.14 représente une simulation effectuée pour une phase plate et un délai τ de 4 ps. Pour le cas d'une phase plate, les répliques sont négligeables car elles correspondent à chaque fois à une amplitude quasi-nulle du sinus cardinal (cf. figure III.14 a)). Cependant, ce n'est plus le cas lorsque l'on applique un délai de 4 ps. En effet, l'enveloppe du sinus cardinal reste fixe mais l'impulsion principale et les répliques sont décalées en bloc de 4 ps (cf. figure III.14 b)). Dans ce cas particulier, la première réplique a une intensité comparable à celle de l'impulsion principale car nous atteignons la limite de Nyquist en échantillonnant notre mise en forme avec un pas égal à $2\delta\omega_{pix}$ [25, 14]. Afin de remédier à ce problème, il faut que la période d'échantillonnage soit inférieure à $T_{pix}/2$.

Cette approche simple, supposant une dispersion linéaire dans le plan de Fourier, nous a permis d'introduire les limitations liées à l'utilisation d'un masque pixellisé en expliquant la présence des répliques. Les lecteurs désireux de connaître l'effet d'une dispersion non-linéaire sur ces répliques peuvent consulter les références [14, 26]. Le principal effet résulte du masque spectral qui n'est plus régulier. En effet, le SLM est composé de pixels spatialement périodiques mais comme la position X et la pulsation ω ne sont plus liées par une simple relation linéaire, ces pixels sont de largeur variable dans le domaine spectral, ce qui modifie les répliques car elles sont directement liées à la périodicité de l'échantillonnage dans le domaine spectral. L'effet est plutôt positif car les différentes répliques présentent un élargissement temporel important et surtout une intensité crête très inférieure à celle obtenue dans l'approximation linéaire.

Nous venons de présenter les deux principales limitations inhérentes à ce type de dispositif. La première est liée à la résolution spectrale limite de la ligne à dispersion nulle qui se répercute dans le domaine temporel par l'apparition d'une fenêtre gaussienne de largeur $T_{4f} = 10.5$ ps qui limite les possibilités de mises en forme. La deuxième provient de la pixellisation du masque à cristaux liquides qui entraîne la création de répliques de l'impulsion mise en forme espacées de $T_{pix} = 8$ ps. Dans le cas de notre dispositif, la première limitation qui apparaît est celle liée à la pixellisation. En conclusion de cette partie, si l'utilisateur veut contrôler parfaitement l'impulsion mise en forme il doit se restreindre à travailler sur une fenêtre temporelle de largeur $T_{pix} = 8$ ps.

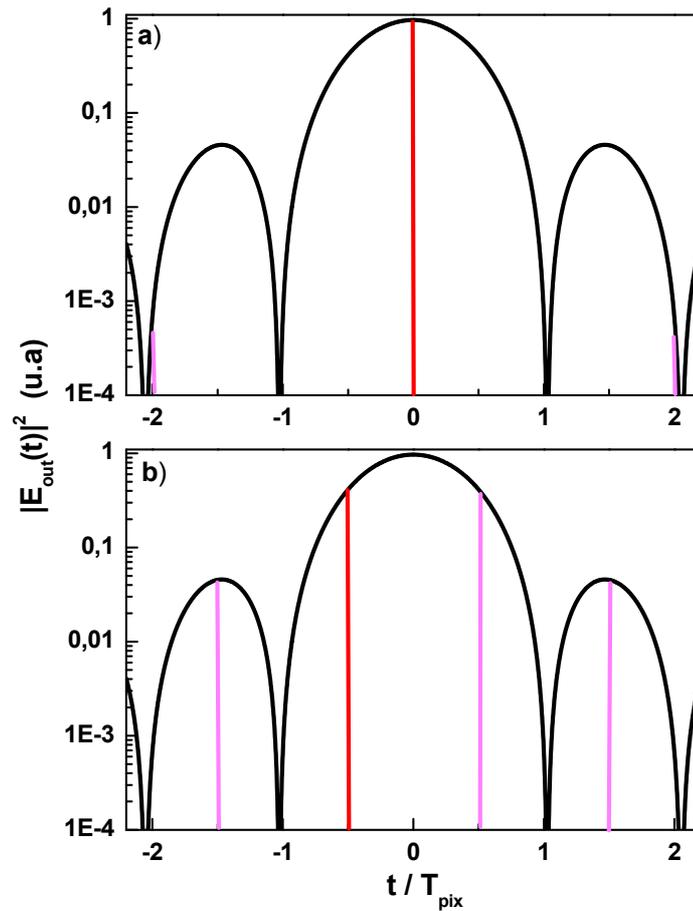


FIGURE III.14 – Effet de la pixellisation dans deux cas particuliers : a) phase spectrale plate : $F_n(\omega) = 1$ et b) phase linéaire : $F_n(\omega) = \exp(i\omega\tau)$ (le délai τ est choisi égal à 4 ps). En plus de l'impulsion mise en forme souhaitée (en rouge), nous observons des répliques (en rose) espacées de $T_{pix} = 8$ ps dont l'amplitude est modulée par une enveloppe en sinus cardinal (en noir) de pseudo-période $T_{pix}/r = 8.2$ ps. Le temps est gradué en multiples de T_{pix} et l'échelle verticale est logarithmique [14]. Nous négligeons les répliques provenant des gaps qui sont extrêmement faibles.

III.6 Utilisation en boucle fermée

Le dispositif de mise en forme d'impulsions femtosecondes a été développé au cours de cette thèse afin de contrôler la génération d'impulsions THz par redressement optique. Les phénomènes physiques gouvernant ce processus de génération étant bien connus, les caractéristiques de l'impulsion laser permettant d'obtenir le spectre THz désiré peuvent être prédites de manière analytique : c'est un contrôle en boucle ouverte.

Ce type de façonneur est également très utilisé pour le contrôle de processus atomiques et moléculaires [2, 3, 7, 14] avec pour but ultime de pouvoir contrôler les réactions chimiques par laser. L'idée consiste à moduler les paramètres du champ laser afin de conduire le système considéré, après photoexcitation, vers un état final correspondant au produit de réaction désiré [27].

Si le système possède une complexité ne permettant pas de prédictions théoriques, la connexion d'un dispositif de mise en forme à un algorithme génétique dans une boucle de rétroaction permet de contrôler efficacement le processus à optimiser. L'analyse de l'impulsion optimale obtenue peut alors fournir des indications sur les processus mis en jeu dans l'expérience [28]. Ce type de schéma de contrôle, nommé contrôle en boucle fermée ou contrôle optimal, proposé par Rabitz en 1992 [29] a notamment été utilisé pour optimiser une réaction de photo-isomérisation [30], exciter sélectivement des molécules en phase liquide [31], contrôler la photodissociation de complexes moléculaires [32] ou encore optimiser la génération de haute harmonique [33].

Un des objectifs de notre équipe est de mieux comprendre les processus photo-physiques présentés par certains complexes moléculaires (transfert de charge et d'énergie intermoléculaire et intramoléculaire, complexation ou décomplexation de cations, etc), tout en montrant la possibilité d'optimiser un mécanisme photo-physique pour augmenter l'efficacité d'un complexe moléculaire dans une application donnée, comme par exemple les molécules à transfert de charge pouvant servir d'émetteur THz [34].

Dans le but de pouvoir réaliser de telles expériences, nous avons développé au cours de cette thèse un algorithme génétique.

III.6.1 Principe de l'algorithme génétique

La mise en forme de l'impulsion laser excitatrice est une technique de choix pour étudier et contrôler un phénomène photo-physique. En fonction de la complexité du problème, l'expérimentateur peut avoir recours à l'utilisation d'un algorithme d'optimisation pour déterminer les paramètres de modulation à appliquer. L'idée consiste à collecter un signal photo-physique (par exemple un signal de fluorescence) lié au mécanisme à étudier et à interroger l'algorithme afin de déterminer la forme temporelle de l'impulsion permettant d'optimiser (ou d'annihiler) ce signal. L'algorithme d'optimisation est aussi appelé algorithme génétique car son mode de fonctionnement rappelle celui de la théorie de l'évolution [35, 36, 37]. Le principe de fonctionnement est le suivant : l'utilisateur se donne une population initiale de P impulsions, générées de manière aléatoire par l'algorithme, différentes les unes des autres par le déphasage introduit entre les diverses composantes spectrales. Ces impulsions sont envoyées les unes après les autres sur l'échantillon, l'algorithme gardant en mémoire la valeur du signal à optimiser obtenue. Les impulsions donnant les meilleurs résultats sont conservées (par exemple $P/2$ impulsions) et vont servir de point de départ pour générer $P/2$ nouvelles formes d'impulsions : on se retrouve ainsi avec une nouvelle génération de P impulsions que l'on va tester sur l'échantillon. Ce phénomène est analogue à l'évolution des espèces vivantes où les plus adaptées se développent au dépend des autres. L'analogie avec la biologie peut être poussée plus loin si l'on suppose que chaque impulsion correspond à un individu et que les pixels correspondent à des gènes. Rappelons en effet que les tensions appliquées sur les pixels de cristaux liquides sont les paramètres sur lesquels joue l'utilisateur. L'algorithme génétique peut générer des individus plus performants (en fait des impulsions) en effectuant des croisements entre les individus les plus performants d'une génération ou bien en effectuant des mutations aléatoires de gènes. Dans notre cas, l'expérience a montré que l'algorithme convergait d'autant mieux que le nombre d'impulsions conservées d'une génération à l'autre était de $P/3$ et le nombre de mutant égal à 0 en accord avec la référence [35].

Une fois cet algorithme génétique développé, nous avons testé son efficacité sur l'optimisation de la génération de seconde harmonique.

III.6.2 Optimisation de la génération de seconde harmonique

L'impulsion en sortie de la ligne $4f$ est doublée en fréquence dans un cristal de *BBO* et le signal de seconde harmonique (*SHG*) est collecté à l'aide d'une photodiode. Ce phénomène non linéaire, proportionnel à l'intensité lumineuse au carré, est maximal pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, c'est-à-dire une impulsion ayant la durée la plus courte possible. Notre expérience consiste à intercaler sur le trajet du faisceau un élément dispersif pour étirer temporellement l'impulsion, l'objectif étant d'utiliser l'algorithme génétique pour compenser la dispersion introduite et optimiser le signal de seconde harmonique S_{SHG} [38, 39]. Il faut cependant bien prendre garde de ne pas saturer la génération avec une impulsion limitée par transformée de Fourier afin que l'algorithme puisse converger vers les bonnes valeurs. Nous avons tout d'abord utilisé comme élément dispersif une cellule remplie de toluène de longueur $L = 2$ cm, dont l'indice de réfraction est approximé par la formule de Cauchy suivante [40] :

$$n(\lambda) \simeq A_0 + \frac{A_1}{\lambda^2} + \frac{A_2}{\lambda^4}, \quad (\text{III.46})$$

où λ représente la longueur d'onde en nm et $A_0 = 1.474775$, $A_1 = 6990.31 \text{ nm}^2$, $A_2 = 2.1776 \times 10^8 \text{ nm}^4$.

Loin des bandes d'absorption du milieu, la phase spectrale de l'impulsion $\varphi(\omega)$ varie lentement, et si la largeur spectrale de l'impulsion est petite devant sa fréquence centrale ω_0 , on peut développer $\varphi(\omega)$ en série de Taylor au voisinage de ω_0 , en se limitant à l'ordre 3, sous la forme :

$$\varphi(\varpi) = \varphi_0 + \varphi_0^{(1)}\varpi + \frac{1}{2}\varphi_0^{(2)}\varpi^2 + \frac{1}{6}\varphi_0^{(3)}\varpi^3, \quad (\text{III.47})$$

où l'on a introduit $\varpi = \omega - \omega_0$, $\varphi_0 = \varphi(\omega_0)$ et $\varphi_0^{(n)} = (d^n\varphi/d\omega^n)_{\omega_0}$. L'ordre 0 de la phase n'a pas de signification physique, le premier ordre correspond à un décalage dans le temps de l'impulsion, l'ordre deux correspond à une dérive de fréquence linéaire et l'ordre trois correspond à des pré-impulsions ou post-impulsions. Une impulsion limitée par transformée de Fourier correspond à $\varphi(\varpi) = 0$.

Pour un milieu dispersif d'indice n et de longueur L , on peut écrire [41] :

$$\varphi_0^{(2)} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} n^{(2)} L, \quad (\text{III.48})$$

et

$$\varphi_0^{(3)} = \frac{-\lambda^4}{4\pi^2 c^3} [3n^{(2)} + \lambda n^{(3)}] L, \quad (\text{III.49})$$

où $n^{(2)}$ et $n^{(3)}$ représentent respectivement la dérivée seconde et la dérivée troisième de l'indice par rapport à λ pour la longueur d'onde centrale. Pour notre cellule remplie de toluène, le calcul donne : $\varphi_0^{(2)} = 2208 \text{ fs}^2$ et $\varphi_0^{(3)} = 1185 \text{ fs}^3$.

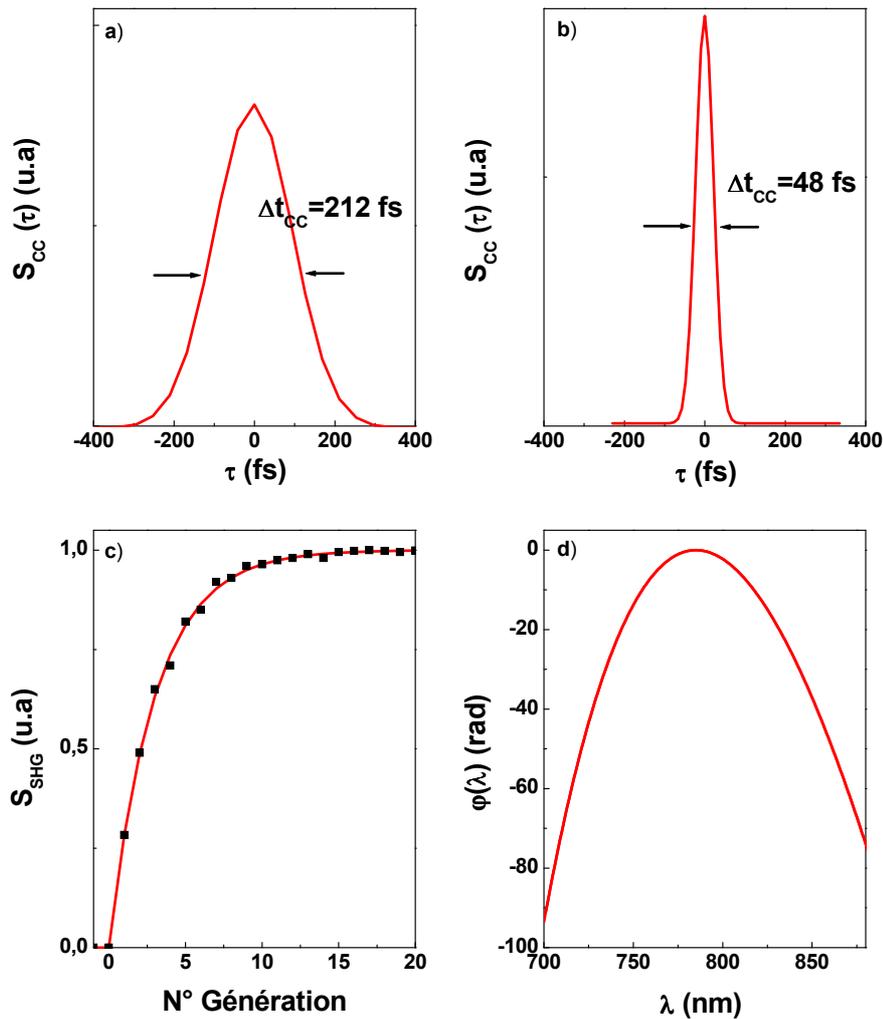


FIGURE III.15 – a) Cross-corrélation de l'impulsion ayant traversé la cellule remplie de toluène. b) Cross-corrélation de l'impulsion optimale en sortie de la cellule. c) Courbe de convergence. d) Phase appliquée par le masque.

La figure III.15 a) représente la trace de cross-corrélation de l'impulsion laser étirée temporellement par la traversée dans la cellule. La largeur à mi-hauteur mesurée, $\Delta t_{CC} = 212$ fs, est cohérente avec la valeur de la dispersion introduite. En effet, une valeur de $\varphi_0^{(2)} = 2208$ fs² conduit en utilisant l'expression III.17 à une durée d'impulsion de $\tau_s = 206$ fs et à une durée de cross corrélation de $\Delta t_{CC} = 208$ fs. On n'observe pas de pré ou post-impulsions, ce qui signifie que la contribution de l'ordre 3 est négligeable. L'impulsion étant désormais étirée temporellement, le signal de seconde harmonique généré est inférieur à celui obtenu avec une impulsion TL. Nous utilisons maintenant l'algorithme génétique afin que ce dernier optimise le signal de SHG en compensant la dispersion introduite par la traversée de la cellule. Après quelques générations, l'algorithme converge vers le résultat suivant : $\varphi_0^{(2)} = -2220$ fs² et $\varphi_0^{(3)} = -50$ fs³. La courbe de convergence et la phase spectrale appliquée sont représentées respectivement sur les

figures III.15 c) et III.15 d). Nous obtenons un très faible écart pour $\varphi_0^{(2)}$ entre la valeur calculée et celle donnée par l'algorithme (de l'ordre de 0.5%). Il est également possible que les faces de la cellule, bien que très fines, entraînent une légère dispersion compensée par l'algorithme mais pas prise en compte dans le calcul. Cependant, le résultat pour l'ordre 3 est nettement moins bon mais peut être expliqué à l'aide du raisonnement suivant. Le délai de groupe $T(\omega)$, c'est-à-dire le retard accumulé par chaque composante spectrale lors de la traversée du milieu dispersif, est défini de la manière suivante :

$$T(\omega) = \frac{d\varphi}{d\omega}. \quad (\text{III.50})$$

Nous cherchons à évaluer le rapport entre la contribution de l'ordre 3 à la phase spectrale et la contribution de l'ordre 2. Pour cela, il faut déterminer le rapport $T^{(3)}(\omega)/T^{(2)}(\omega)$ avec $T^{(n)}(\omega) = d^n\varphi/d\omega^n$. Nous obtenons le résultat suivant :

$$\frac{T^{(3)}(\omega)}{T^{(2)}(\omega)} = \frac{\varphi_0^{(3)}(\omega - \omega_0)}{\varphi_0^{(2)}}. \quad (\text{III.51})$$

Pour déterminer l'ordre de grandeur de l'expression III.51, nous supposons que $\omega - \omega_0 \simeq \Delta\omega$, où $\Delta\omega$ représente la largeur du spectre à mi-hauteur, et nous obtenons finalement $T^{(3)}(\omega)/T^{(2)}(\omega) \simeq 0.065$. La contribution de l'ordre 3 à la phase spectrale est négligeable par rapport à celle de l'ordre 2 ce qui explique que l'algorithme n'arrive pas à optimiser parfaitement $\varphi_0^{(3)}$. L'algorithme applique donc une phase quadratique négative initiale à l'impulsion compensant parfaitement la phase introduite lors de la traversée de la cellule. L'impulsion ainsi obtenue est limitée par transformée de Fourier et le signal de seconde harmonique généré est maximal. Cette impulsion, caractérisée par cross-corrélation, est représentée sur la figure III.15 b).

Des résultats similaires ont été obtenus avec un cristal de ZnSe, de longueur $L = 5$ mm, dont l'indice de réfraction est donné par la formule de Sellmeier suivante [42] :

$$n(\lambda) = \sqrt{4 + \frac{1.9\lambda^2}{\lambda^2 - 0.113}}, \quad (\text{III.52})$$

où λ représente la longueur d'onde exprimée en μm . Par le calcul, nous obtenons à l'aide des expressions III.48 et III.49 : $\varphi_0^{(2)} \simeq 5501 \text{ fs}^2$ et $\varphi_0^{(3)} \simeq 5345 \text{ fs}^3$. Pour compenser la dispersion introduite par le cristal et optimiser la génération de seconde harmonique, l'algorithme génétique converge après quelques générations vers le résultat suivant : $\varphi_0^{(2)} \simeq -5518 \text{ fs}^2$ et $\varphi_0^{(3)} \simeq -2390 \text{ fs}^3$. Nous observons que la dispersion d'ordre 2 est parfaitement compensée tandis que le résultat pour l'ordre 3 est légèrement moins bon. Là encore, cette différence peut être expliquée en regardant les contributions des différents ordres à la phase spectrale. Dans ce cas, nous obtenons à l'aide de l'expression III.51 : $T^{(3)}(\omega)/T^{(2)}(\omega) \simeq 0.12$. L'optimisation pour l'ordre 3 est cependant meilleure que dans le cas précédent car le rapport des délais de groupe d'ordres 2 et 3 est, pour le cristal de ZnSe, deux fois supérieur à celui obtenu pour la cellule remplie de toluène.

Ces deux tests, très concluants, nous permettent d'envisager d'utiliser très rapidement ce dispositif de contrôle optimal pour l'étude de processus photo-physiques présentés par certains complexes moléculaires. Une première série d'expérience consistera à contrôler l'évolution d'un

système photo-excité en le guidant préférentiellement vers un canal de relaxation prédéterminé (état à transfert de charge, isomérisation) en optimisant par exemple un signal de fluorescence. En effet, un système moléculaire excité par une impulsion laser ultracourte peut présenter différents processus de relaxation et le choix de la voie de relaxation joue un rôle primordial dans de nombreux mécanismes photo-physiques et photo-biologiques. D'autres expériences seront dédiées à l'étude et au contrôle de la génération d'impulsions *THz* provenant de molécules à transfert de charge. L'analyse de l'impulsion optimale obtenue nous fournira alors des indications sur les processus physiques mis en jeu dans ces diverses expériences.

Bibliographie

- [1] A. H. Zewail, "Femtochemistry : Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond," *Journal of Physical Chemistry A* **104**(24), 5660-94 (2000).
- [2] D. Goswami, "Optical pulse shaping approaches to coherent control," *Physics Reports* **374**, 385-481 (2003).
- [3] M. Dantus and V. V. Lozovoy, "Experimental coherent laser control of physicochemical processes," *Chemical Reviews* **104**(4), 1813-59 (2004).
- [4] D. Meshulach and Y. Silberberg, "Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse," *Nature* **396**, 239-42 (1998).
- [5] N. Dudovich, D. Oron and Y. Silberberg, "Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy," *Nature* **418**, 512-14 (2002).
- [6] S. Zamith, J. Degert, S. Stock, B. de Beauvoir, V. Blanchet, M. A. Bouchene and B. Girard, "Observation of Coherent Transients in Ultrashort Chirped Excitation of an Undamped Two-Level System," *Physical Review Letters* **87**(3), 033001 1-4 (2001).
- [7] J. Degert, "Manipulation coh rente d'atomes et de mol cules diatomiques avec des impulsions mises en forme," Th se, Universit  Paul Sabatier Toulouse 3 (2002).
- [8] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber, "Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses," *Science* **282**, 919-22 (1998).
- [9] M. Renard, "Contr le de la dynamique rotationnelle de mol cules par impulsions laser ultra-br ves mises en forme," Th se, Universit  de Bourgogne (2004).
- [10] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler and M. Motzkus, "Quantum control of energy flow in light harvesting," *Nature* **417**, 533-35 (2002).
- [11] E. Gershgoren, R. A. Bartels, J. T. Fourkas, R. Tobey, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn, "Simplified setup for high-resolution spectroscopy that uses ultrashort pulses," *Optics Letters* **28**(5), 361-63 (2003).
- [12] A. M. Weiner, "Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators," *Review of Scientific Instruments* **71**(5), 1929-60 (2000).
- [13] E. Marmois, "Etude photo-physique de nouveaux syst mes mol culaires fonctionnels bas s sur les styrylpyridines," Th se, Universit  Bordeaux 1 (2008).
- [14] A. Monmayrant, "Fa onnage et caract risation d'impulsions ultracourtes. Contr le coh rent de syst mes simples," Th se, Universit  Paul Sabatier Toulouse 3 (2005).
- [15] T. Brixner and G. Gerber, "Femtosecond polarization pulse shaping," *Optics Letters* **26**(8), 557-9 (2001).
- [16] A. Monmayrant and B. Chatel, "New phase and amplitude high resolution pulse shaper," *Review of Scientific Instruments* **75**(8), 2668-71 (2004).
- [17] M. B. Danailov and I. P. Christov, "Time-space shaping of light pulses by Fourier optical processing," *Journal of Modern Optics* **36**(6), 725-31 (1989).
- [18] M. M. Wefers and K. A. Nelson, "Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators," *Journal of the Optical Society of America B* **12**(7), 1343-62 (1995).

- [19] L. Wang and A. M. Weiner, "Programmable spectral phase coding of an amplified spontaneous emission light source," *Optics Communications* **167**(1-6), 211-24 (1999).
- [20] G. Stobrawa, M. Hacker, T. Feurer, D. Zeidler, M. Motzkus and F. Reichel, "A new high-resolution femtosecond pulse shaper," *Applied Physics B* **72**(5), 627-30 (2001).
- [21] A. M. Weiner and D. E. Leaird, "Generation of terahertz-rate trains of femtosecond pulses by phase-only filtering," *Optics Letters* **15**(1), 51-53 (1990).
- [22] M. Renard, R. Chaux, B. Lavorel and O. Faucher, "Pulse trains produced by phase-modulation of ultrashort optical pulses : tailoring and characterization," *Optics Express* **12**(3), 473-82 (2004).
- [23] A. Rundquist, A. Efimov and D. H. Reitze, "Pulse shaping with the Gerchberg-Saxton algorithm," *Journal of the Optical Society of America B* **19**(10), 2468-78 (2002).
- [24] M. M. Wefers and K. A. Nelson, "Space-time profiles of shaped ultrafast optical waveforms," *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**(1), 161-72 (1996).
- [25] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky and W. T. Vetterling, *Numerical recipes in C*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1988).
- [26] J. C. Vaughan, T. Feurer, K. W. Stone and K. A. Nelson, "Analysis of replica pulses in femtosecond pulse shaping with pixelated devices," *Optics Express* **14**(3), 1314-28 (2006).
- [27] A. P. Peirce, M. A. Dahleh and H. Rabitz, "Optimal control of quantum mechanical systems : existence, numerical approximation, and applications," *Physical Review A* **37**(12), 4950-68 (1988).
- [28] C. Daniel, J. Full, L. Gonzalez, C. Lupulescu, J. Manz, A. Merli, S. Vajda and L. Woste, "Deciphering the reaction dynamics underlying optimal control laser fields," *Science* **299**(5606), 536-39 (2003).
- [29] R. S. Judson and H. Rabitz, "Teaching lasers to control molecules," *Physical Review Letters* **68**(10), 1500-03 (1992).
- [30] G. Vogt, G. Krampert, P. Niklaus, P. Nuernberger and G. Gerber, "Optimal Control of Photoisomerization," *Physical Review Letters* **94**(068305), 1-4 (2005).
- [31] T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus and G. Gerber, "Photosensitive adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase," *Nature* **414**, 57-60 (2001).
- [32] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber, "Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses," *Science* **282**, 919-22 (1998).
- [33] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn, "Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays," *Nature* **406**, 164-66 (2000).
- [34] C. A. Schmuttenmaer, "A new method for measuring intramolecular charge transfer," *Science Progress* **85**(2), 175-97 (2002).
- [35] D. Zeidler, S. Frey, K. L. Kompa and M. Motzkus, "Evolutionary algorithms and their application to optimal control studies," *Physical Review A* **64**(023420), 1-4 (2001).
- [36] D. Meshulach, D. Yelin and Y. Silberberg, "Adaptive real-time femtosecond pulse shaping," *Journal of the Optical Society of America B* **15**(5), 1615-19 (1998).

- [37] D. Meshulach, D. Yelin and Y. Silberberg, "Adaptive ultra-short pulse compression and shaping," *Optics Communications* **138**, 345-48 (1997).
- [38] D. Yelin, D. Meshulach and Y. Silberberg, "Adaptive femtosecond pulse compression," *Optics Letters* **22**(23), 1793-95 (1997).
- [39] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber, "Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback," *Applied Physics B* **65**, 779-82 (1997).
- [40] A. Samoc, "Dispersion of refractive properties of solvents : Chloroform, toluene, benzene and carbon disulfide in ultraviolet, visible, and near-infrared," *Journal of Applied Physics* **94**(9), 6167-74 (2003).
- [41] C. Le Blanc, "Principes et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde haute intensité basée sur le Saphir dopé au Titane," Thèse, Ecole Polytechnique (1993).
- [42] D. T. F. Marple, "Refractive index of ZnSe, ZnTe, and CdTe," *Journal of Applied Physics* **35**(3), 539-42 (1964).

Chapitre IV

FAÇONNAGE D'IMPULSIONS TÉRAHERTZ

Le façonnage des impulsions ultra-brèves, décrit dans le chapitre III, a été jusqu'à présent très majoritairement utilisé pour des expériences de contrôle de l'interaction onde-matière réalisées dans le domaine du visible et du proche infrarouge [1, 2, 3]. Son extension au domaine THz présente un intérêt certain, notamment dans le cadre de la spectroscopie cohérente vibrationnelle.

Une première possibilité permettant de mettre en forme l'impulsion THz repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes dans un milieu organisé, généralement un cristal de $LiNbO_3$ constitué de plusieurs domaines polarisés (periodically poled lithium niobate ou PPLN en anglais) [4, 5, 6]. Cette technique permet la génération de spectres THz très étroits (0.02 THz à mi-hauteur) et accordables de 0.5 à 2.5 THz. Cependant, elle présente un inconvénient majeur : il faut adapter judicieusement la structure et la position du cristal générateur pour chaque mise en forme souhaitée. Dans le même type de cristal, Kuhl et *al.* ont démontré la possibilité d'utiliser un réseau transitoire créé par deux impulsions laser femtosecondes pour générer des spectres THz accordables de 0.5 à 3 THz et relativement étroits (0.1 THz) [7]. Dans cette expérience, la fréquence centrale du spectre généré est ajustée en changeant l'angle entre les deux faisceaux laser. Ces techniques permettent donc de mettre en forme l'impulsion THz mais la difficulté à générer rapidement des formes variées rend compliqué leur utilisation pour la réalisation d'expériences de contrôle cohérent ou optimal.

Une autre possibilité consiste à façonner l'impulsion laser servant à la génération. Par exemple, Kim et *al.* ont utilisé un masque spatial non programmable, placé dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle, pour mettre en forme l'impulsion laser génératrice et obtenir, à l'aide de photocommutateurs, des spectres THz accordables de 0.5 à 3 THz et présentant une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0.5 THz [8]. L'inconvénient de cette méthode repose sur le fait qu'il faille utiliser un masque différent pour chaque mise en forme souhaité. En 2003, Taylor et *al.* ont utilisé des impulsions laser femtosecondes façonnées, à l'aide d'un modulateur à cristaux liquides, et un algorithme d'optimisation de type Gerchberg-Saxton pour générer, par redressement optique, des impulsions THz mises en forme [9]. Le principe de leur technique est le suivant : connaissant le spectre initial de l'impulsion laser génératrice et la forme de l'impulsion THz souhaitée, ils utilisent un algorithme pour déterminer la modulation de phase à appliquer à l'impulsion laser. Cette approche empirique permet la génération de formes variées comme des trains d'impulsions ou des impulsions d'aire nulle. Plus récemment, Rühle et *al.* ont démontré la possibilité de générer des monocycles THz à l'aide d'un dispositif de mise en forme couplé à un algorithme d'optimisation [10]. Dans cette approche en boucle fermée, c'est l'algorithme qui teste différentes modulations de phase spectrale jusqu'à obtenir une forme d'impulsion THz proche de celle souhaitée par l'utilisateur. Dans ces différentes approches, l'expérimentateur est tributaire de la vitesse et de la capacité de convergence d'un algorithme.

Dans ce chapitre, nous allons présenter la technique de mise en forme des impulsions développée au cours de cette thèse qui nous a permis de générer des impulsions *THz* originales, notamment des paires d'impulsions verrouillées en phase ainsi que des impulsions *THz* accordables de grande finesse spectrale.

Nous avons choisi une approche analytique qui repose sur le redressement optique, dans un cristal de ZnTe, d'impulsion laser femtosecondes mises en forme à l'aide d'un masque à cristaux liquides. Cette technique s'appuie sur une bonne compréhension des mécanismes gouvernant le processus de génération et présente l'avantage de ne pas nécessiter l'emploi d'algorithmes d'optimisations. De plus, la capacité à générer très rapidement des formes variées permet d'envisager la réalisation expérimentale du contrôle optimal dans ce domaine de fréquence. Afin de démontrer la validité de notre approche, nous avons également développé un programme de simulation qui donne des résultats en très bon accord avec l'expérience et qui offre la possibilité d'étudier la génération d'impulsions ayant des formes et des phases temporelles adaptées aux milieux étudiés.

Ce chapitre est organisé de la manière suivante : dans un premier temps, nous verrons qu'une simple modulation sinusoïdale de la phase spectrale de l'impulsion laser génératrice permet d'obtenir des spectres *THz* accordables de 0.5 à 3 THz. Dans un second temps, nous montrerons qu'une modulation de phase triangulaire entraîne la génération de paires d'impulsions *THz* verrouillées en phase. Enfin, nous verrons que des combinaisons de ces deux types de modulation permettent d'une part la génération de paires de trains d'impulsions *THz* verrouillées en phase et d'autre part la génération de spectres très étroits (jusqu'à 0.14 THz à mi-hauteur). Les différents résultats obtenus seront comparés à ceux provenant du programme de simulation.

IV.1 Génération d'impulsions *THz* accordables spectralement

Cette partie est consacrée à l'étude de la génération par redressement optique d'impulsions femtosecondes mises en forme de champs *THz* de spectre étroit et accordable. Dans un premier temps, à partir des résultats analytiques établis au chapitre I, nous montrerons comment parvenir à nos fins en jouant sur la phase spectrale de l'impulsion optique. Dans un second temps, nous détaillerons la mise en œuvre expérimentale de cette technique. Enfin, nous présenterons les principaux résultats obtenus et nous verrons que notre approche permet de prédire avec une excellente fiabilité ces résultats expérimentaux.

IV.1.1 Analyse théorique

À la section I.1.3.3, nous avons établi que le champ électrique $E_{THz}(\Omega, z)$ généré par redressement optique dans un cristal de ZnTe d'épaisseur z était donné par :

$$E_{THz}(\Omega, z) = iz \frac{\Omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\Omega) C(\Omega) \frac{1}{k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}} e^{i\left(k_{THz}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}\right) \frac{z}{2}} \text{sinc} \left[\Delta k \frac{z}{2} \right]. \quad (\text{IV.1})$$

Dans cette expression, deux termes ont un rôle prépondérant sur la fréquence à laquelle sera centré le spectre *THz* :

– le premier d'entre eux est le terme d'accord de phase $\text{sinc} \left[\Delta k \frac{z}{2} \right]$. Il ne dépend du spectre de l'impulsion optique que via sa longueur d'onde centrale λ_0 : en l'absence de mise en forme de l'impulsion optique (i.e. pour une impulsion limitée par transformée de Fourier (TL en abrégé)), c'est lui qui fixe la longueur d'onde à laquelle est centré le spectre THz. On peut ajuster cette fréquence centrale en changeant la longueur d'onde de l'impulsion laser génératrice [11, 12]. Cependant, les chaînes amplifiées à 800 nm étant peu accordables, cette technique est assez limitée. En outre, elle ne permet pas le contrôle de la largeur du spectre THz généré.

– Le second terme est $C(\Omega)$. Il représente la densité spectrale d'énergie de l'impulsion pompe et s'exprime de la manière suivante :

$$C(\Omega) = \int \frac{d\omega}{2\pi} E_0(\omega, 0) E_0^*(\omega - \Omega, 0) = \int \frac{d\omega}{2\pi} A(\omega) A(\omega - \Omega) e^{i[\varphi(\omega) - \varphi(\omega - \Omega)]}, \quad (\text{IV.2})$$

où $A(\omega)$ et $\varphi(\omega)$ représentent respectivement l'amplitude et la phase spectrale de l'impulsion laser. Ce terme, analogue à un terme d'interférences, détermine avec quelle efficacité toutes les paires de photons d'une même impulsion d'énergies respectives $\hbar\omega$ et $\hbar(\omega - \Omega)$ vont interagir dans le milieu non-linéaire pour générer un photon THz d'énergie $\hbar\Omega$. Il est donc particulièrement sensible au déphasage entre les différentes composantes spectrales de l'impulsion laser. Pour une impulsion TL, toutes les composantes spectrales étant en phase, les interférences sont constructives sur une large gamme spectrale dans le domaine THz et $C(\Omega)$ est à son maximum quelle que soit la pulsation Ω (cf. figure IV.1 a)). Dans ces conditions, la génération du spectre THz est principalement gouvernée par la condition d'accord de phase et l'on obtient un spectre tel que celui représenté sur la figure IV.1 c) (dans cette simulation, l'épaisseur du cristal générateur est de 300 μm).

Cependant, il a été montré qu'une modulation périodique de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ permettrait de moduler l'amplitude de la densité spectrale d'énergie [13, 14]. Plus précisément, pour une impulsion laser ayant une phase spectrale de la forme

$$\varphi(\omega) = a \times \sin(\omega/F_{rep}),$$

les interférences ne sont plus constructives que pour les fréquences $F = \Omega/2\pi = n \times F_{rep}$ (où n est un entier naturel) et $C(\Omega)$ présente des pics centrés à ces fréquences (cf. figure IV.1 d)). La fonction $\text{sinc} \left[\Delta k \frac{z}{2} \right]$, qui reste inchangée, se comporte alors comme un filtre spectral permettant de sélectionner uniquement le pic centré à $F = F_{rep}$. Le spectre THz résultant est donc maintenant centré à F_{rep} et plus à la fréquence centrale imposée par la condition d'accord de phase (cf. figure IV.1 e)). Il suffit alors de changer le paramètre F_{rep} pour décaler la position du spectre THz généré. La principale limitation de cette technique provient des valeurs minimale et maximale que peut prendre F_{rep} et qui sont imposées par le support du spectre THz obtenu sans mise en forme. L'intérêt est donc de travailler avec un spectre le plus large possible au départ (avec une phase plate) pour disposer ensuite d'une source THz accordable sur une large gamme spectrale. En changeant la période de modulation F_{rep} de la phase spectrale, il devient possible de déplacer le spectre THz généré (cf. figure IV.1 f) en noir) sous le spectre obtenu avec une phase plate (cf. figure IV.1 f) en pointillés rouges).

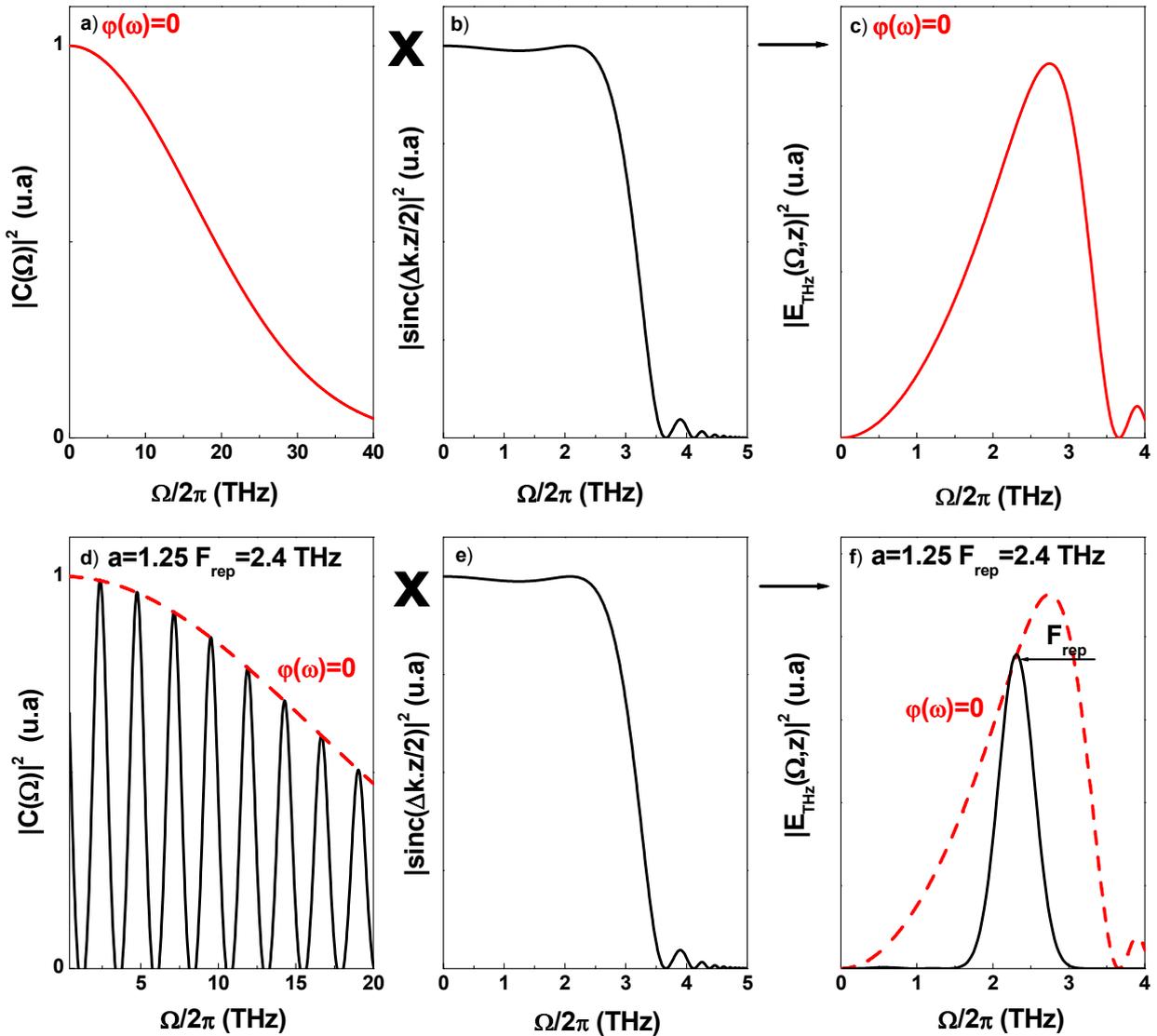


FIGURE IV.1 – a) Densité spectrale d'énergie d'une impulsion laser femtoseconde de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 785$ nm, de largeur spectrale à mi-hauteur 40 nm et limitée par transformée de Fourier : $\varphi(\omega) = 0$. b) Evolution de $|\text{sinc}(\Delta k.z/2)|^2$ en fonction de Ω pour un cristal générateur de ZnTe de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur. c) Spectre THz généré dans un cristal de ZnTe d'épaisseur $z = 300 \mu\text{m}$ par redressement optique d'une impulsion femtoseconde limitée par transformée de Fourier. d) Densité spectrale d'énergie d'une impulsion laser dont la phase spectrale est modulée sinusoïdalement : $\varphi(\omega) = a \times \sin(\omega/F_{\text{rep}})$ avec $a = 1.25$ et $F_{\text{rep}} = 2.4$ THz. e) La condition d'accord de phase est inchangée (identique à b)). e) Spectre THz associé à d) et e). Le spectre est désormais centré autour de $F_{\text{rep}} = 2.4$ THz.

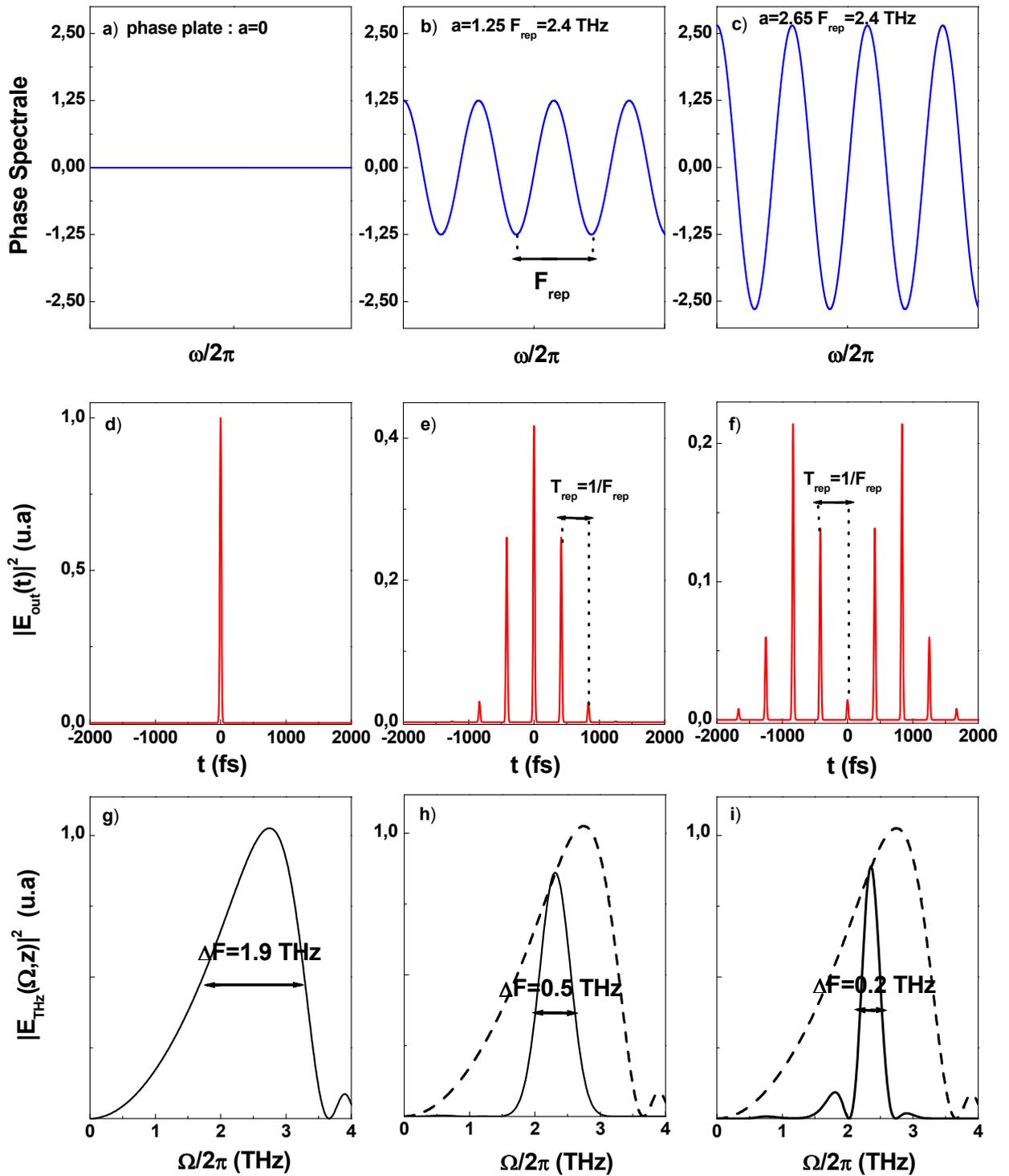


FIGURE IV.2 – a) Phase spectrale plate : $a = 0$. b) Modulation sinusoïdale de la phase : $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2.4$ THz. c) $a = 2.65$ et $F_{rep} = 2.4$ THz. d) Impulsion TL théorique associée au cas a . e) Train d'impulsions théorique associé au cas b . f) Train d'impulsions théorique associé au cas c . g) Spectre THz généré dans un cristal de ZnTe d'épaisseur $z = 300 \mu\text{m}$ par redressement optique d'une impulsion femtoseconde de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 785 \text{ nm}$ et limitée par transformée de Fourier. h) Spectre THz généré pour le cas b (trait plein). i) Spectre THz généré pour le cas c (trait plein).

On peut également interpréter les phénomènes décrits au paragraphe précédent en se plaçant dans le domaine temporel. En effet, nous avons vu précédemment (cf. partie III.4.2) que l'application d'une phase spectrale de la forme $\varphi(\omega) = a \times \sin(\omega/F_{rep})$ conduisait, dans le domaine temporel, à la génération d'un train d'impulsions laser de taux de répétition F_{rep} et dont le nombre d'impulsions dépendait de l'amplitude de la modulation a . Par redressement optique, chacune de ces impulsions donne son propre champ THz, analogue à celui engendré par une impulsion TL. Ces différents champs s'ajoutent ensuite de manière cohérente pour donner un champ THz oscillant à la fréquence F_{rep} (comme on peut le voir par exemple sur la figure IV.5). Une augmentation du paramètre a entraîne alors une augmentation du nombre d'impulsions dans le train et donc une augmentation du nombre d'ondes THz qui vont interférer. Le principal effet observé est donc une réduction de la largeur du spectre THz généré, celui-ci étant toujours centré à la fréquence F_{rep} . La largeur à mi-hauteur ΔF du spectre THz varie de 1.9 THz pour une phase plate (cf. figure IV.2 g)) à 0.5 THz pour $a = 1.25$ (cf. figure IV.2 h)) et 0.2 THz pour $a = 2.65$ (cf. figure IV.2 i)). Cependant, lorsque l'amplitude de la modulation devient importante, on observe l'apparition de rebonds de part et d'autre du spectre (cf. figure IV.2 i)). Ces derniers proviennent du fait que les impulsions présentes dans le train n'ont pas toutes la même amplitude.

Nous disposons donc de deux paramètres ajustables, a et F_{rep} , qui nous permettent de contrôler à la fois la largeur et la fréquence centrale du spectre THz. Il est également possible de générer des impulsions THz accordables en fréquence par redressement optique en mettant en forme spatialement l'impulsion laser incidente [15, 16].

IV.1.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental servant à la génération d'impulsions THz accordables en fréquence est pratiquement identique à celui présenté dans le chapitre I (cf. partie I.3). La seule différence apportée consiste maintenant à faire passer l'impulsion pompe servant à la génération THz dans un dispositif de mise en forme, constitué d'un masque à cristaux liquides et d'une ligne à dispersion nulle, permettant de moduler la phase spectrale de l'impulsion (cf. figure IV.3). Le façonneur d'impulsions ainsi que la chaîne laser utilisée ont été présentés au chapitre III. Pour mémoire, les caractéristiques des impulsions de sortie du laser sont les suivantes :

- longueur d'onde centrale : $\lambda_0 = 785$ nm.
- largeur spectrale à mi-hauteur : $\Delta\lambda = 40$ nm.
- durée d'impulsion : $\tau_p = 30$ fs.
- taux de répétition : 400 Hz.
- énergie par impulsion : 400 μ J.

Nous utilisons des cristaux de ZnTe relativement fins ($z = L = 300$ μ m) afin de disposer d'un spectre THz le plus large possible avec une phase plate. L'intensité de l'impulsion laser incidente sur le cristal générateur est choisie relativement faible, de l'ordre de $I_p = 2$ GW/cm², pour limiter les effets de rétrécissement spectral liés au processus d'absorption à deux photons (cf. chapitre II). Nous allons désormais présenter les résultats obtenus.

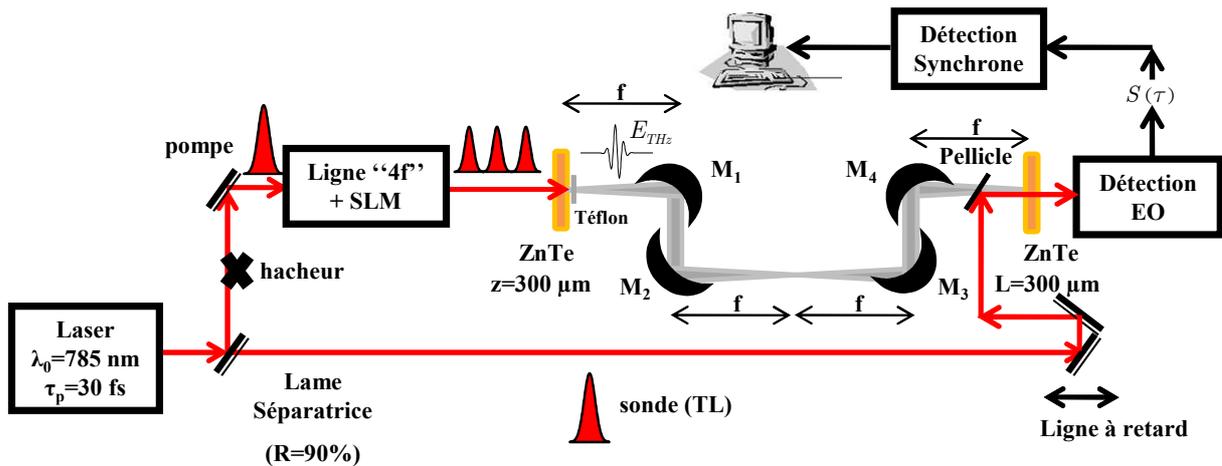


FIGURE IV.3 – Dispositif expérimental de génération d'impulsions THz accordables spectralement. Un façonneur d'impulsion constitué d'une ligne 4f et d'un SLM permet d'appliquer une phase spectrale sinusoïdale à l'impulsion pompe génératrice.

IV.1.3 Résultats

Dans cette partie, nous allons exposer les résultats obtenus pour différentes mises en forme de l'impulsion laser génératrice. Nous avons complété le programme de simulation présenté dans le chapitre I (cf. partie I.3.3) en insérant la modulation sinusoïdale de la phase spectrale de l'impulsion laser. Nous sommes ainsi en mesure de déterminer numériquement le signal électro-optique attendu pour chaque mise en forme.

IV.1.3.1 Phase plate : $\varphi(\omega) = 0$

La figure IV.4 b) représente le signal électro-optique obtenu avec notre dispositif expérimental pour une impulsion limitée par transformée de Fourier. Le spectre THz associé est quant à lui représenté sur la figure IV.4 c), il est centré autour de 1.8 THz (cf. chapitre II pour explications sur l'influence de l'intensité laser sur la position du spectre) et présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de $\Delta F = 2$ THz. La présence du phonon TA à 1.6 THz dans les ZnTe générateur et détecteur permet d'expliquer l'allure du spectre autour de cette fréquence.

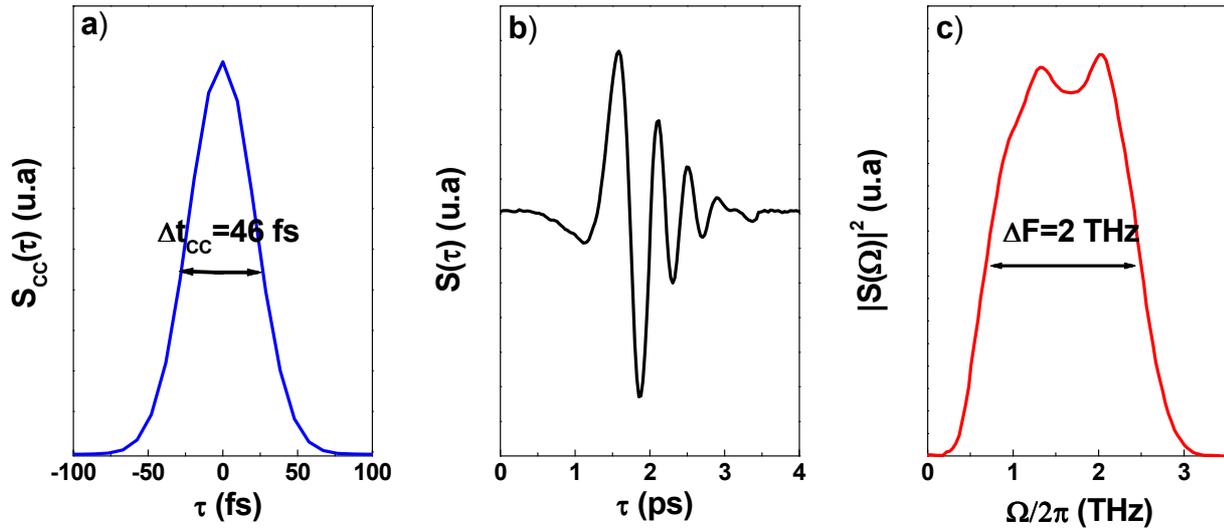


FIGURE IV.4 – Résultats expérimentaux obtenus avec une impulsion limitée par transformée de Fourier. a) Signal de cross-corrélation de l'impulsion femtoseconde. b) Signal électro-optique dans le domaine temporel. c) Spectre THz associé à b) de largeur à mi-hauteur $\Delta F = 2$ THz.

IV.1.3.2 Modulation sinusoïdale de la phase spectrale

Nous allons présenter dans cette partie les résultats expérimentaux obtenus pour différentes modulations de phase sinusoïdale de la forme : $\varphi(\omega) = a \times \sin(\omega/F_{rep})$ et nous les comparerons à ceux obtenus avec notre programme de simulation.

* $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2.4$ THz.

Les résultats obtenus pour une phase spectrale sinusoïdale ayant pour paramètres $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2.4$ THz sont présentés sur la figure IV.5. Dans le domaine temporel, une telle modulation de phase correspond à la génération d'un train d'impulsions laser de taux de répétition $F_{rep} = 2.4$ THz. Pour une amplitude de modulation $a = 1.25$, nous observons 5 impulsions dans le train (cf. figure IV.5 a)). Chaque impulsion laser génère une impulsion THz analogue à celle obtenue avec une phase plate (cf. figure IV.4 b)). Les impulsions THz s'ajoutent de manière cohérente dans le cristal générateur et conduisent au signal électro-optique de la figure IV.5 b). Nous observons une augmentation du nombre d'oscillations à la fréquence $F = F_{rep} = 2.4$ THz. Par conséquent, le spectre THz est désormais centré à cette fréquence et présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0.5 THz (cf. figure IV.5 c)). Nous observons un très bon accord entre ces résultats et ceux obtenus à l'aide de notre programme de simulation.

Ces résultats peuvent également être interprétés en se plaçant dans le domaine spectral et en reprenant l'analyse théorique de la partie précédente (cf partie IV.1.1). Pour une telle modulation de phase, les interférences spectrales sont constructives uniquement pour les fréquences $F = n \times 2.4$ THz (où n est un entier naturel) et la densité spectrale d'énergie $C(\Omega)$ présente des pics centrés à ces fréquences. La condition d'accord de phase permet de sélectionner uniquement le pic principal centré à $F = F_{rep} = 2.4$ THz. Le spectre THz résultant est donc centré à cette

fréquence.

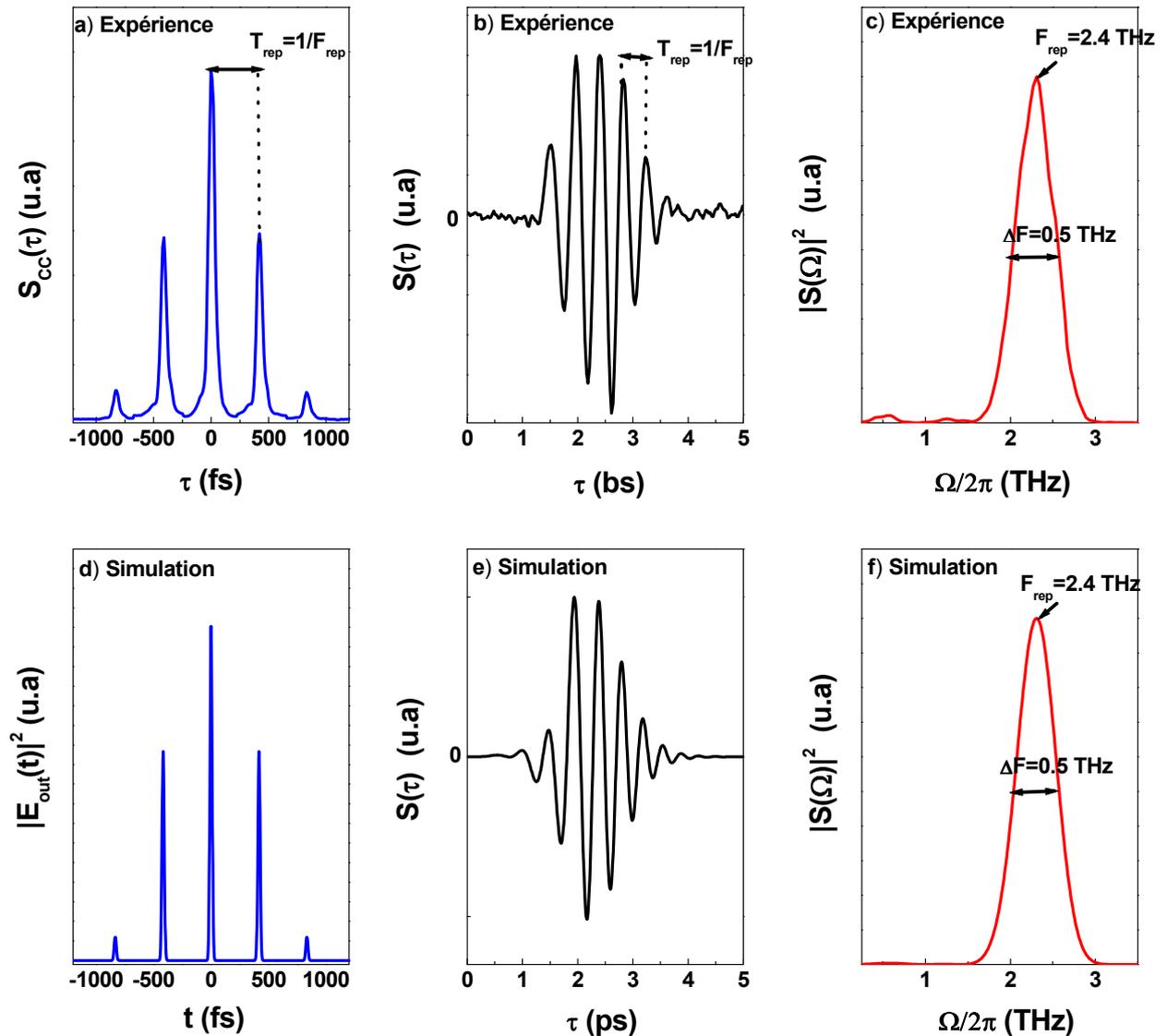


FIGURE IV.5 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase sinusoïdale ayant pour paramètres : $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2.4$ THz. a) Signal de cross-corrélation du train d'impulsions associé à cette phase spectrale. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Train d'impulsions théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

* $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2$ THz.

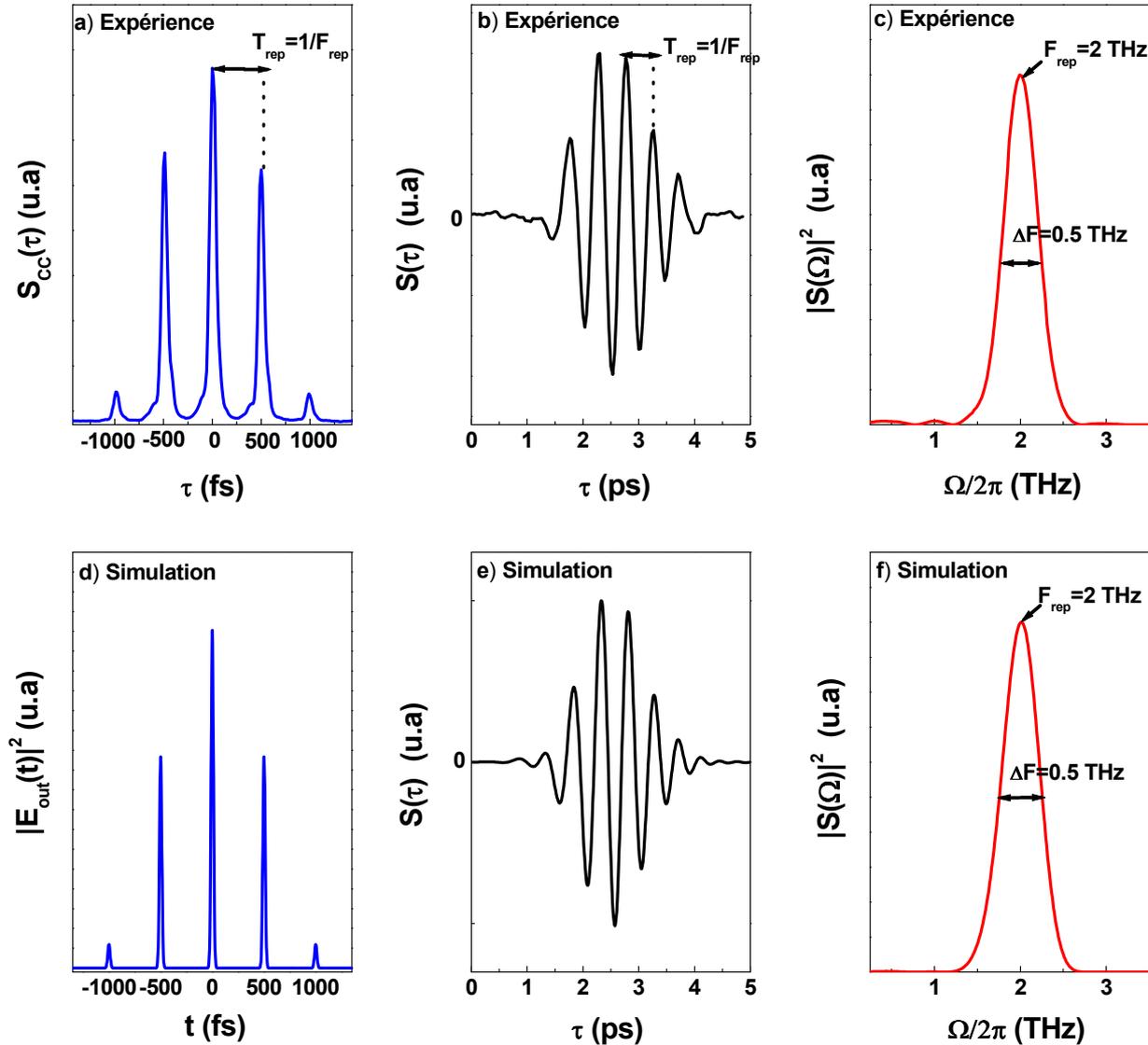


FIGURE IV.6 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase sinusoïdale ayant pour paramètres : $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2$ THz. a) Train d'impulsions associé à cette phase spectrale. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Train d'impulsions théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

Comme pour le cas précédent, nous gardons dans cette expérience le paramètre $a = 1.25$ mais nous changeons la valeur du paramètre F_{rep} . Nous constatons que le spectre THz est désormais centré à $F = F_{rep} = 2$ THz et qu'il présente toujours une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0.5 THz en accord avec les prédictions théoriques.

* $a = 1.25$ et $F_{rep} = 1.6$ THz.

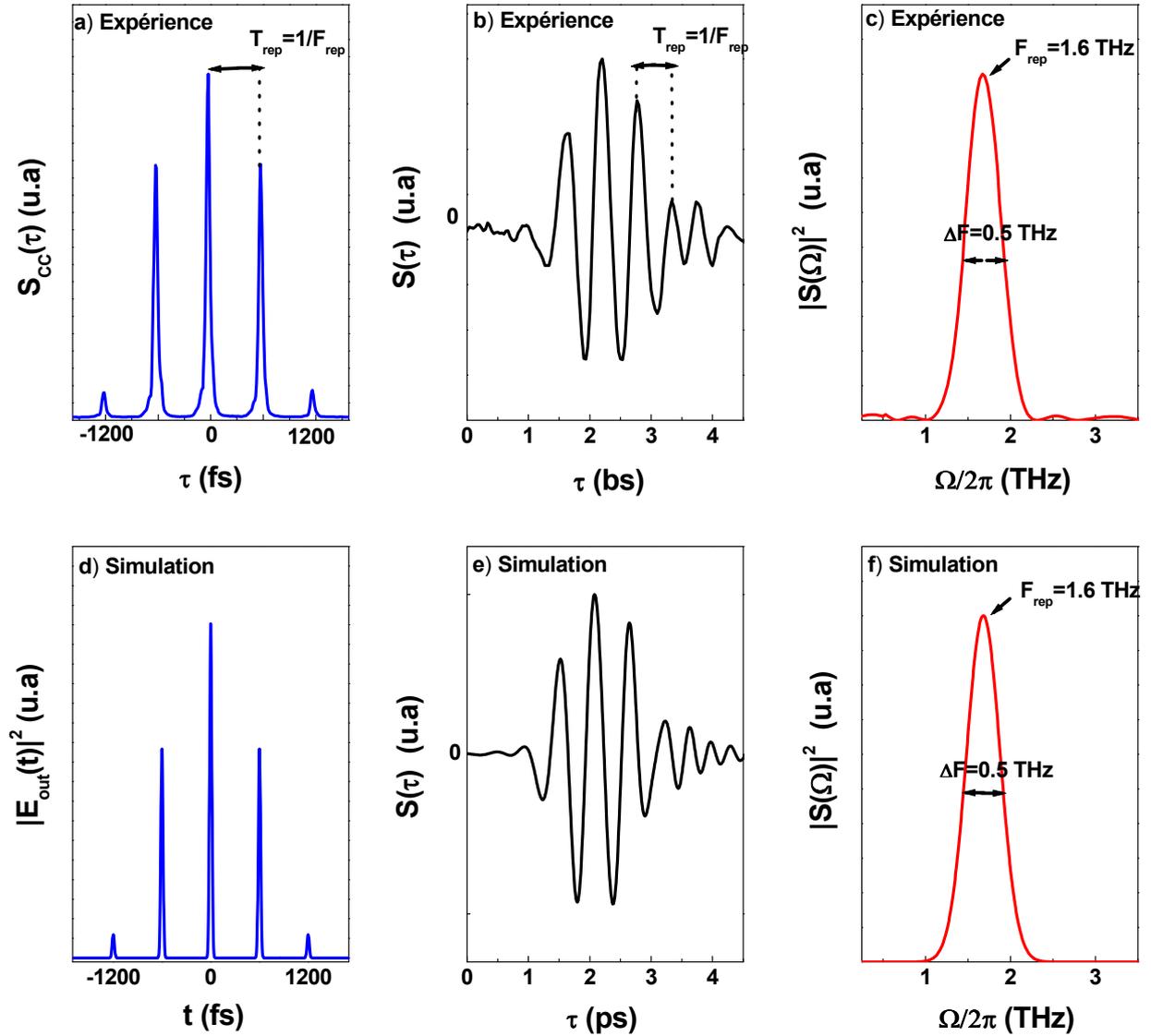


FIGURE IV.7 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase sinusoïdale ayant pour paramètres : $a = 1.25$ et $F_{rep} = 1.6$ THz. a) Train d'impulsions résultant. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Train d'impulsions théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

Comme précédemment, on garde le paramètre a fixé et on change la valeur du paramètre F_{rep} . Le spectre est désormais centré à $F = F_{rep} = 1.6$ THz et présente une largeur à mi-hauteur de 0.5 THz. Les résultats expérimentaux et numériques sont en très bon accord.

* $a = 1.25$ et $F_{rep} = 1$ THz.

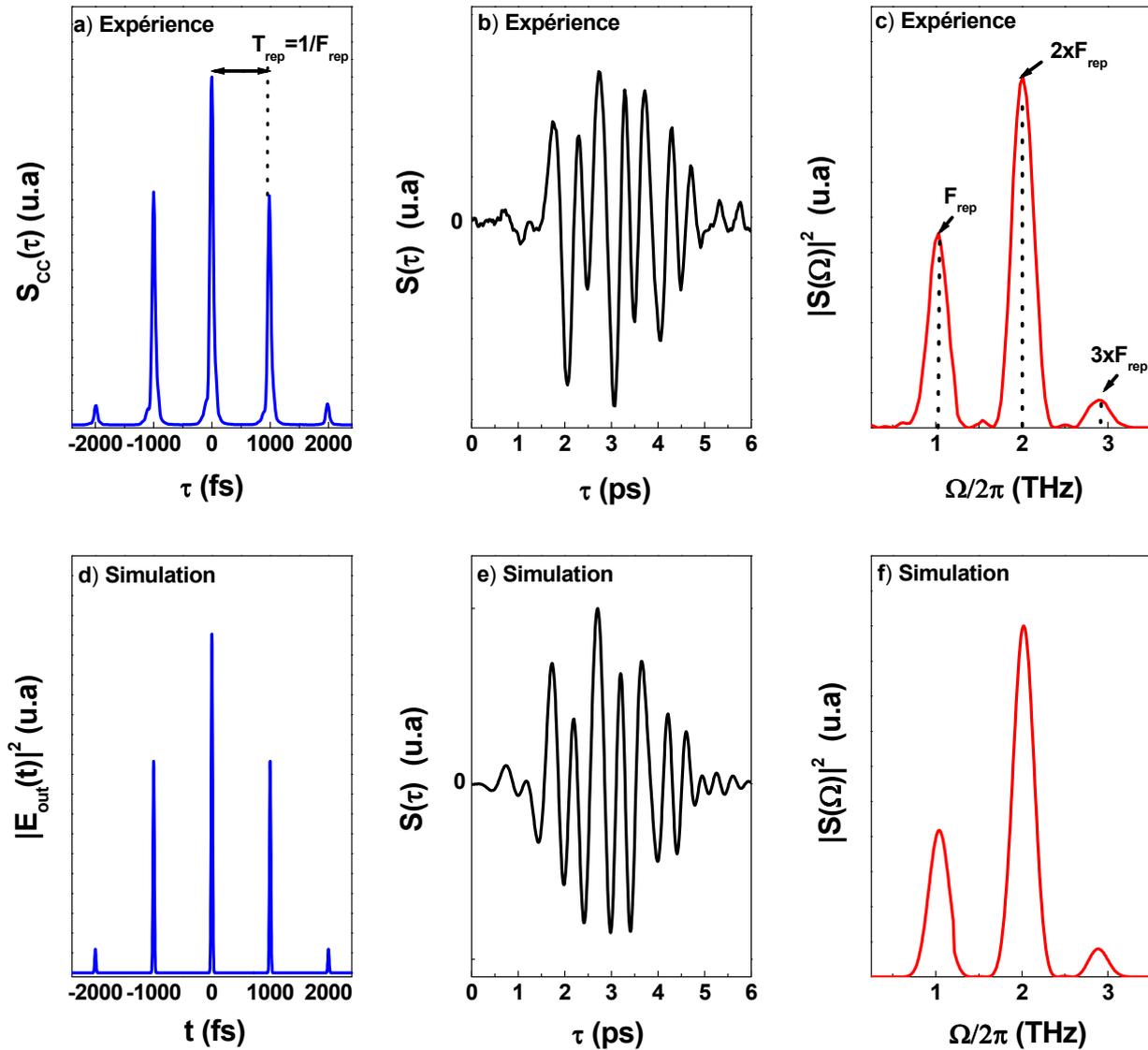


FIGURE IV.8 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase sinusoïdale ayant pour paramètres : $a = 1.25$ et $F_{rep} = 1$ THz. a) Train d'impulsions associé à cette phase spectrale. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Train d'impulsions théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

Pour $F_{rep} = 1$ THz, nous obtenons un spectre THz centré à $F = F_{rep}$ mais aussi les harmoniques double et triple de ce signal (cf. figure IV.8 c)). Ce résultat est en accord avec les prédictions théoriques. En effet, la combinaison de la densité spectrale d'énergie, qui présente des pics centrés en $F = n \times 1$ THz, et de la condition d'accord de phase, maximale autour de 2 THz, conduit aux résultats de la figure IV.8. Avec une telle modulation de phase, le spectre généré est situé sous le spectre obtenu avec une phase plate, ce qui explique le poids relatif des différents harmoniques.

* $a = 2.65$ et $F_{rep} = 2.4$ THz.

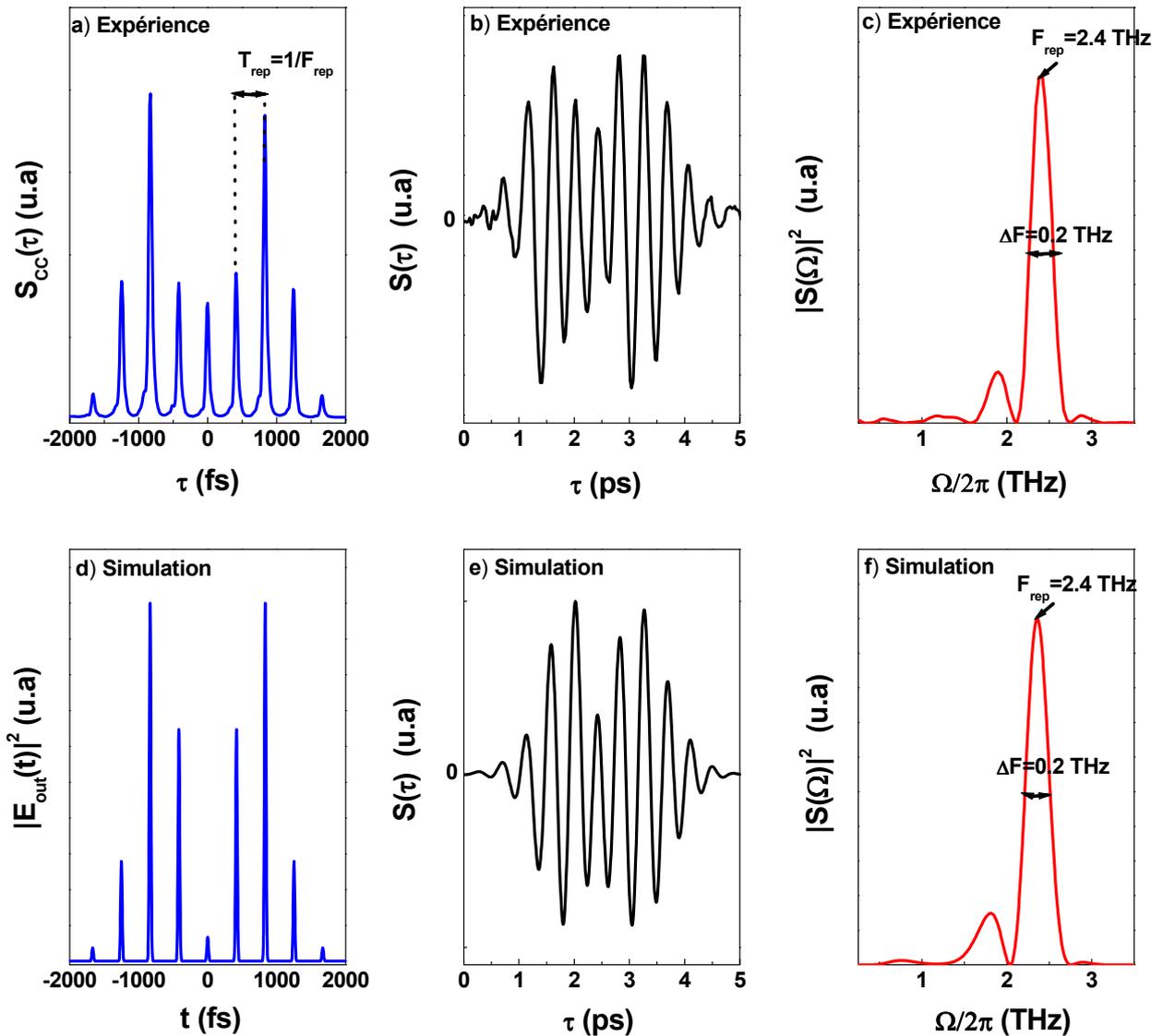


FIGURE IV.9 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase sinusoïdale ayant pour paramètres : $a = 2.65$ et $F_{rep} = 2.4$ THz. a) Train d'impulsions résultant. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Train d'impulsions théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

Nous programmons désormais une amplitude de modulation plus élevée que précédemment ce qui entraîne une augmentation du nombre d'impulsions dans le train. Pour $a = 2.65$, nous obtenons 9 impulsions (cf. figure IV.9 a)). Nous observons ainsi une augmentation du nombre d'oscillations à la fréquence $F_{rep} = 2.4$ THz dans le signal électro-optique (cf. figure IV.9 b)). Le spectre THz associé est donc plus étroit que précédemment ($\Delta F = 0.2$ THz), ce dernier étant centré à la fréquence $F_{rep} = 2.4$ THz. Cependant, les impulsions laser n'ayant pas toutes la même intensité, nous observons des rebonds de part et d'autre du spectre (cf. figure IV.9 c)).

IV.1.4 Bilan

Dans cette partie, nous allons effectuer un bilan des principaux résultats présentés précédemment.

IV.1.4.1 Contrôle de la fréquence centrale du spectre généré

La figure IV.10 reprend une partie de ces résultats. L'amplitude de la modulation de la phase spectrale est fixée à $a = 1.25$, on fait varier le paramètre F_{rep} de $F_{max} = 2.4$ THz à $F_{min} = 1$ THz et nous observons un décalage du spectre THz de F_{max} à F_{min} . Ce dispositif expérimental permet donc le contrôle de la fréquence centrale du spectre THz généré en accord avec les prédictions théoriques. Nous observons un très bon accord entre les spectres expérimentaux (en rouge) et les résultats théoriques (en noir).

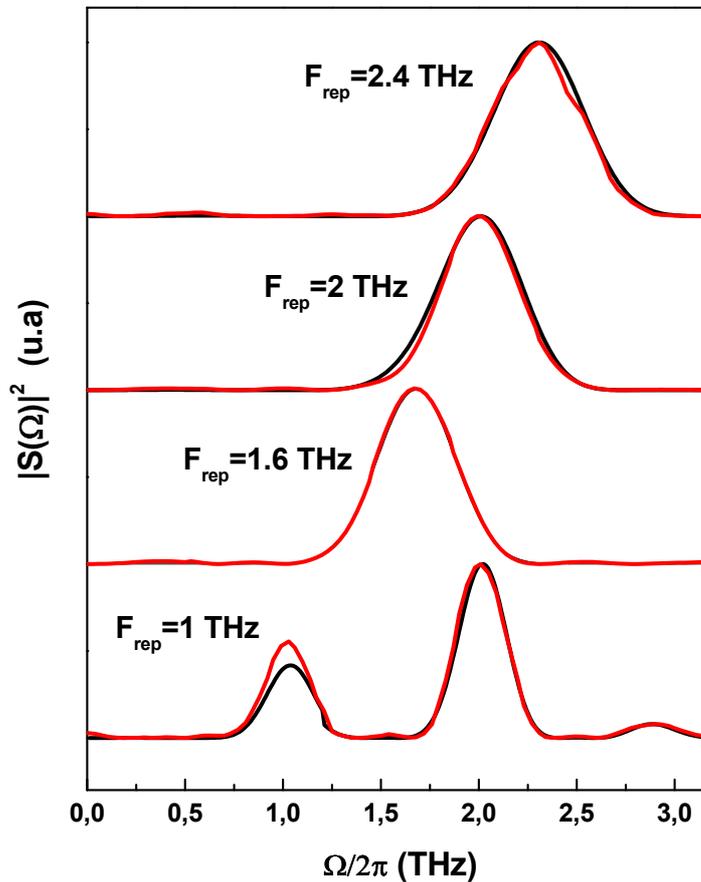


FIGURE IV.10 – Contrôle de la fréquence centrale du spectre THz généré. On fixe le paramètre $a = 1.25$ et on fait varier le paramètre F_{rep} de 2.4 THz à 1 THz. Les courbes rouges (resp. noires) correspondent aux spectres expérimentaux (resp. théoriques).

IV.1.4.2 Contrôle de la largeur du spectre THz

Dans cette partie, la fréquence de modulation est fixée à $F_{rep} = 2$ THz et on fait varier l'amplitude de la modulation a . Une meilleure sélectivité spectrale est obtenue en augmentant le paramètre a c'est-à-dire le nombre d'impulsions lasers dans le train et donc le nombre d'impulsions THz qui vont interférer. En effet, la largeur du spectre THz varie de 0.5 THz pour $a = 1.25$ à 0.2 THz pour $a = 2.65$ (cf. figure IV.11).

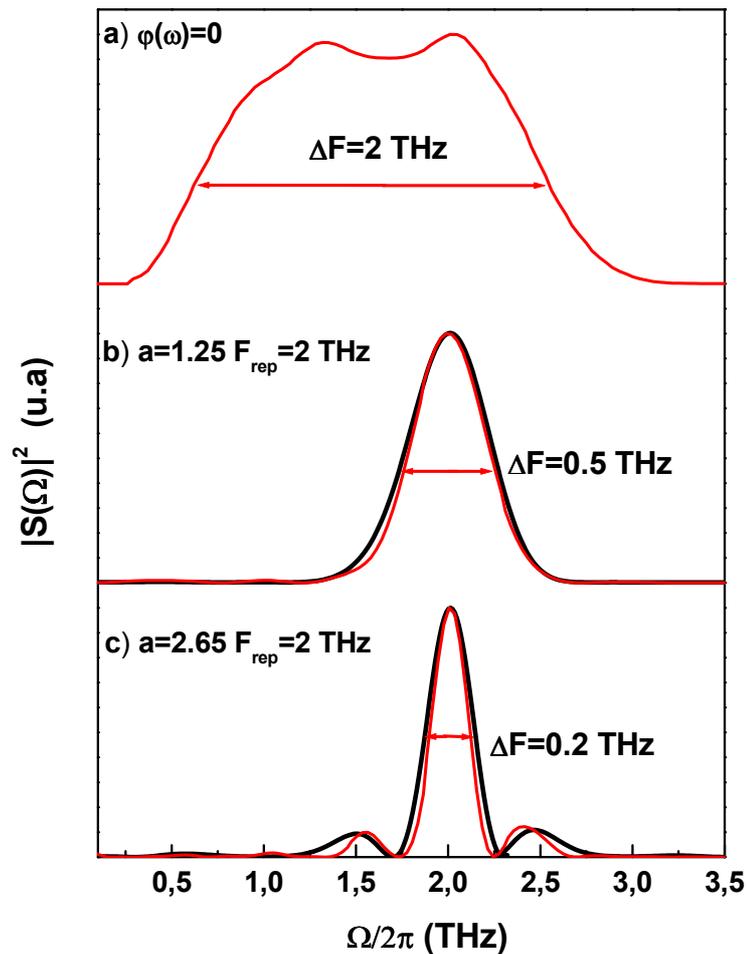


FIGURE IV.11 – Contrôle de la largeur du spectre THz généré. On fixe le paramètre $F_{rep} = 2$ THz et on fait varier l'amplitude de la modulation a de 1.25 à 2.65. La largeur du spectre varie de 0.5 à 0.2 THz. Les courbes rouges (resp. noires) correspondent aux spectres expérimentaux (resp. théoriques).

IV.2 Génération de paires d'impulsions térahertz verrouillées en phase

La génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase présente un intérêt majeur pour la réalisation d'expériences de contrôle cohérent de systèmes quantiques. En effet, l'utilisation d'une séquence de deux impulsions cohérentes entre elles permet la création de deux chemins d'excitation séparés temporellement qui connectent, depuis un état initial, un même état final. Le contrôle cohérent temporel est basé sur les interférences entre ces deux chemins d'excitation. Autrement dit, la première impulsion crée un paquet d'onde dans l'état excité qui peut être annihilé ou amplifié par interférence destructive ou constructive avec le paquet d'onde créé par la seconde impulsion [3]. Ce type d'expérience a notamment été réalisé sur des systèmes en phase gazeuse excités de manière résonnante à l'aide de un ou plusieurs photons [17, 18, 19], sur des systèmes en phase liquide [20] et à l'état solide [21, 22, 23]. L'idée consiste à étendre ce type d'expériences de contrôle cohérent temporel jusqu'au domaine *THz* afin de pouvoir étudier et contrôler des modes de rotation et de vibration basse fréquence qui gouvernent des processus fondamentaux [24, 25]. La principale limitation réside dans la difficulté à générer des paires d'impulsions térahertz verrouillées en phase. Une première approche consiste à générer une paire d'impulsions laser verrouillées en phase à l'aide d'un interféromètre de Michelson (ou de Mach-Zehnder) pour obtenir ensuite une paire d'impulsions térahertz par redressement optique ou à l'aide de photocommutateurs [26, 27]. Cette technique a notamment été utilisée pour le contrôle de modes de rotation de molécules en phase gazeuse [26] et de l'émission libre cohérente de la vapeur d'eau [28]. Cependant, cette approche est difficile à mettre en œuvre expérimentalement car il faut que l'interféromètre soit stabilisé à bien mieux que la moitié d'une longueur d'onde optique pour conserver la relation de phase.

Nous proposons ici une approche différente pour générer une telle paire d'impulsions *THz* qui repose sur le redressement optique d'une paire d'impulsions laser verrouillées en phase préalablement générée à l'aide de notre dispositif de mise en forme (présenté au chapitre III). Cette technique présente l'avantage de pouvoir contrôler simplement le délai et le rapport d'amplitude entre les impulsions tout en conservant la relation de phase.

IV.2.1 Génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase

Tout d'abord, nous allons effectuer une analyse théorique de la génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase à l'aide de notre façonneur d'impulsions. Considérons le cas d'une impulsion laser femtoseconde de profil temporel gaussien, limitée par transformée de Fourier et de durée τ_p à l'entrée du dispositif de mise en forme. L'expression du champ électrique, d'amplitude E_0 , qui lui est associée est la suivante :

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{T_p^2}\right) \exp(-i\omega_0 t), \quad (\text{IV.3})$$

où ω_0 est la pulsation centrale et $T_p = \tau_p / \sqrt{2 \ln 2}$ représente la demi-largeur à $1/e$ du champ électrique. Une telle impulsion a une amplitude spectrale gaussienne $E(\omega)$ donnée par :

$$E(\omega) = E_0 T_p \sqrt{\pi} \exp\left[-((\omega - \omega_0) / \Delta\omega)^2\right], \quad (\text{IV.4})$$

où $\Delta\omega$ représente la demi-largeur à $1/e$. Appliquons à cette impulsion une modulation de phase triangulaire de la forme :

$$\varphi(\omega) = -\Delta\tau |\omega - \omega_r| , \quad (\text{IV.5})$$

où $\Delta\tau$ représente la pente de la phase spectrale ($\Delta\tau > 0$) et ω_r est la pulsation de rebroussement c'est-à-dire la pulsation pour laquelle la pente de la phase change de signe (cf. figure IV.12). Dans le domaine temporel, le champ électrique complexe résultant $E_{out}(t)$ s'écrit, dans le cas particulier où $\omega_r = \omega_0$, de la manière suivante [29] :

$$E_{out}(t) = E_1(t) + E_2(t) , \quad (\text{IV.6})$$

avec

$$E_{\frac{1}{2}}(t) = \frac{E_0}{2} \exp(-i\omega_0 t) \exp\left[-\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)^2}{2}\right)\right] \left[1 \mp i \operatorname{erfi}\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)}{2}\right)\right] , \quad (\text{IV.7})$$

où $\operatorname{erfi}(x)$ est la fonction erreur antisymétrique définie par :

$$\operatorname{erfi}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(y^2) dy . \quad (\text{IV.8})$$

De l'expression IV.7, on peut déduire les amplitudes et les phases temporelles des champs $E_1(t)$ et $E_2(t)$. Les amplitudes $A_1(t)$ et $A_2(t)$ sont données par :

$$A_{\frac{1}{2}}(t) = \frac{E_0}{2} \exp\left[-\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)^2}{2}\right)\right] \left[1 + \left[\operatorname{erfi}\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)}{2}\right)\right]^2\right]^{\frac{1}{2}} . \quad (\text{IV.9})$$

Nous constatons que ces deux amplitudes ont exactement la même forme temporelle, c'est-à-dire une gaussienne centrée respectivement en $t = -\Delta\tau$ et $t = +\Delta\tau$ légèrement déformée par la fonction erfi . Lorsque $\Delta\tau$ est supérieur à τ_p , les deux enveloppes ne se recouvrent plus et on obtient une paire d'impulsions séparées d'un délai égal à $2\Delta\tau$ (cf. figure IV.12 b)). On peut donc ajuster précisément le délai temporel entre les impulsions en changeant la pente $\Delta\tau$ de la modulation de phase. Quant aux phases temporelles $\varphi_1(t)$ et $\varphi_2(t)$, elles sont respectivement données par (en négligeant la phase associée à la porteuse ω_0) :

$$\varphi_{\frac{1}{2}}(t) = \arctan\left[\mp \operatorname{erfi}\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)}{2}\right)\right] . \quad (\text{IV.10})$$

La figure IV.12 c) représente la variation de phase temporelle associée à deux impulsions lasers verrouillées en phase séparées d'un délai $2\Delta\tau = 400$ fs. Nous constatons que la phase croit de $-\pi/2$ à $\pi/2$ autour de $t = -\Delta\tau$ alors que de façon symétrique elle décroît de $\pi/2$ à $-\pi/2$ autour de $t = \Delta\tau$. Cette variation de phase traduit une variation de la pulsation instantanée. Plus

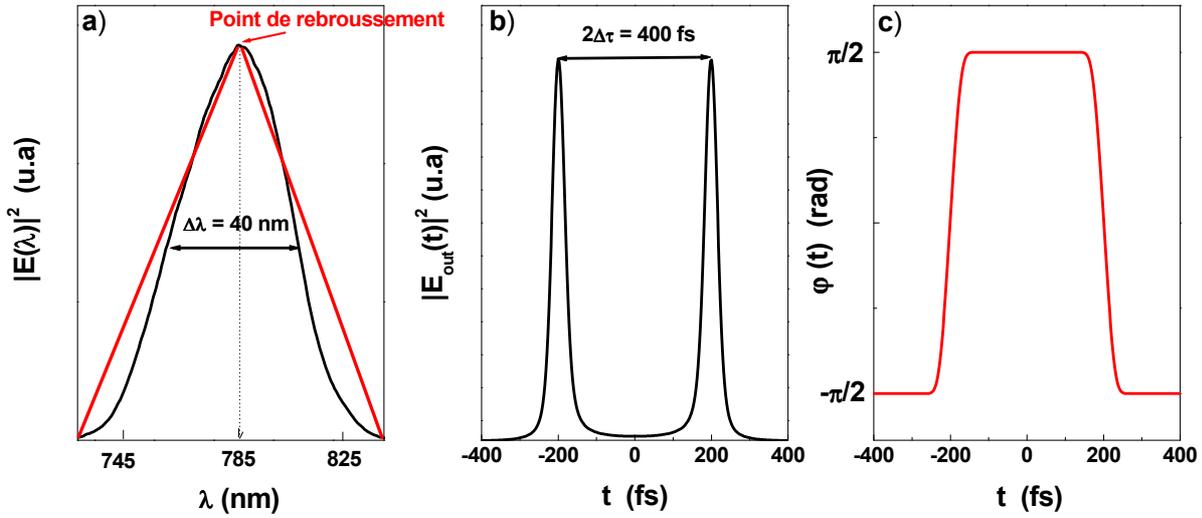


FIGURE IV.12 – a) Phase spectrale triangulaire appliquée à l'impulsion laser (en rouge). Le point de rebroussement est situé au centre du spectre de l'impulsion laser (en noir) ce qui équivaut à $\omega_r = \omega_0$. b) Paire d'impulsions lasers verrouillées en phase résultant d'une modulation de phase triangulaire ayant pour paramètres $\Delta\tau = 200$ fs et $\omega_r = \omega_0$. c) Phase temporelle associée à la paire d'impulsions du cas b).

précisément, le décalage instantané à la pulsation centrale ω_0 pour les deux impulsions s'écrit de la manière suivante [30] :

$$\delta\omega_{\frac{1}{2}}(t) = \pm \frac{\frac{\Delta\omega}{\sqrt{\pi}} \exp\left[\left(\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)}{2}\right)^2\right]}{1 + \operatorname{erfi}\left[\frac{\Delta\omega(t \pm \Delta\tau)}{2}\right]^2}. \quad (\text{IV.11})$$

Il est également possible de contrôler le rapport d'intensité entre les deux impulsions. Pour cela, il faut translater la pulsation de rebroussement ω_r par rapport à la pulsation centrale ω_0 . Posons $\omega_r = \omega_0 + \delta\omega$. Dans ce cas, l'expression du champ électrique complexe E_{out} est la suivante :

$$E_{out}(t) = \frac{E_0}{2} \exp(-i\omega_0 t) \left\{ \begin{array}{l} \exp\left[-\left(\frac{\Delta\omega(t+\Delta\tau)}{2}\right)^2\right] \left[1 - \operatorname{erf}\left(i\frac{\Delta\omega(t+\Delta\tau)}{2} + \frac{\delta\omega}{\Delta\omega}\right)\right] \\ + \exp\left[-\left(\frac{\Delta\omega(t-\Delta\tau)}{2}\right)^2\right] \left[1 + \operatorname{erf}\left(i\frac{\Delta\omega(t-\Delta\tau)}{2} + \frac{\delta\omega}{\Delta\omega}\right)\right] \end{array} \right\}, \quad (\text{IV.12})$$

où $\operatorname{erf}(x)$ est la fonction erreur définie de la manière suivante :

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-y^2) dy. \quad (\text{IV.13})$$

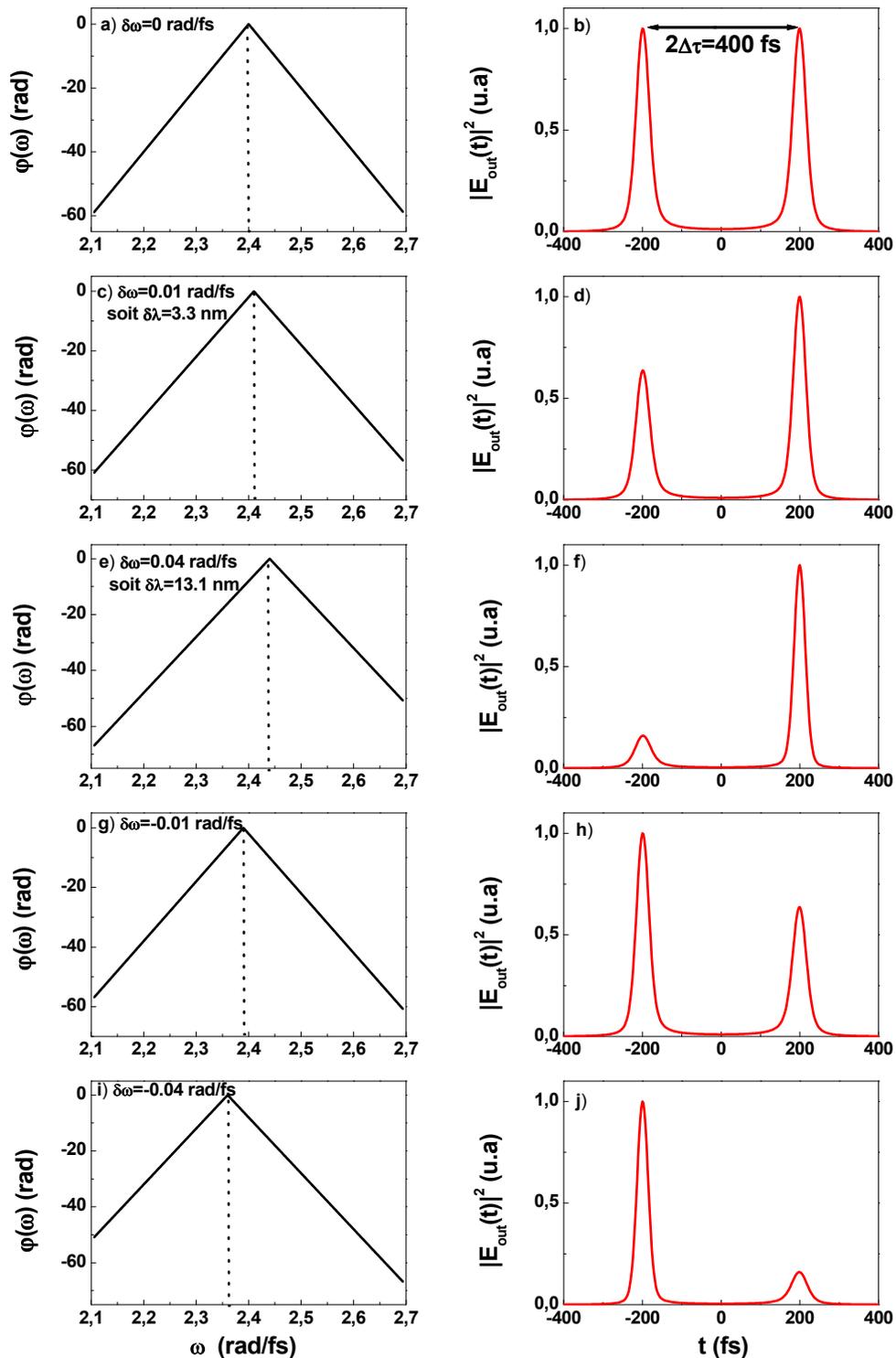


FIGURE IV.13 – Contrôle du rapport d'intensité entre les deux impulsions. La pente de la phase spectrale est fixée à $\Delta\tau = 200$ fs et on déplace la pulsation de rebroussement ω_r . a) Phase spectrale correspondant à $\delta\omega = 0$ rad/fs. b) Paire d'impulsions associées au cas a). c) Phase spectrale correspondant à $\delta\omega = 0.01$ rad/fs (soit un écart à la longueur d'onde centrale de $\delta\lambda = 3.3$ nm). d) Paire d'impulsions associées au cas c). e) $\delta\omega = 0.04$ rad/fs (soit $\delta\lambda = 13.1$ nm). f) Paire d'impulsions associées au cas e). g) $\delta\omega = -0.01$ rad/fs. h) Paire d'impulsions associées au cas g). i) $\delta\omega = -0.04$ rad/fs. j) Paire d'impulsions associées au cas i).

Nous pouvons observer sur la figure IV.13 la génération de paires d'impulsions verrouillées en phase d'intensités ajustables. La pente de la phase spectrale est fixée : $\Delta\tau = 200$ fs ce qui signifie que le délai entre les impulsions reste constant ($2\Delta\tau = 400$ fs) et on fait varier la pulsation de rebroussement ω_r . Lorsque le décalage de ω_r s'effectue vers les hautes fréquences ($\delta\omega > 0$), l'impulsion située en $t = \Delta\tau$ est plus intense que celle située en $t = -\Delta\tau$. De manière symétrique, l'impulsion située en $t = -\Delta\tau$ devient la plus intense lorsque $\delta\omega < 0$. Plus $|\delta\omega|$ devient grand et plus la différence d'intensité entre les deux impulsions est importante. Il a notamment été montré la possibilité de générer deux impulsions verrouillées en phase avec un rapport d'intensité égal à 100 [29].

Notre façonneur d'impulsions permet donc la génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase. Ce dispositif présente l'avantage de pouvoir contrôler simplement le délai et le rapport d'amplitude entre les impulsions tout en conservant la relation de phase. Cependant, comme nous le verrons à la section IV.2.3, les limitations du façonneur peuvent entraîner des distorsions par rapport à la mise en forme attendue. L'objectif est maintenant de convertir cette paire d'impulsions dans le domaine THz par redressement optique dans le cristal de ZnTe.

IV.2.2 Approche théorique du redressement optique de paires d'impulsions laser

Cette partie est consacrée à l'étude du processus de redressement optique de paires d'impulsions laser verrouillées en phase.

Une première analyse peut être effectuée en se plaçant dans le domaine temporel. Chacune des deux impulsions laser génère son propre signal THz analogue à celui engendré par une impulsion limitée par transformée de Fourier (cf. figure IV.14). Les deux impulsions laser ayant une relation de phase bien déterminée, la paire d'impulsions THz obtenue est verrouillée en phase. Il est possible de contrôler le délai entre les impulsions THz en changeant la pente $\Delta\tau$ de la phase spectrale (cf. figures IV.14 b) et d)), le rapport d'intensité entre les impulsions pouvant également être ajusté à l'aide du paramètre $\delta\omega$ (cf. figures IV.14 f) et g)).

Nous pouvons également analyser le processus de redressement optique de paires d'impulsions laser en nous plaçant dans le domaine spectral. Nous avons établi l'expression du champ électrique $E_{THz}(\Omega, z)$ généré par redressement optique dans un cristal de ZnTe à la section I.1.3.3. Dans cette expression, le terme $C(\Omega)$ qui représente la densité spectrale d'énergie de l'impulsion laser génératrice est particulièrement sensible à la phase spectrale de cette dernière. Considérons tout d'abord le cas général d'une impulsion ayant une phase spectrale plate (limitée par transformée de Fourier). Nous avons démontré que dans ce cas (cf. partie IV.1.1), $C(\Omega)$ est à son maximum quelle que soit la pulsation Ω (cf. figure IV.15 a)) et que la largeur du spectre THz est principalement gouvernée par la condition d'accord de phase (cf. figure IV.15 c)). Considérons maintenant une impulsion femtoseconde ayant une phase spectrale triangulaire de la forme $\varphi(\omega) = -\Delta\tau|\omega - \omega_r|$. Dans ce cas, $C(\Omega)$ présente des modulations dont la périodicité est égale à $1/(2\Delta\tau)$ (cf. figure IV.15 d)). La condition d'accord de phase étant inchangée, le support du spectre THz reste identique à celui obtenu avec une impulsion limitée par transformée de Fourier, mais ce dernier présente maintenant des modulations dont la périodicité, égale à $1/(2\Delta\tau)$, est directement liée à la pente de la phase spectrale (cf. figure IV.15 e)). Il est donc possible de contrôler la périodicité de ces modulations en changeant la valeur du paramètre $\Delta\tau$. Ces modu-

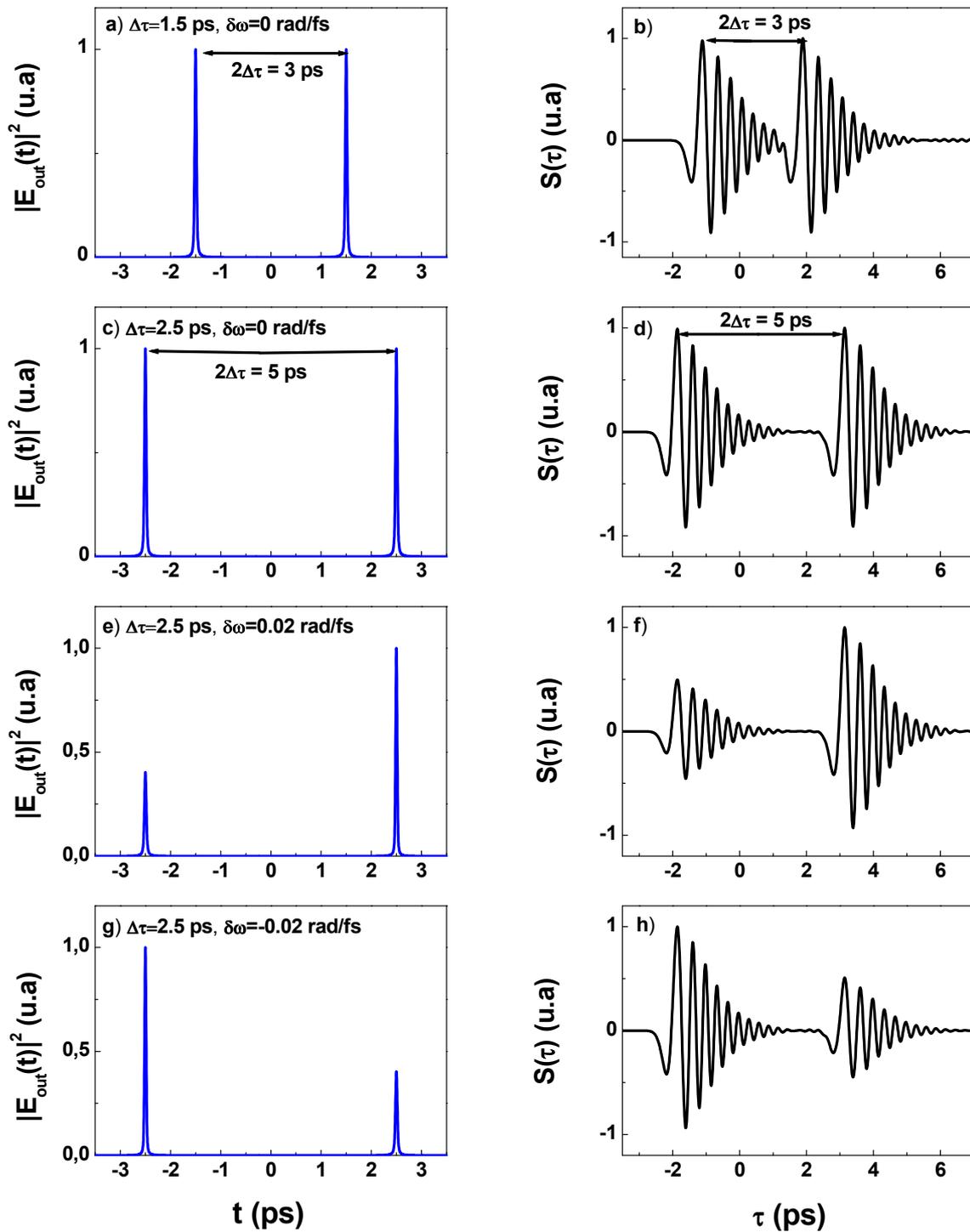


FIGURE IV.14 – Génération de deux impulsions THz verrouillées en phase par redressement optique de paires d'impulsions laser dans un cristal de 300 μm d'épaisseur. Il est possible de contrôler le délai entre les impulsions en changeant la pente $\Delta\tau$ de la phase spectrale. Le rapport d'intensité entre les impulsions est ajusté à l'aide du paramètre $\delta\omega$. Colonne de gauche : paires d'impulsions laser obtenues à l'aide d'une modulation de phase triangulaire ayant pour paramètres : a) $\Delta\tau = 1.5$ ps et $\delta\omega = 0$. c) $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = 0$. e) $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = 0.02$ rad/fs. g) $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = -0.02$ rad/fs. Colonne de droite : paires d'impulsions THz associées.

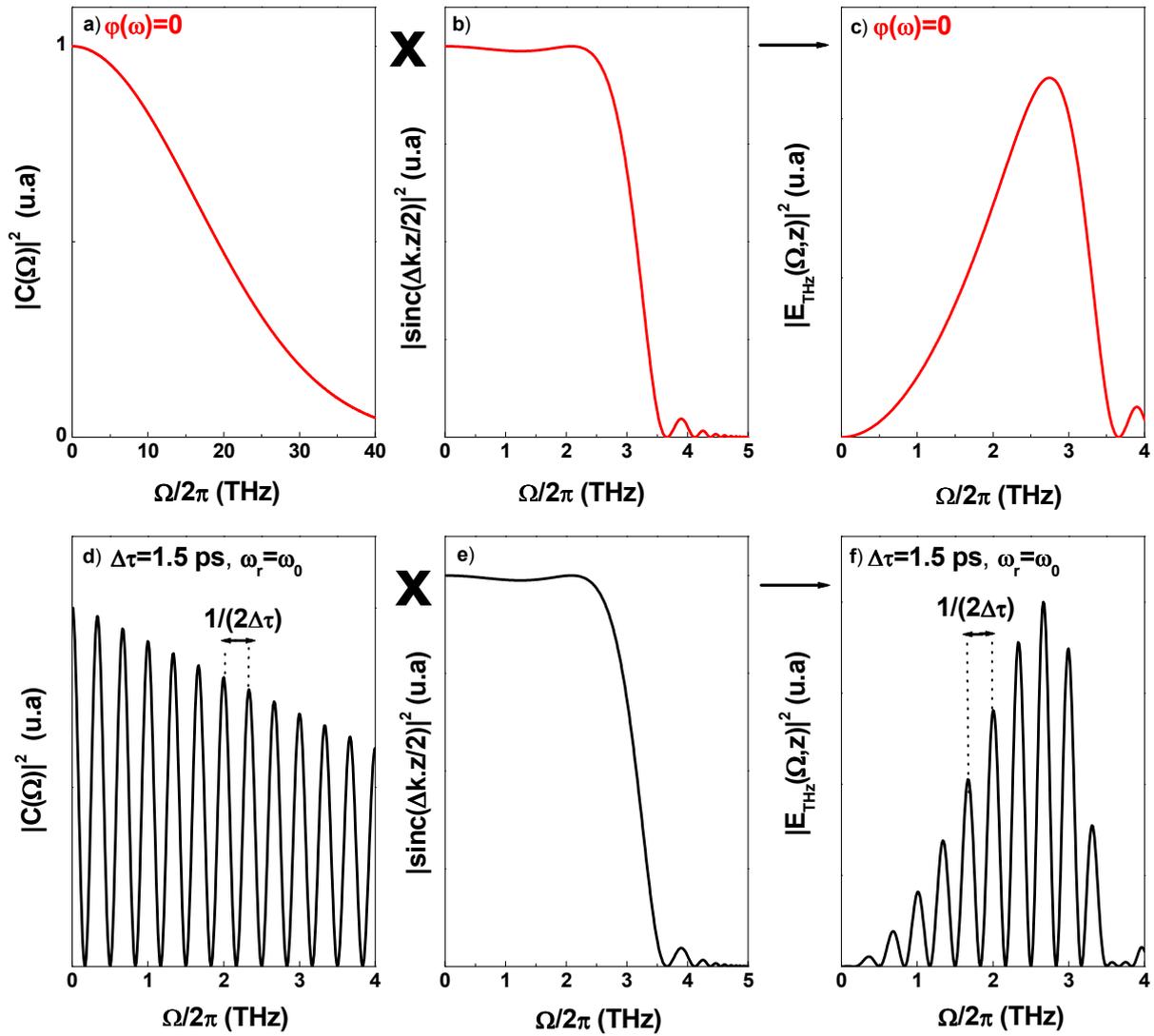


FIGURE IV.15 – a) Densité spectrale d'énergie d'une impulsion femtoseconde TL. b) Evolution de $|\text{sinc}(\Delta k \frac{z}{2})|^2$ en fonction de Ω pour un cristal générateur de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur. c) Spectre THz généré dans un cristal de ZnTe d'épaisseur $z = 300 \mu\text{m}$ par redressement optique d'une impulsion TL. d) Densité spectrale d'énergie associée à une impulsion laser ayant une phase spectrale triangulaire avec $\Delta\tau = 1.5 \text{ ps}$. Nous observons la présence de modulations de périodicité $1/(2\Delta\tau)$. e) La condition d'accord de phase est identique au cas b). e) Spectre THz associé à d) et e). Ce dernier présente des modulations dont la périodicité est égale à $1/(2\Delta\tau) = 0.33 \text{ THz}$.

lations dans le spectre peuvent également être interprétées comme le résultat des interférences entre les deux impulsions THz verrouillées en phase.

La figure IV.16 (colonne de droite) représente le spectre associé à une paire d'impulsions THz pour différentes valeurs du délai et du rapport d'amplitude entre les impulsions. Nous pouvons contrôler avec précision l'interfrange en changeant le délai entre les impulsions THz ce qui permet d'envisager la réalisation d'expérience de contrôle cohérent temporel dans ce domaine de

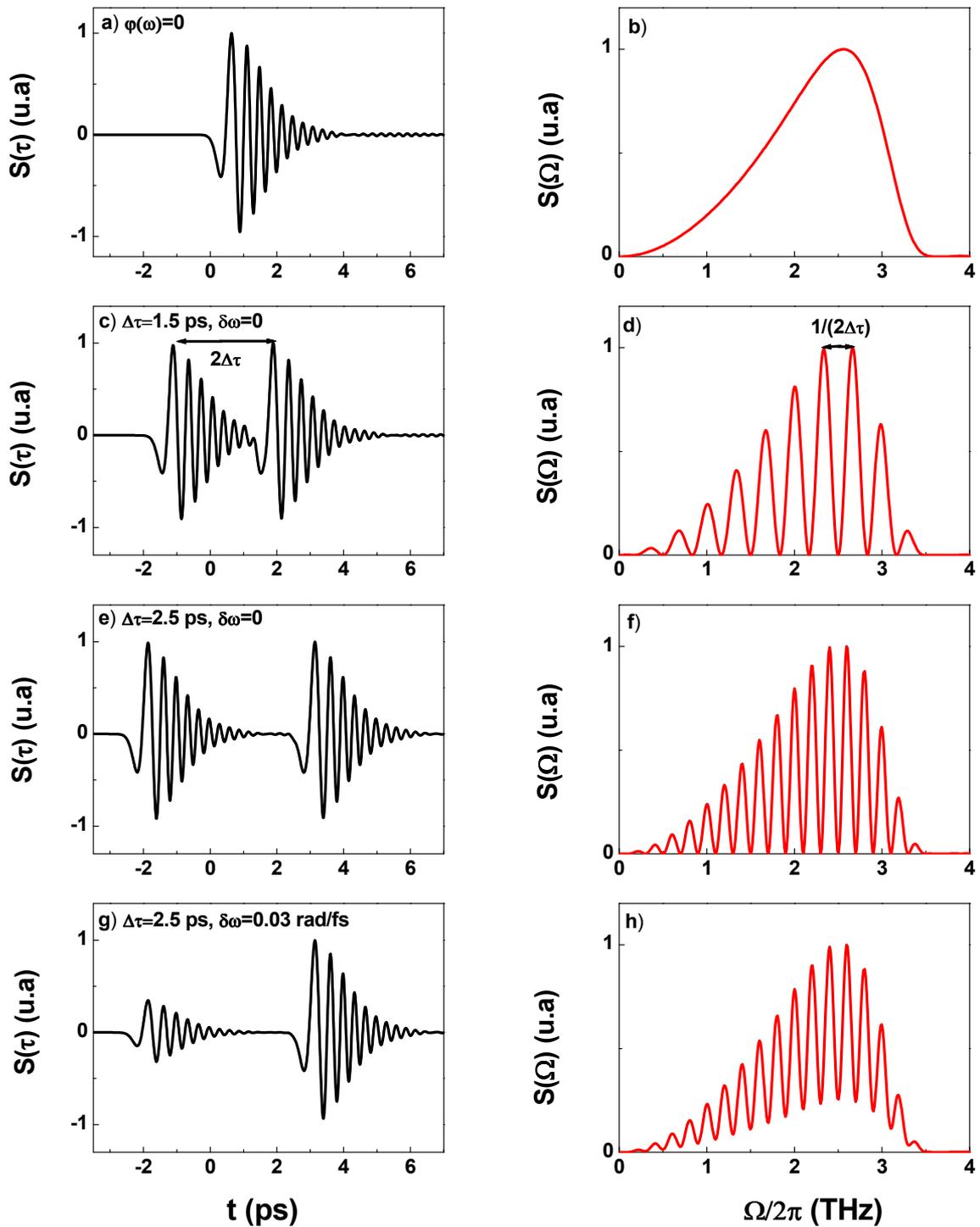


FIGURE IV.16 – Colonne de gauche : champs électrique THz obtenu par redressement optique dans un cristal de ZnTe de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur a) d'une impulsion femtoseconde TL, c) d'une paire d'impulsions résultant d'une modulation de phase triangulaire ayant pour paramètres $\Delta\tau = 1.5 \text{ ps}$ et $\delta\omega = 0$, e) $\Delta\tau = 2.5 \text{ ps}$ et $\delta\omega = 0$, g) $\Delta\tau = 2.5 \text{ ps}$ et $\delta\omega = 0.03 \text{ rad/fs}$. Colonne de droite : spectres THz associés. Le spectre présente des modulations résultant des interférences entre les deux impulsions THz. L'interfrange est égal à $1/(2\Delta\tau)$. Le contraste des franges est maximal lorsque les deux impulsions THz ont la même intensité.

fréquence. En effet, si l'on souhaite par exemple exalter (respectivement annihiler) un mode de vibration ou de rotation basse fréquence, il faut disposer d'un spectre THz excitateur présentant une frange "brillante" (respectivement "sombre") à la fréquence du mode. Nous constatons également que le contraste des franges est maximal lorsque les deux impulsions THz ont la même intensité et qu'il diminue lorsqu'on augmente la valeur du paramètre $\delta\omega$.

Mathématiquement, le champ électrique $E_{THz}^{tot}(t)$ associé à deux impulsions THz verrouillées en phase et décalées d'un délai $t_p = 2\Delta\tau$ s'exprime de la manière suivante :

$$E_{THz}^{tot}(t, z) = \alpha E_{THz}(t, z) + \beta E_{THz}(t - t_p, z), \quad (IV.14)$$

où α et β représentent le poids respectif de chaque impulsion, ces deux paramètres dépendent de la valeur de $\delta\omega$. Considérons le cas où $\delta\omega = 0$, ce qui correspond à deux impulsions de même intensité ($\alpha = \beta = 1/2$). Le champ électrique THz associé à cette paire d'impulsions est donné, dans le domaine spectral, par l'expression suivante :

$$E_{THz}^{tot}(\Omega, z) = \frac{1}{2} E_{THz}(\Omega, z) [1 + e^{i\Omega t_p}], \quad (IV.15)$$

où $E_{THz}(\Omega, z)$ est le champ électrique THz obtenu par redressement optique d'une impulsion limitée par transformée de Fourier. Le spectre THz est alors donné par la relation suivante :

$$|E_{THz}^{tot}(\Omega, z)|^2 = \frac{|E_{THz}(\Omega, z)|^2}{2} [1 + \cos(\Omega t_p)]. \quad (IV.16)$$

Nous obtenons bien l'expression d'un spectre modulé dont l'interfrange est égal à $1/t_p = 1/(2\Delta\tau)$. Nous allons présenter dans la partie suivante les résultats expérimentaux obtenus et nous les comparerons à ceux provenant de notre programme de simulation.

IV.2.3 Résultats

Le dispositif expérimental est identique à celui présenté sur la figure IV.3. Nous utilisons cependant des cristaux de ZnTe plus épais ($z = 1$ mm et $L = 500 \mu\text{m}$) afin d'augmenter le délai entre le signal principal et les répliques provenant de ces deux cristaux et ainsi pouvoir appliquer des délais suffisamment importants entre les impulsions THz sans être "gêné" par ces répliques. L'intensité de l'impulsion laser incidente sur le cristal générateur est choisie relativement faible, de l'ordre de $I_p = 2 \text{ GW/cm}^2$, pour limiter les effets de rétrécissement spectral liés à l'absorption à deux photons (cf. chapitre II).

Les résultats obtenus avec une impulsion limitée par transformée de Fourier sont présentés sur la figure IV.17 (ligne du haut). Le creux dans le spectre au voisinage de 1.6 THz est dû à la présence d'un phonon TA à cette fréquence dans les cristaux générateur et détecteur (cf. figure IV.17 c)).

Nous programmons ensuite, à l'aide de notre façonneur d'impulsions, une modulation de phase triangulaire ayant pour paramètres : $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = 0$. Le signal de cross-corrélation de l'impulsion laser mise en forme est représenté sur la figure IV.17 d). Nous obtenons, en accord avec les prévisions théoriques, deux impulsions laser de même intensité et séparées d'un délai $2\Delta\tau = 5$ ps. Cependant, en plus de cette paire d'impulsions, nous observons une impulsion

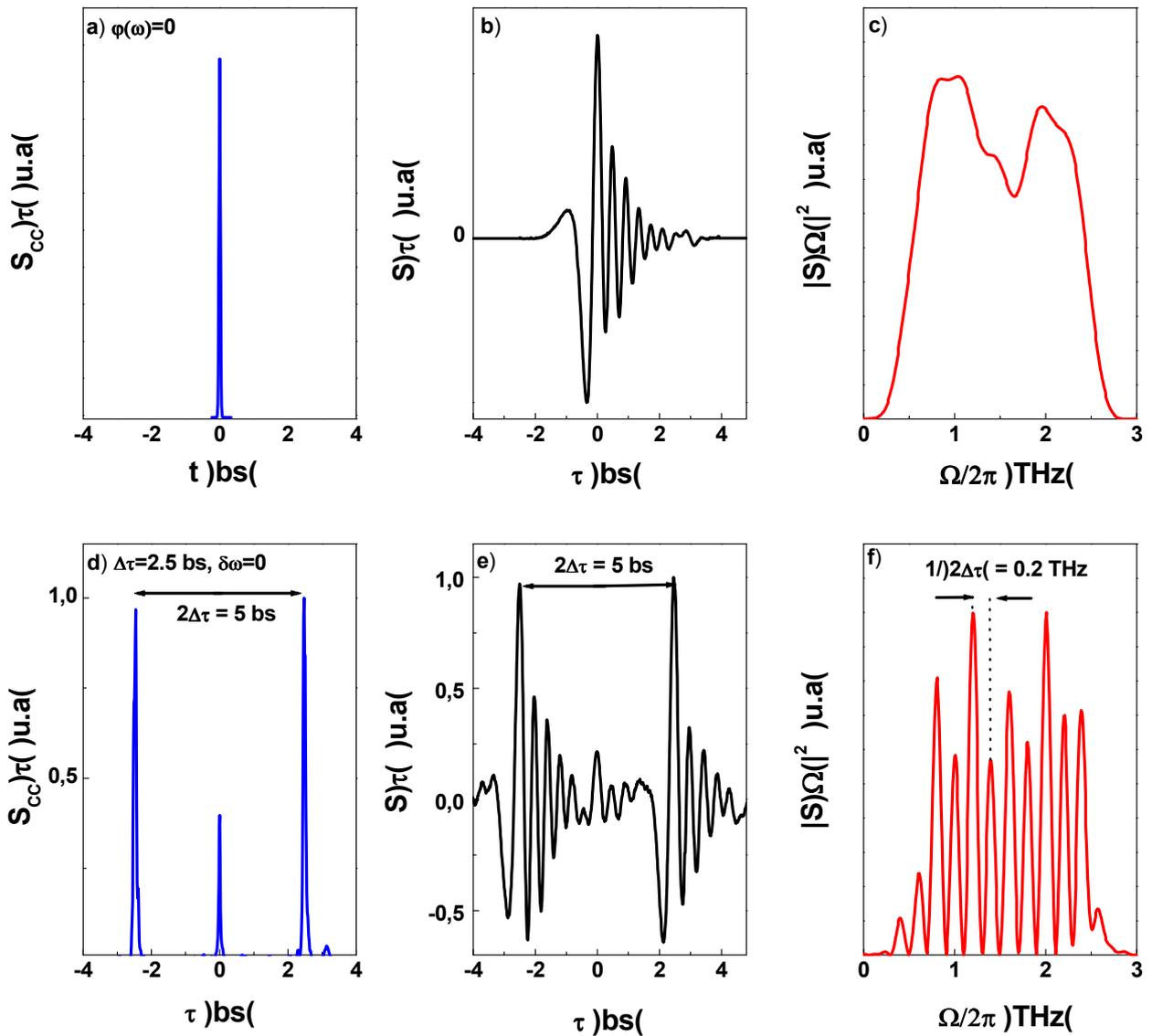


FIGURE IV.17 – Résultats expérimentaux obtenus avec une impulsion limitée par transformée de Fourier (ligne du haut) et une impulsion ayant une phase spectrale triangulaire avec $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = 0$ (ligne du bas). a) Signal de cross-corrélation de l'impulsion TL. b) Champ électrique THz généré et détecté dans des cristaux de ZnTe d'épaisseur respective $z = 1$ mm et $L = 500 \mu\text{m}$. c) Spectre THz associé à b). d) Signal de cross-corrélation de l'impulsion mise en forme. e) Champ électrique THz. f) Spectre THz associé à e).

située en $\tau = 0$, non prévue par la théorie, dont l'amplitude est relativement importante (40% de l'amplitude des impulsions principales). Les principales limitations de notre dispositif de mise en forme, décrites au chapitre III (partie III.5), ne permettent pas d'expliquer le poids de cette réplique. Cependant, cet effet peut s'interpréter si nous prenons en compte l'importante variation de phase appliquée au niveau du modulateur à cristaux liquides. En effet, nous programmons une phase spectrale triangulaire de pente $\Delta\tau = 2.5$ ps ce qui correspond à une variation de phase de

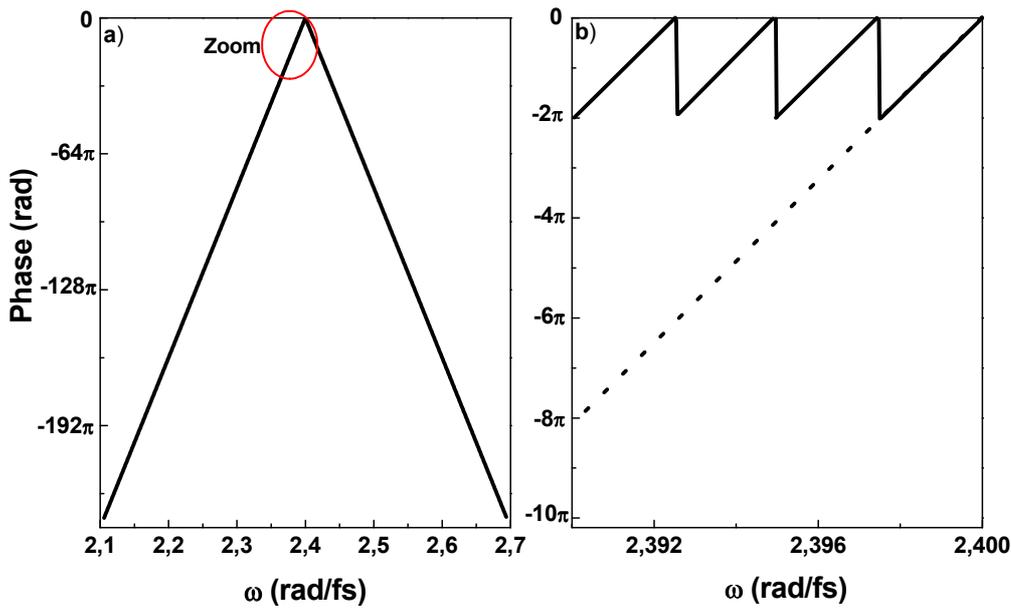


FIGURE IV.18 – a) Phase spectrale triangulaire programmée par l'expérimentateur : $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\delta\omega = 0$. b) Phase spectrale réellement appliquée au niveau du masque à cristaux liquides : zoom sur l'intervalle spectral 2.39 – 2.4 rad/fs.

– 223π rad à 0 sur la première moitié du spectre et, de manière symétrique, de 0 à -223π rad sur l'autre moitié (cf. figure IV.18 a)). Le modulateur à cristaux liquides ne pouvant pas appliquer physiquement des phases supérieures à 2π , la phase spectrale est appliquée modulo 2π introduisant ainsi un très grand nombre de repliements de phase (cf. figure IV.18 b)). Il a été montré récemment, en considérant le cas simple d'une mise en forme consistant en l'application d'une phase spectrale linéaire, que la convolution de ces repliements de phase périodiques avec la structure spatiale du masque (pixels + interstices) introduisait des distorsions de l'impulsion mise en forme et notamment la présence d'une réplique relativement intense située en $\tau = 0$ [31]. Nous pouvons donc considérer raisonnablement que cet effet est responsable de la présence de la réplique (en $\tau = 0$) lorsqu'on programme une phase triangulaire. L'utilisation d'une autre technique de mise en forme d'impulsions laser reposant sur la diffraction des différentes composantes spectrales à l'aide d'un masque à cristaux liquides 2D permet de remédier à ce type de problème [32].

La figure IV.17 e) représente le signal électro-optique obtenu par redressement optique de la paire d'impulsions laser de la figure IV.17 d). Nous obtenons deux impulsions THz, analogues à celle engendrée par une impulsion limitée par transformée de Fourier, de même intensité et séparées de $2\Delta\tau = 5$ ps. Au centre (en $\tau = 0$), nous observons une réplique dont le rapport d'amplitude avec les impulsions principales est de l'ordre de 20%. En accord avec les prévisions théoriques, le spectre THz associé à ce signal électro-optique présente des modulations dont l'interfrange, égal à $1/(2\Delta\tau)$, vaut 0.2 THz. Les deux impulsions THz ayant la même intensité, le contraste des franges est maximal. La présence de la réplique centrale dans le signal électro-optique n'affecte pas l'allure du spectre THz comme on peut le constater sur la figure IV.19. Pour obtenir

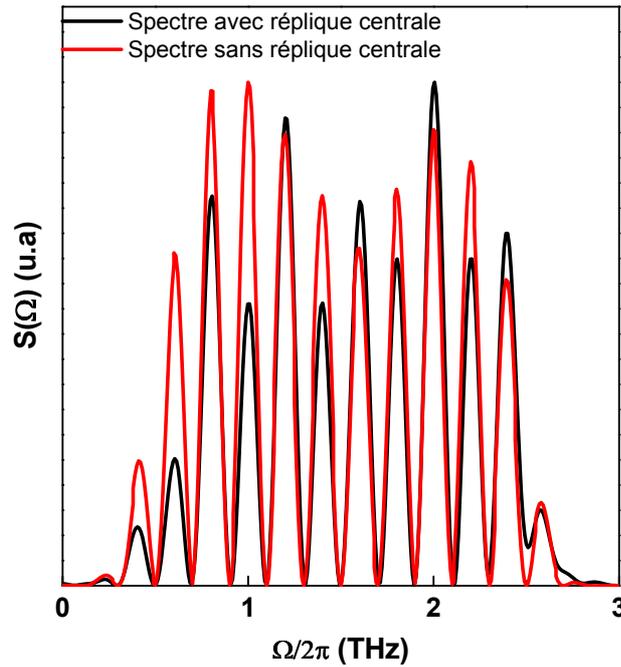


FIGURE IV.19 – Spectre THz associé au signal électro-optique de la figure IV.17 e) lorsque la réplique centrale est prise en compte (en noir). Spectre associé à un signal électro-optique numérique constitué de deux impulsions THz décalées de 5 ps, sans réplique centrale (en rouge).

le spectre du signal électro-optique sans la réplique, nous avons dupliqué le signal de la figure IV.17 b) (obtenu avec une impulsion limitée par transformée de Fourier), nous l'avons décalé numériquement de 5 ps par rapport au signal principal puis nous avons effectué la transformée de Fourier du signal ainsi obtenu.

Si l'on souhaite exalter (respectivement annihiler) un mode de vibration ou de rotation basse fréquence, situé par exemple autour de la fréquence $\Omega_0/2\pi = 2$ THz, il faut que le spectre associé au champ électrique THz excitateur présente une frange "brillante" (respectivement "sombre") à cette fréquence. Nous avons vu précédemment qu'une phase spectrale triangulaire ayant pour paramètres $\Delta\tau = 2.5$ ps (ce qui correspond à un délai de $\tau_p = 5$ ps entre les impulsions) et $\delta\omega = 0$ permettait de générer un spectre THz modulé avec une frange brillante à 2 THz (cf. figure IV.17). Pour déterminer la valeur de $\Delta\tau$ permettant d'obtenir un spectre avec une frange sombre à cette même fréquence, il faut revenir à l'expression analytique du spectre associé à deux impulsions THz déterminée à la partie IV.2.2 (cf. expression IV.16). Pour obtenir une frange sombre à la fréquence $\Omega_0/2\pi = 2$ THz, il faut que le nouveau délai t'_p soit tel que :

$$t'_p = t_p \pm \frac{\pi}{\Omega_0}, \quad (IV.17)$$

ce qui correspond à un paramètre $\Delta\tau'$ donné par :

$$\Delta\tau' = \Delta\tau \pm \frac{\pi}{2\Omega_0}. \quad (IV.18)$$

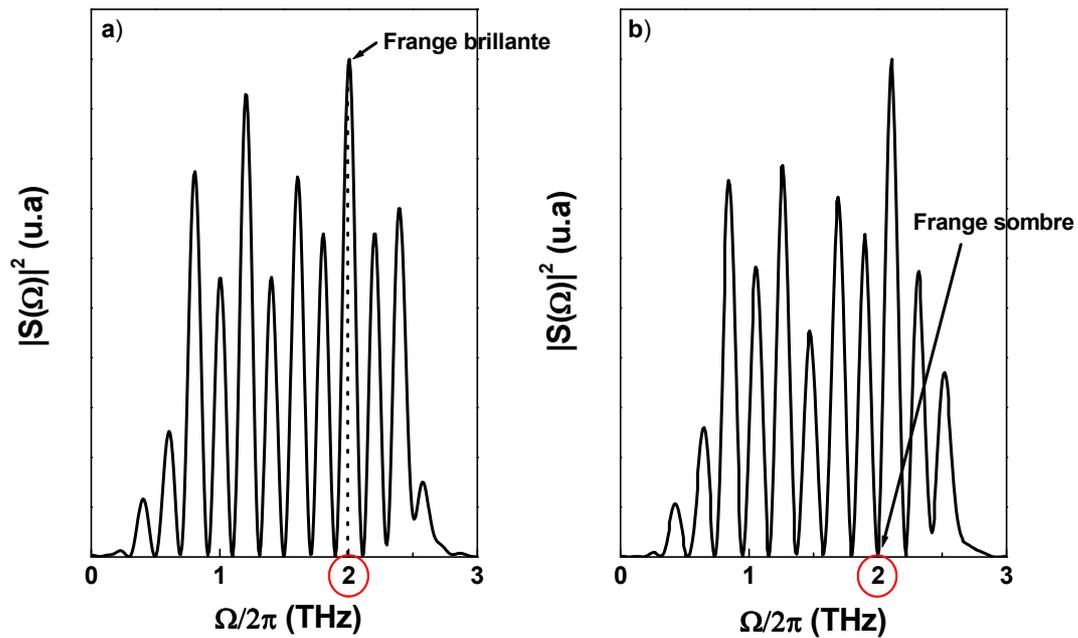


FIGURE IV.20 – Spectres expérimentaux présentant : a) une frange brillante à la fréquence $\Omega_0/2\pi = 2$ THz ($\Delta\tau = 2.5$ ps), b) une frange sombre à cette même fréquence ($\Delta\tau = 2.375$ ps).

Nous pouvons observer sur la figure IV.20 que le spectre THz présente bien une frange brillante à la fréquence $\Omega_0/2\pi = 2$ THz pour $\Delta\tau = 2.5$ ps et une frange sombre à cette même fréquence pour $\Delta\tau = 2.375$ ps. Les spectres sont donc en opposition de phase à cette fréquence mais lorsqu'on s'éloigne de cette valeur, nous observons progressivement un déphasage des franges d'interférences dû à la différence de valeur des interfranges. Cependant, les impulsions THz ainsi obtenues présentent une grande largeur spectrale (identique à celle obtenue avec une impulsion limitée par transformée de Fourier) ce qui peut limiter la réalisation de certaines expériences en entraînant une excitation non discriminée de plusieurs modes. L'étape suivante consiste donc à combiner rétrécissement spectral et modulations dans le spectre.

IV.3 Combinaisons de modulations de phase sinusoïdale et triangulaire

Nous avons étudié dans la partie IV.1 l'effet d'une modulation de phase sinusoïdale de l'impulsion laser sur la génération d'impulsions THz. Dans le domaine temporel, une telle modulation de phase correspond à la génération d'un train d'impulsions laser qui donne, par redressement optique, un train d'impulsion THz. Parallèlement, nous avons établi à la section IV.2 qu'une modulation de phase triangulaire permettait d'obtenir deux impulsions THz verrouillées en phase. Dans cette partie, nous allons combiner ces deux modulations de phase afin d'augmenter les possibilités de mises en forme. Nous programmerons donc des phases spectrales de la forme suivante :

$$\varphi(\omega) = a \sin(\omega/F_{rep}) - \Delta\tau |\omega - \omega_r| . \quad (IV.19)$$

Dans un premier temps, nous verrons qu'il est ainsi possible de générer des paires de trains d'impulsions THz verrouillés en phase en appliquant un délai $2\Delta\tau$ supérieur à la durée du train d'impulsions THz obtenu avec une simple modulation de phase sinusoïdale. Dans un second temps, nous montrerons que pour des valeurs particulières de $\Delta\tau$, il est possible de générer des spectres THz plus étroits et mieux contrastés que ceux obtenus dans la partie IV.1.

IV.3.1 Génération de paires de trains d'impulsions THz verrouillés en phase

Cette partie est consacrée à l'étude de la génération de paires de trains d'impulsions THz verrouillés en phase. La figure IV.21 a) représente le signal de cross-corrélation d'une impulsion laser dont la phase spectrale est modulée avec les paramètres suivants : $a = 1.25$, $F_{rep} = 2$ THz et $\Delta\tau = 2.5$ ps. Nous obtenons deux trains d'impulsions laser, dont le taux de répétition est égal à $1/F_{rep} = 500$ fs, de même amplitude et espacés de $2\Delta\tau = 5$ ps. Pour une amplitude de modulation de $a = 1.25$, chaque train est constitué de cinq impulsions. Pour les mêmes raisons physiques que précédemment (cf. partie IV.2.3), nous observons la présence d'une réplique non mise en forme située en $\tau = 0$. Par redressement optique, chacune de ces impulsions donne son propre champ THz, analogue à celui engendré par une impulsion TL. Ces différents champs s'ajoutent ensuite de manière cohérente pour donner deux trains d'impulsions THz de même amplitude, espacés de $2\Delta\tau = 5$ ps et oscillant à la fréquence F_{rep} (cf. figure IV.21 b)). Les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec ceux provenant de notre programme de simulation. Pour une telle modulation de phase, le spectre THz est centré à la fréquence $F_{rep} = 2$ THz, il présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0.5 THz et des modulations dont l'interfrange est égal à $1/(2\Delta\tau) = 0.2$ THz. Nous pouvons également générer le spectre "complémentaire" de ce dernier, c'est-à-dire un spectre présentant la même fréquence centrale et la même largeur mais des franges d'interférences en opposition de phase (cf. figure IV.22). Pour cela, il suffit de changer uniquement la valeur de la pente spectrale $\Delta\tau$. Pour trouver la valeur de $\Delta\tau$ complémentaire ($\Delta\tau = 2.375$ ps), nous utilisons l'expression IV.18. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les prédictions théoriques. Nous observons cependant une légère différence sur l'amplitude des franges adjacentes à la frange centrale qui provient de la présence de la réplique située en $\tau = 0$.

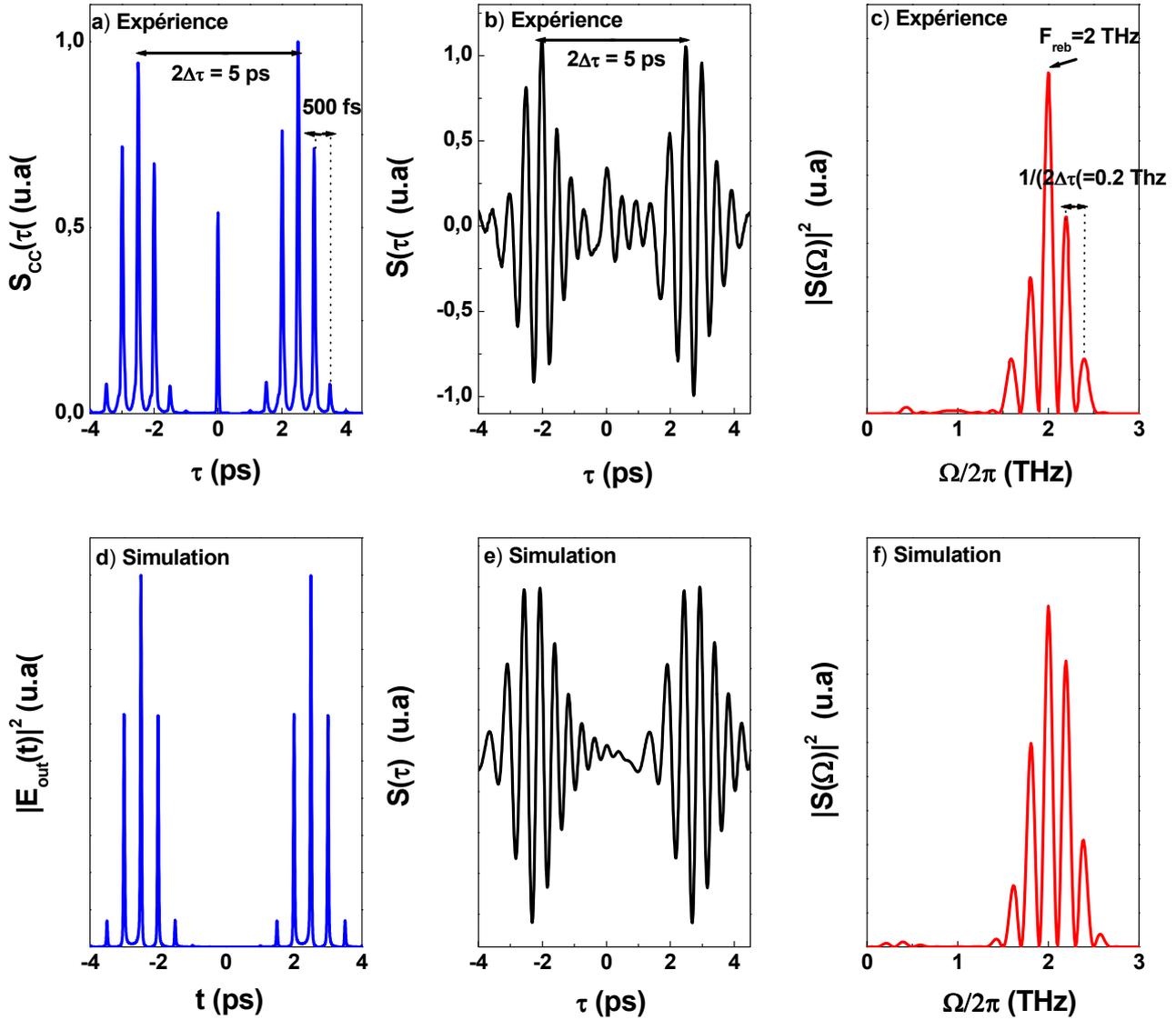


FIGURE IV.21 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase de la forme $\varphi(\omega) = a \sin(\omega/F_{rep}) - \Delta\tau |\omega - \omega_r|$ avec pour paramètres : $a = 1.25$, $F_{rep} = 2$ THz, $\Delta\tau = 2.5$ ps et $\omega_r = \omega_0$. a) Signal de cross-corrélation de l'impulsion mise en forme. b) Signal électro-optique mesuré. c) Spectre THz associé à b). d) Impulsion mise en forme théorique. e) Signal électro-optique attendu. f) Spectre THz associé à e).

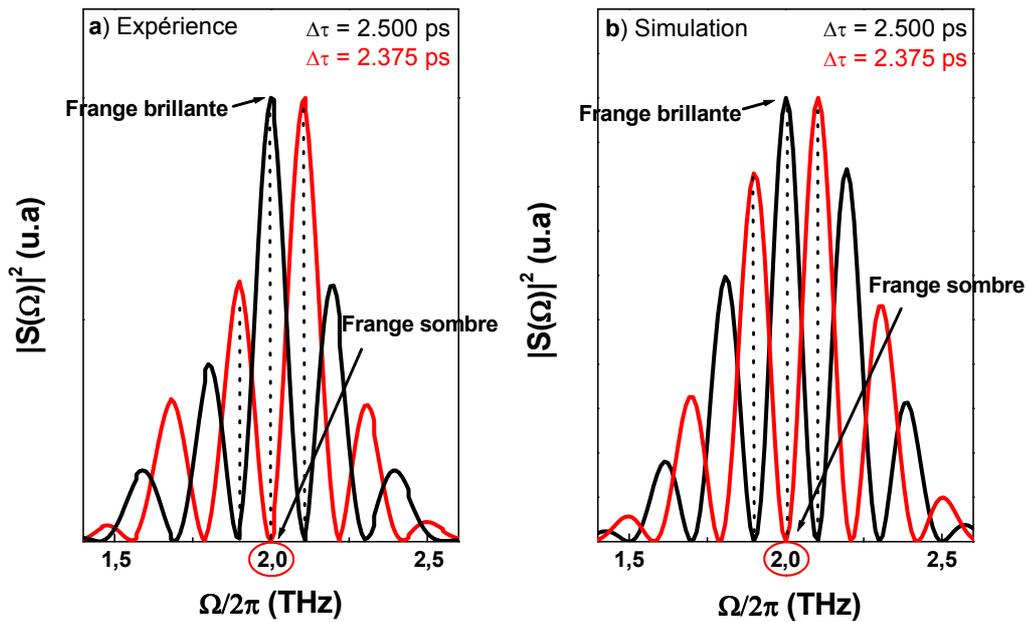


FIGURE IV.22 – a) Spectres THz expérimentaux obtenus pour une modulation de phase de la forme $\varphi(\omega) = a \sin(\omega/F_{rep}) - \Delta\tau |\omega - \omega_r|$ avec pour paramètres : $a = 1.25$, $F_{rep} = 2$ THz, $\omega_r = \omega_0$ et $\Delta\tau = 2.5$ ps (en noir) et 2.375 ps (en rouge). Les franges d'interférences sont en opposition de phase. b) Spectres THz obtenus avec notre programme de simulation pour les mêmes paramètres.

IV.3.2 Rétrécissement spectral

Outre la génération de paires de trains d'impulsions THz verrouillés en phase, la combinaison de modulations de phase sinusoïdale et triangulaire permet d'obtenir des spectres THz plus étroits et mieux contrastés que ceux obtenus avec une simple modulation sinusoïdale. La figure IV.23 présente par exemple les résultats obtenus avec les paramètres suivants : $a = 2.65$, $F_{rep} = 2$ THz, $\Delta\tau = 0.5$ ps et $\omega_r = \omega_0$. Nous constatons que dans cette configuration particulière où $\Delta\tau = 1/F_{rep}$ ($= 0.5$ ps), le champ électrique THz est constitué d'un seul train d'impulsions présentant un grand nombre d'oscillations de même amplitude et de période $1/F_{rep}$. Le spectre THz associé est donc centré à la fréquence F_{rep} , il présente une largeur à mi-hauteur de 0.2 THz et un meilleur contraste que celui obtenu avec une simple modulation sinusoïdale (cf. figure IV.23 b) comparée à la figure IV.11). Une autre configuration pour laquelle $\Delta\tau = 3/F_{rep}$ ($= 1.5$ ps) permet d'obtenir un spectre encore plus étroit, de l'ordre de 0.14 THz à mi-hauteur. La figure IV.24 reprend les différents résultats obtenus avec une simple modulation de phase sinusoïdale (colonne de gauche) et avec des combinaisons de deux types de modulation (colonne de droite).

Nous disposons ainsi de spectres plus étroits et mieux contrastés que ceux obtenus avec une simple modulation sinusoïdale. Nous pouvons également changer la fréquence centrale de ces derniers à l'aide du paramètre F_{rep} . La figure IV.25 présente les résultats expérimentaux et numériques obtenus pour des modulations de phase où le paramètre $a = 2.65$ est fixé et où l'on fait varier le paramètre F_{rep} de $F_{max} = 2.4$ THz à $F_{min} = 1.66$ THz en prenant $\Delta\tau = 1/F_{rep}$.

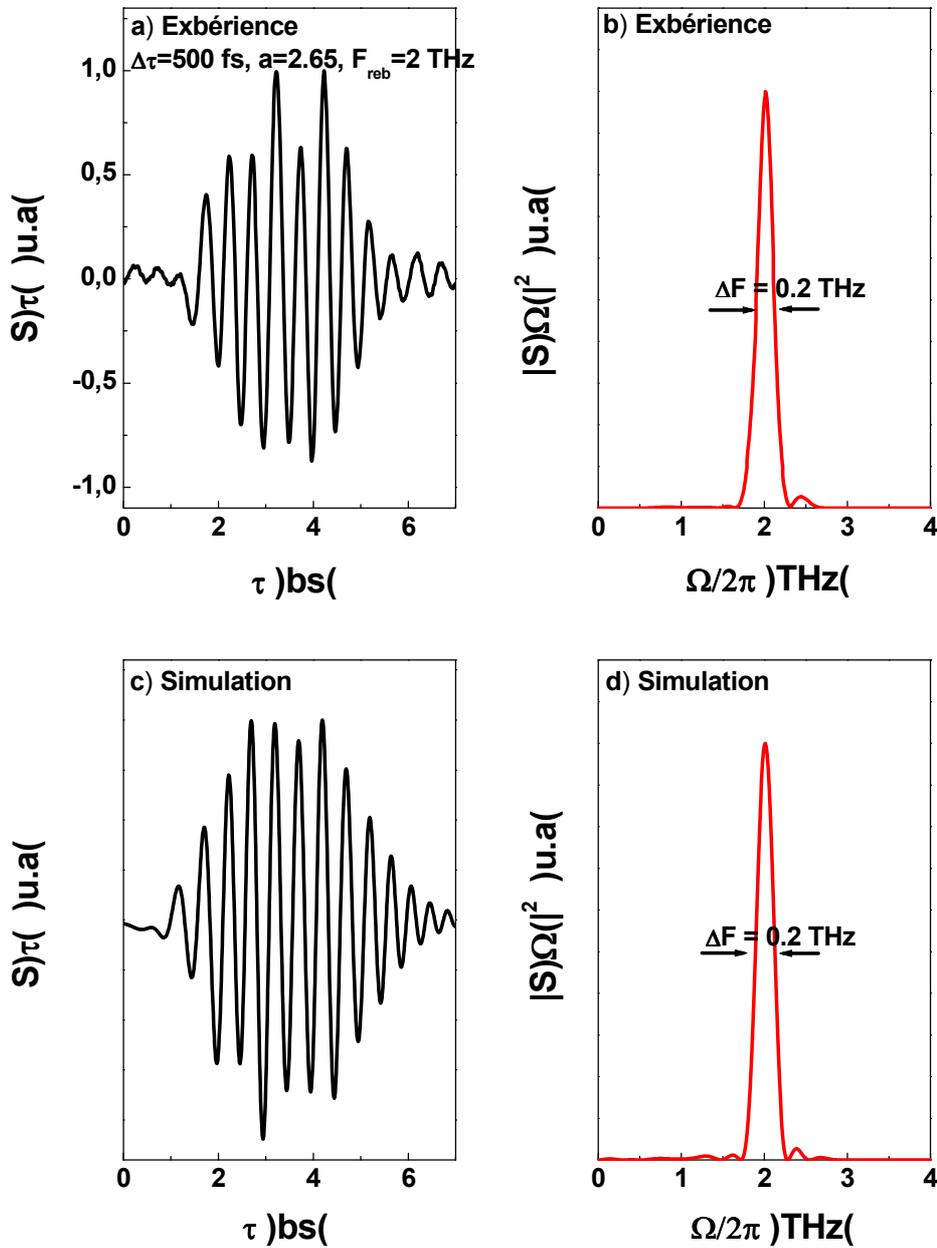


FIGURE IV.23 – Résultats expérimentaux et numériques obtenus pour une modulation de phase de la forme $\varphi(\omega) = a \sin(\omega/F_{rep}) - \Delta\tau |\omega - \omega_r|$ avec pour paramètres : $a = 2.65$, $F_{rep} = 2$ THz, $\Delta\tau = 1/F_{rep} = 0.5$ ps et $\omega_r = \omega_0$. a) Signal électro-optique mesuré. b) Spectre THz associé. c) Signal électro-optique attendu. d) Spectre théorique.

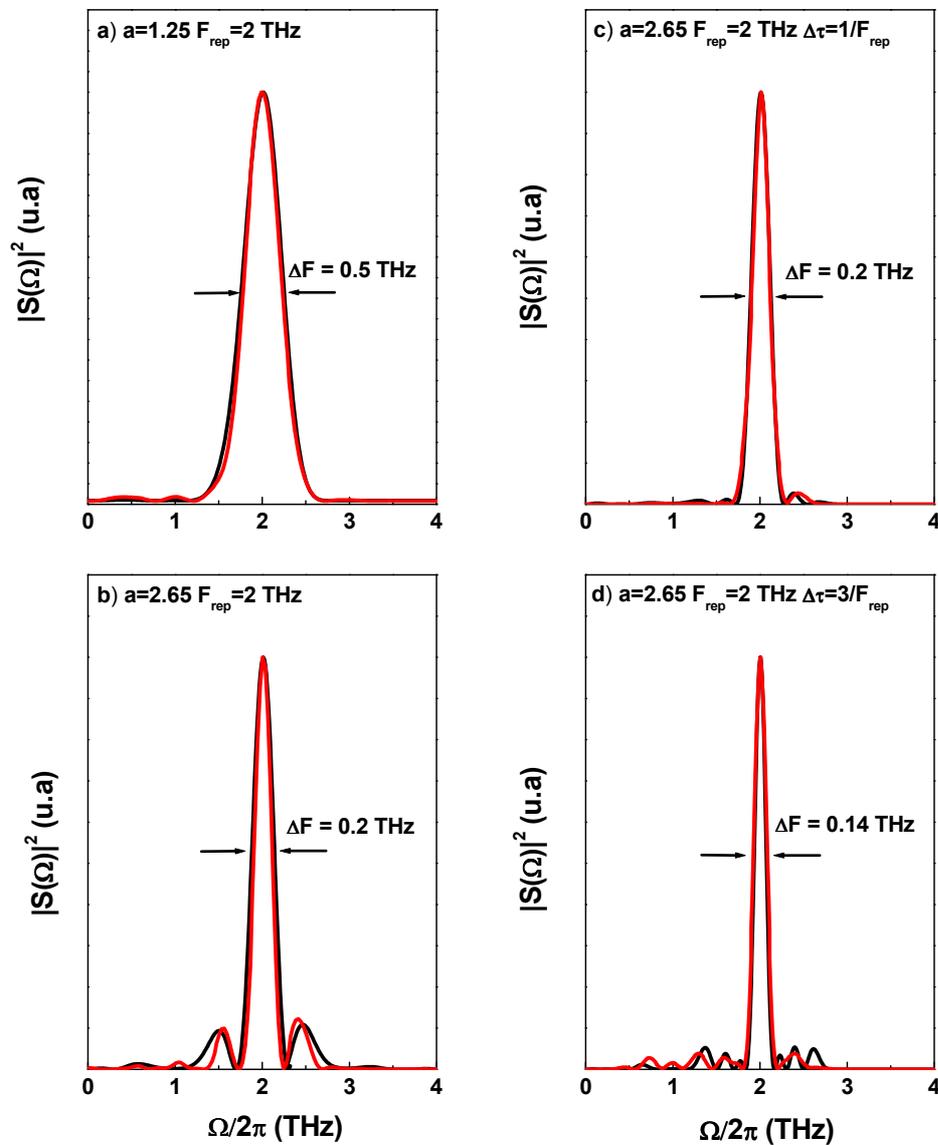


FIGURE IV.24 – Contrôle de la largeur du spectre THz. Colonne de gauche : modulation de phase sinusoïdale uniquement avec pour paramètres a) $a = 1.25$ et $F_{rep} = 2$ THz, b) $a = 2.65$ et $F_{rep} = 2$ THz. Colonne de droite : combinaisons de modulation de phase sinusoïdale et triangulaire ayant pour paramètres c) $a = 2.65$, $F_{rep} = 2$ THz et $\Delta\tau = 1/F_{rep} = 0.5$ ps, d) $a = 2.65$, $F_{rep} = 2$ THz et $\Delta\tau = 3/F_{rep} = 1.5$ ps. Les courbes rouges (resp. noires) correspondent aux spectres expérimentaux (resp. théoriques).

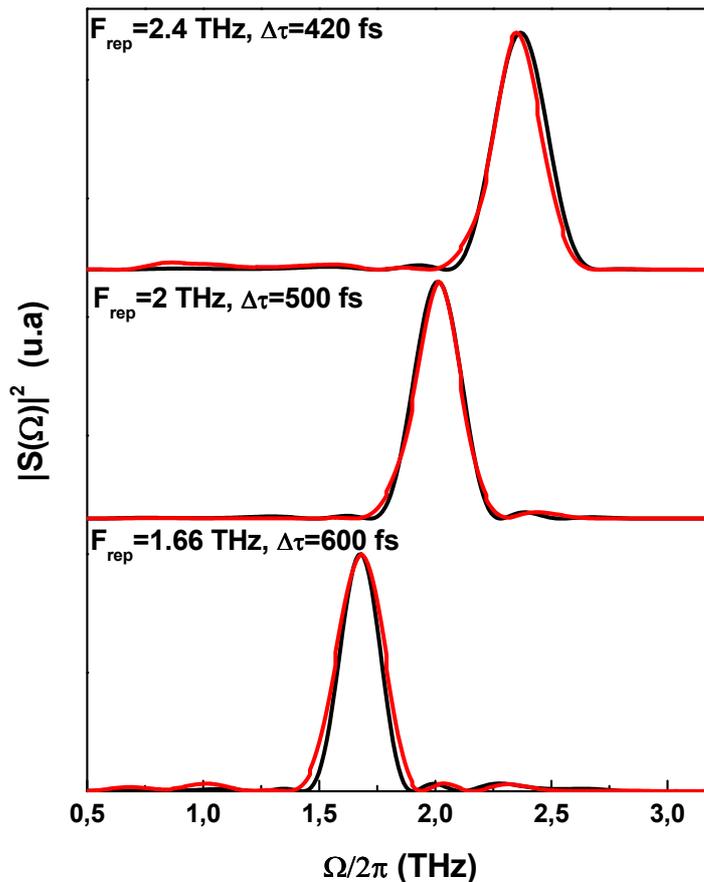


FIGURE IV.25 – Contrôle de la fréquence centrale du spectre THz généré. On fixe le paramètre $a = 2.65$ et on fait varier le paramètre F_{rep} de 2.4 THz à 1.66 THz en prenant $\Delta\tau = 1/F_{rep}$. Les spectres présentent tous une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 0.2 THz. Les courbes rouges (resp. noires) correspondent aux spectres expérimentaux (resp. théoriques).

Nous observons un décalage du spectre de F_{max} à F_{min} en accord avec les prévisions théoriques. Les spectres expérimentaux (en rouge) sont en très bon accord avec ceux provenant de notre programme de simulation (en noir).

IV.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une approche analytique qui permet notamment la génération de spectres THz étroits et accordables de 0.5 à 3 THz et la génération de paires d'impulsions THz verrouillées en phase. Cette technique qui repose sur le redressement optique d'impulsions laser femtosecondes mises en forme s'appuie sur une bonne compréhension des mécanismes gouvernant le processus de génération. Une mise en forme directe de l'impulsion laser génératrice dans le domaine temporel n'étant pas envisageable à une échelle de temps femtoseconde, nous modulons la phase de l'impulsion laser dans le domaine spectral.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressé à des modulations de phase sinusoï-

dales. Dans le domaine temporel, de telles modulations correspondent à la génération de trains d'impulsions laser dont le nombre et le taux de répétition sont ajustables. Par redressement optique, ces mises en forme d'impulsion permettent à la fois le contrôle de la largeur et de la fréquence centrale du spectre THz .

Dans un second temps, nous avons programmé des modulations de phase triangulaires. Dans le domaine temporel, cela correspond à la génération de paires d'impulsions laser verrouillées en phase dont le délai et le rapport d'amplitude sont ajustables. Ces impulsions étant verrouillées en phase, elles vont permettre la génération par redressement optique de paires d'impulsions THz elles-mêmes verrouillées en phase. Le spectre THz associé présente des franges d'interférences dont l'interfrange est inversement proportionnel au délai entre les impulsions.

Enfin, nous avons combiné ces deux modulations de phase afin d'augmenter les possibilités de mises en forme. Nous avons ainsi démontré la possibilité de générer d'une part des paires de trains d'impulsions THz verrouillées en phase et d'autre part des spectres THz plus étroits (jusqu'à 0.14 THz à mi-hauteur) et mieux contrastés que ceux obtenus avec une simple modulation de phase sinusoïdale. Pour valider ces différents résultats, nous avons utilisé le programme de simulation développé au cours de cette thèse qui donne des résultats en très bon accord avec l'expérience et qui offre la possibilité d'étudier la génération d'impulsions ayant des formes et des phases temporelles adaptées aux milieux étudiés. Cette technique présente l'avantage de pouvoir générer très rapidement des formes variées ce qui permet d'envisager la réalisation expérimentale du contrôle optimal dans ce domaine de fréquence.

Bibliographie

- [1] D. Goswami, "Optical pulse shaping approaches to coherent control," *Physics Reports* **374**, 385-481 (2003).
- [2] M. Dantus and V. V. Lozovoy, "Experimental coherent laser control of physicochemical processes," *Chemical Reviews* **104**(4), 1813-59 (2004).
- [3] T. Amand, V. Blanchet, B. Girard and X. Marie, "Coherent control in atoms, molecules and solids," 333-95 *Femtosecond Laser Pulses : Principles and Experiments*, (Second Edition, Springer 2004).
- [4] Y. S. Lee, T. Meade, T. B. Norris and A. Galvanauskas "Tunable narrow-band terahertz generation from periodically poled lithium niobate," *Applied Physics Letters* **78**(23), 3583-85 (2001).
- [5] Y. S. Lee, N. Amer and W. C. Hurlbut "Terahertz pulse shaping via optical rectification in poled lithium niobate," *Applied Physics Letters* **82**(2), 170-72 (2003).
- [6] J. R. Danielson, N. Amer and Y. S. Lee "Generation of arbitrary terahertz wave forms in fanned-out periodically poled lithium niobate," *Applied Physics Letters* **89**(211118), 1-3 (2006).
- [7] A. G. Stepanov, J. Hebling and J. Kuhl "Generation, tuning, and shaping of narrowband, picosecond THz pulses by two-beam excitation," *Optics Express* **12**(19), 4650-58 (2004).
- [8] 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).
- [9] J. Ahn, A. V. Efimov, R. D. Averitt, and A. J. Taylor "Terahertz waveform synthesis via optical rectification of shaped ultrafast laser pulses," *Optics Express* **11**(20), 2486-96 (2003).
- [10] K. K. Kohli, A. Vaupel, S. Chatterjee and W. W. Rühle "Adaptive shaping of THz-pulses generated in $\langle 110 \rangle$ ZnTe crystals," *Journal of the Optical Society of America B* **26**(9), 74-78 (2009).
- [11] D. Li and G. Ma, "Pump-wavelength dependence of terahertz radiation via optical rectification in [110] oriented ZnTe crystal," *Journal of Applied Physics* **103**(123101), 1-4 (2008).
- [12] N. C. J. Van der Valk, P. C. M. Planken, A. N. Buijserd and H. J. Bakker "Influence of pump wavelength and crystal length on the phase matching of optical rectification," *Journal of the Optical Society of America B* **22**(8), 1714-18 (2005).
- [13] Y. Liu, S. G. Park and A. M. Weiner "Terahertz Waveform Synthesis via Optical Pulse Shaping," *IEEE Journal Of Selected Topics In Quantum Electronics* **2**(3), 709-19 (1996).
- [14] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg "Single-pulse coherent anti-Stokes Raman spectroscopy in the fingerprint spectral region," *Journal of Chemical Physics* **118**(20), 9208-15 (2003).
- [15] C. D'Amico, M. Tondusson, J. Degert and E. Freysz, "Tuning and focusing THz pulses by shaping the pump laser beam profile in a nonlinear crystal," *Optics Express* **17**(2), 592-97 (2009).

- [16] T. Feurer, J. C. Vaughan, T. Hornung and K. A. Nelson, "Typesetting of terahertz waveforms," *Optics Letters* **29**(15), 1802-04 (2004).
- [17] N. F. Scherer, R. J. Carlson, A. Matro, M. Du, A. J. Ruggiero, V. Romero-Rochin, J. A. Cina, G. R. Fleming and S. A. Rice "Fluorescence-detected wave packet interferometry : Time resolved molecular spectroscopy with sequences of femtosecond phase-locked pulses," *Journal of Chemical Physics* **95**(3), 1487-1511 (1991).
- [18] V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene and B. Girard "Temporal Coherent Control in Two-Photon Transitions : From Optical Interferences to Quantum Interferences," *Physical Review Letters* **78**(14), 2716-19 (1997).
- [19] M. A. Bouchene, V. Blanchet, C. Nicole, N. Melikechi, B. Girard, H. Ruppe, S. Rutz, E. Schreiber and L. Woste "Temporal coherent control induced by wave packet interferences in one and two photon atomic transitions," *The European Physical Journal D* **2**, 131-141 (1995).
- [20] W. P. de Boeij, M. S. Pshenichnikov and D. A. Wiersma "Phase-locked heterodyne-detected stimulated photon echo. A unique tool to study solute-solvent interactions," *Chemical Physics Letters* **238**, 1-8 (1995).
- [21] P. C. M. Planken, I. Brener, M. C. Nuss, M. S. C. Luo and S. L. Chuang, "Coherent control of terahertz charge oscillations in a coupled quantum well using phase-locked optical pulses," *Physical Review B* **48**(7), 4903-06 (1993).
- [22] A. P. Heberle, J. J. Baumberg and K. Köhler "Ultrafast Coherent Control and Destruction of Excitons in Quantum Wells," *Physical Review Letters* **75**(13), 2598-2601 (1995).
- [23] M. U. Wehner, M. H. Ulm, D. S. Chemla and M. Wegener "Coherent Control of Electron-LO-Phonon Scattering in Bulk GaAs," *Physical Review Letters* **80**(9), 1992-95 (1998).
- [24] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler and M. Motzkus, "Quantum control of energy flow in light harvesting," *Nature* **417**, 533-35 (2002).
- [25] M. Rini, R. Tobey, N. Dean, J. Itatani, Y. Tomioka, Y. Tokura, R. W. Schoenlein and A. Cavalleri, "Control of the electronic phase of a manganite by mode-selective vibrational excitation," *Nature* **449**, 93-96 (2007).
- [26] W. C. Hurlbut, B. J. Norton, N. Amer and Y. S. Lee, "Manipulation of terahertz waveforms in nonlinear optical crystals by shaped optical pulses," *Journal of the Optical Society of America B* **23**(1), 90-93 (2006).
- [27] P. G. Huggard, J. A. Cluff, C. J. Shaw, S. R. Andrews, E. H. Linfield and D. A. Ritchie, "Coherent control of cyclotron emission from a semiconductor using sub-picosecond electric field transients," *Applied Physics Letters* **71**(18), 2647-49 (1997).
- [28] R. Yano, K. Nakagawa and H. Shinjima, "Phase and Amplitude Control of Free Induction Decay Emitted from Water Vapor at 0.55THz Transition," *Japanese Journal of Applied Physics* **48**(022401), 1-6 (2009).
- [29] M. Renard, R. Chaux, B. Lavorel and O. Faucher, "Pulse trains produced by phase-modulation of ultrashort optical pulses : tailoring and characterization," *Optics Express* **12**(3), 473-82 (2004).
- [30] M. Renard, "Contrôle de la dynamique rotationnelle de molécules par impulsions laser ultra-brèves mises en forme," Thèse, Université de Bourgogne (2004).

- [31] J. C. Vaughan, T. Feurer, K. W. Stone and K. A. Nelson, "Analysis of replica pulses in femtosecond pulse shaping with pixelated devices," *Optics Express* **14**(3), 1314-28 (2006).
- [32] J. C. Vaughan, T. Hornung, T. Feurer and K. A. Nelson, "Diffraction-based femtosecond pulse shaping with a two-dimensional spatial light modulator," *Optics Letters* **30**(3), 323-25 (2005).

CONCLUSION

Dans ce travail de thèse, nous avons étudié, tant du point expérimental que théorique, la génération et la mise en forme d'impulsions térahertz.

La première partie de cette étude a été consacrée à la génération d'impulsions *THz* par redressement optique dans un cristal semiconducteur de ZnTe à partir d'impulsions laser femtosecondes issues d'une source laser titane-saphir amplifiée, et à leur détection par effet électro-optique. Les équations d'évolution des ondes optique et *THz* ont été établies et discutées. Nous avons ainsi pu déterminer les conditions optimales de génération et de détection par effet électro-optique pour nos cristaux de ZnTe. La confrontation de nos simulations numériques avec nos résultats expérimentaux, obtenus avec le dispositif que nous avons réalisé au laboratoire, nous a notamment permis de mettre en évidence une forte dépendance de l'efficacité de ce processus de génération avec l'intensité de l'impulsion laser génératrice. Cette dépendance se traduit par une évolution remarquable et anormale du spectre et de l'énergie *THz* avec l'intensité des impulsions optiques. Si théoriquement, le spectre se situe normalement autour de 2.3 THz, nous avons constaté expérimentalement un décalage vers les basses fréquences avec l'intensité optique. Typiquement, des impulsions optiques d'environ 10 GW/cm² engendrent un décalage de l'ordre de 1.5 THz, recentrant ainsi le spectre autour de 1 THz.

Dans le chapitre 2 de ce mémoire, nous avons donc tenté de mieux comprendre nos observations, sachant que de tels spectres anormalement centrés à basse fréquence avaient déjà été présentés dans la littérature, mais n'avaient pas fait l'objet d'une étude systématique. Nous avons généré et caractérisé des impulsions *THz* obtenues pour différentes intensités optiques dans des cristaux de différentes épaisseurs. Ces expériences ont clairement mis en évidence l'influence de l'intensité de l'impulsion redressée sur le spectre et l'énergie *THz* émis en sortie du cristal. Le décalage progressif du spectre *THz* vers les basses fréquences avec l'augmentation de l'intensité de pompe a été observée avec de grandes similitudes pour des cristaux de différentes épaisseurs. De plus, nous avons mis en évidence un rendement de conversion en énergie pour un cristal d'épaisseur 200 μm comparable à celui d'un cristal de 1 mm.

Afin de mieux comprendre l'influence des porteurs libres sur la propagation de l'onde *THz*, nous avons effectué des expériences pompe optique-sonde *THz*. Ces expériences ont révélé que l'absorption dans le domaine *THz* était relativement indépendante de la fréquence et que la thermalisation du gaz de porteurs s'accompagnait d'une forte augmentation de cette absorption. Si la déplétion de l'onde laser et l'absorption par les porteurs libres semblent aller dans le bon sens en ce qui concerne l'évolution de l'énergie *THz* en fonction de l'intensité de pompe et de l'épaisseur du cristal, ces deux mécanismes ne permettent pas d'expliquer le décalage spectral vers les basses fréquences. Nous avons alors suggéré qu'une modification de la condition d'accord de phase par les porteurs libres pouvait être responsable de ce phénomène. Pour étudier plus en détail l'influence des porteurs libres sur la génération de l'onde *THz*, nous avons réalisé des expériences du type pompe optique - génération *THz*. Ces expériences ont clairement montré que seuls les porteurs chauds sont susceptibles de modifier la condition d'accord de phase, entraînant

alors un décalage du spectre vers les basses fréquences. Lors de la génération de l'onde THz , celle-ci reste dans le sillage immédiat de l'impulsion optique (délai de l'ordre de la centaine de femtosecondes) de sorte qu'elle interagit préférentiellement avec le gaz de porteurs en cours de thermalisation. Nous pouvons donc expliquer le décalage spectral observé lorsque I_p , et donc la densité de porteurs, augmentent par une modification de la condition d'accord de phase induite par les porteurs chauds. Nous avons donc montré dans ce chapitre la complexité du processus de génération de l'onde THz où intervient la combinaison de la déplétion de la pompe au cours de sa propagation dans le cristal avec l'absorption de l'onde THz par les porteurs libres et la modification de la condition d'accord de phase par les porteurs chauds.

Si l'objectif de la première phase de notre travail portait sur la maîtrise d'un dispositif de génération d'impulsions THz par rectification à partir d'impulsions laser femtosecondes limitées par transformée de Fourier, la seconde phase a été consacré à la mise en forme d'impulsions dans le domaine THz . A l'image du développement remarquable des applications de la mise en forme d'impulsions optiques, le façonnage d'impulsions dans le domaine THz est aujourd'hui motivé par la variété de ses applications, notamment dans le domaine du contrôle cohérent. Si des expériences dans le domaine THz ont déjà été réalisées avec succès à l'aide d'impulsions optiques femtosecondes mises en forme, comme l'excitation sélective de modes de phonons, d'oscillations de charges ou encore de phonons-polaritons, les possibilités de contrôle dans ce domaine de fréquence seraient amplifiées par une excitation directe avec des impulsions THz mises en forme. Afin de façonner les impulsions dans le domaine THz , nous avons choisi de développer une approche analytique qui repose sur la mise en forme de l'impulsion laser génératrice.

Une partie importante de notre travail, décrite dans le chapitre 3, a ainsi été vouée à la conception, la construction et le réglage d'un dispositif haute résolution de mise en forme d'impulsions laser, basé sur l'utilisation d'un masque à cristaux liquides placé dans le plan de Fourier d'une ligne à dispersion nulle. Les tests de validation de notre dispositif se sont avérés concluants. Caractérisées par la technique de corrélation croisée, nous avons montré que pour des modulations de phase relativement simples, nous obtenons en sortie du façonneur des impulsions correspondant bien aux mises en forme souhaitées. Nous avons également établi les deux principales limitations de notre dispositif, à savoir la résolution spectrale limite de la ligne à dispersion nulle qui se répercute dans le domaine temporel par l'apparition d'une fenêtre gaussienne de largeur 10.5 ps qui limite les possibilités de mises en forme, et aussi la pixellisation du masque à cristaux liquides qui entraîne la création de répliques de l'impulsion mise en forme espacées de 8 ps. Par ailleurs, ce dispositif de mise en forme n'a pas été uniquement conçu pour la mise en forme THz . Il est également destiné au contrôle de processus moléculaires, un des objectifs de notre équipe étant de mieux comprendre certains processus photo-physiques moléculaires. Dans ce but nous avons également développé et testé avec succès un algorithme génétique qui permet d'utiliser notre façonneur dans un schéma en boucle fermée. Ce dispositif de contrôle optimal permet maintenant d'envisager son application pour l'étude de processus photo-physiques présentés par certains complexes moléculaires. Une première série d'expérience consistera à contrôler l'évolution d'un système photo-excité en le guidant préférentiellement vers un canal de relaxation prédéterminé (état à transfert de charge, isomérisation). D'autres expériences seront dédiées à l'étude et au contrôle de la génération d'impulsions THz provenant de molécules à transfert de

charge. L'analyse de l'impulsion optimale obtenue pourra alors fournir des indications sur les processus physiques mis en jeux.

Enfin, dans la dernière partie de ce travail, munis de notre seul dispositif de mise en forme d'impulsions, nous avons montré qu'il était possible de générer des impulsions *THz* de formes particulièrement intéressantes pour les expériences de spectroscopie cohérente ou de contrôle cohérent. Nous avons notamment généré des paires d'impulsions verrouillées en phase, des trains d'impulsions, ainsi que des impulsions *THz* accordables de grande finesse spectrale. Les apports de notre technique par rapport à celles déjà existantes sont multiples : elle ne nécessite pas l'emploi d'algorithmes d'optimisation et offre la capacité à générer très rapidement des formes variées, permettant notamment d'envisager la réalisation d'expérience de contrôle optimal dans ce domaine de fréquence. En outre, les impulsions *THz* sont obtenues en appliquant des modulations de phase spectrale relativement simples à l'impulsion redressée optiquement (phase sinusoïdale et/ou triangulaire), c'est-à-dire en jouant sur un nombre relativement restreint de paramètres. Les spectres associés à nos impulsions *THz* sont relativement étroits (jusqu'à 140 GHz à mi-hauteur) et accordables de 0.5 à 3 THz. Un programme de modélisation développé spécialement dans ce contexte donne des résultats en très bon accord avec l'expérience.

La réalisation et la maîtrise de notre dispositif de façonnage nous ouvrent maintenant la voie vers différentes applications. Par exemple, la mise en forme dans le domaine *THz* pourrait être utilisée pour créer et contrôler des paquets d'onde ro-vibrationnels dans des molécules en phase gazeuse, voire même, dans certains cas, permettre l'excitation cohérente de modes de vibrations basses fréquences de cristaux non-linéaires. Par ailleurs, il nous paraît également intéressant d'utiliser notre algorithme génétique afin d'optimiser la génération par redressement optique d'impulsions *THz*. Ceci devrait nous permettre de mieux appréhender les processus gouvernant la génération *THz*.