HAL
open science

# Application de la spectroscopie térahertz à la détection de substances sensibles

Damien Armand

## To cite this version:

Damien Armand. Application de la spectroscopie térahertz à la détection de substances sensibles. Autre. Université de Grenoble, 2011. Français. NNT : 2011GRENT092 . tel-00721831

**HAL Id: tel-00721831**

**https://theses.hal.science/tel-00721831v1**

Submitted on 30 Jul 2012

**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.

UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

# THÈSE

Pour obtenir le grade de

## DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Optique et Radiofréquences**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par


## « Damien ARMAND »


Thèse dirigée par **« Jean-Louis COUTAZ »** et
codirigée par **« Frédéric GARET »**

préparée au sein du **Laboratoire IMEP-LAHC**
dans **l'École Doctorale E.E.A.T.S.**

# Application de la spectroscopie térahertz à la détection de substances sensibles

Thèse soutenue publiquement le **7 juillet 2011**,
devant le jury composé de :

**Monsieur, Philippe, ADAM**
Responsable Scientifique du domaine Photonique, Mission pour la Recherche et l'Innovation Scientifique, DGA, Bagneux, Membre

**Monsieur, Jean-Louis, COUTAZ**
Professeur à l'Université de Savoie, Directeur de thèse

**Monsieur, Laurent, CHUSSEAU**
Directeur de Recherche au CNRS, IES Montpellier, Rapporteur

**Monsieur, Frédéric, GARET**
Maître de conférences de l'université de Savoie, Co-directeur de thèse

**Monsieur, Jean-Claude, MOLLIER**
Professeur des universités, ISAE, Toulouse, Membre

**Monsieur, Gaël, MOURET**
Maître de conférences de l'université du Littoral Côte d'Opale, Rapporteur

# Remerciements

La réalisation de cette thèse de doctorat aurait été impossible sans les conseils, les soutiens et les encouragements de nombreuses personnes que je souhaite ici remercier.

Tout d'abord, je remercie mon directeur de thèse M. Jean-Louis Coutaz pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire IMEP-LAHC et pour sa bonne humeur naturelle qui ne manque pas de déteindre sur l'ensemble de l'équipe, nous offrant un cadre de travail des plus serein. Je le remercie aussi pour la confiance qu'il m'a toujours témoignée en dépit des difficultés qui se dressent sur le long du parcours d'une thèse. C'est ma sincère reconnaissance que je tenais ici à lui exprimer.

Je remercie aussi la Délégation Générale pour l'Armement qui fait tant pour la recherche dans notre domaine. Sans son soutien financier il est peu probable que cette thèse ait vu le jour. Les exigences que la DGA peut formuler, et qui peuvent sembler parfois contraignantes, s'avèrent en réalité d'une grande aide pour prendre le recul nécessaire à la bonne continuation des travaux engagés. Je remercie aussi M. Bruno Desruelle, ancien responsable scientifique pour la DGA pour son encadrement et son management du projet, à chacune de nos rencontres ma motivation s'en trouvait renforcée. Je remercie aussi M. Philippe Adam, responsable scientifique de la DGA que j'ai rencontré le jour de ma soutenance, sa perspicacité aura rendu la période de question certes difficile pour moi, mais je l'espère intéressante pour le public. Je le remercie aussi pour ses corrections qui ont contribué immanquablement à la clarté de ce manuscrit.

J'en profite pour remercier l'ensemble du jury, tout d'abord M. Jean-Claude Mollier, directeur de recherche au CNRS, pour avoir accepté de présider à ma soutenance de thèse. L'atmosphère qu'il imprégna à cette soutenance m'aura beaucoup aidé à me sentir à l'aise, aussi pour ça je tenais à le remercier. Je remercie aussi mes rapporteurs M. Gaël Mouret et M. Laurent Chusseau pour la rapidité avec laquelle ils ont du rendre leur rapport de thèse du fait de mes propres manquements sur les délais impartis.

Je remercie M. Frédéric Garet, que je pense aussi pouvoir remercier au nom de tous les doctorants qui ont travaillé ou qui seront amenés à travailler avec lui, pour le travail titanesque qu'il effectue au laboratoire. Sa disponibilité sans faille, son aide continuelle et son expertise du domaine, m'ont permis d'avancer bien plus vite, et de manière bien plus cohérente que ça n'aurait été le cas sans lui. C'est un grand merci que je lui adresse pour l'ensemble de cette thèse, mais aussi bien sur pour m'avoir fait confiance lors du recrutement.

Je voudrais remercier maintenant l'ensemble des collègues du laboratoire IMEP-LAHC, et particulièrement M. Lionel Duvillaret pour la gentillesse avec laquelle il a pu répondre à mes interrogations, les remarques et conseils que j'ai pu obtenir de sa part ont toujours été d'une grande valeur. Je remercie également M. Gwenaël Gaborit pour sa curiosité sur le large domaine de la physique avec qui j'ai tant de discussions intéressantes, mais aussi pour son expertise sur l'électro-optique et sa pédagogie remarquable qui m'aura bien aidé à appréhender au mieux de nombreux aspects théoriques et expérimentaux. Je remercie également M. Jean-François Roux pour l'aide qu'il m'a apporté quand je découvrais le domaine de l'optique non-linéaire.

Je remercie aussi M. Mickaël Ruaro pour le travail si professionnel qu'il a réalisé en stage de DUT concernant le programme d'acquisition des données de mon expérience. Ses qualités, aussi bien humaines que techniques, n'auront pas échappé à la société alors naissante qu'était Kapteos. J'en profite pour remercier d'autres membres de Kapteos à savoir, M. Pierre Jarrige, M. Yann Gaeremynck et M. Frédéric Lecoche qui arrivèrent à mon goût un peu tard au laboratoire et avec qui j'aurais souhaité passer plus de temps. Je pense que sans eux ma dernière année aurait été beaucoup plus difficile et les trop rares moments de décompression me furent salvateurs.

Je remercie également Mme. Magali Astic pour son travail de conception du boitier de contrôle des lignes à retard dont j'ai pu profiter. Je remercie aussi Mme. Emilie Herault pour les mesures réalisées et partagées avec le banc BRDF.

Je remercie Mme. Fernanda Mendonca-dos-reis pour sa gentillesse et son aide concernant les nombreuses tâches administratives qu'elle a du réaliser pour moi.

Je remercie M. Youness Laamiri, nous avons partagé durant 3 années aussi bien notre bureau, que nos soucis techniques, scientifiques, matériels sans oublier de partager les tracas de la vie et de nombreux fous rires. Ce fut vraiment agréable et enrichissant de le rencontrer.

Il y a aussi tant d'anciens ou d'actuels personnels du laboratoire qu'il me faut remercier, mais j'ai bien trop peur d'en oublier pour me risquer à une liste exhaustive, alors à tous ceux qui m'auront côtoyé au bâtiment Chablais ou à l'Iseran vous pouvez être certain de ma reconnaissance, que ce soit concernant le travail, les pauses café, ou les sorties que nous avons pu partagées.

Il me reste quelques personnes à remercier, et pas des moins importantes. Tout d'abord je pense à M. Nicolas, instituteur de CE1-CE2, pour avoir su m'apprivoiser. Peut être sans lui jamais je n'aurais eu le gout des études.
Ensuite je pense à mon professeur de mécanique, thermique et fluidique, M. Parmentier du lycée Sainte-Croix Saint-Euverte pour la qualité de son enseignement mais surtout pour m'avoir donné confiance en mes capacités en me proposant au concours général.

Je remercie mes parents, Norbert et Chantal, pour la liberté qu'ils m'ont toujours donnée dans mes choix de parcours, et au delà de ça pour le soutien que ces choix leur ont imposé de donner.
Je n'oublie pas mon frangin, Herbert, qui à sa manière a toujours était un exemple pour moi. Sois sur que sans toi, je n'en serais pas là aujourd'hui.
C'est aussi une belle occasion qui m'est donné de lithographier, et pour une fois dans du marbre, que je les aime.

***A Tous Merci...***

# Table des matières

**Introduction** **1**

**I Généralités sur les techniques de génération et de détection de rayonnement THz** **4**

**1 Intérêt, capacité et potentiel du rayonnement THz** **7**

1.1 Application à la sécurité . . . . . 7

1.1.1 Méthodes de détection d'explosifs existantes . . . . . 8

1.1.2 Application à la sécurité du rayonnement THz . . . . . 10

1.2 Ouverture du spectre dans le régime THz . . . . . 14

1.2.1 Génération . . . . . 14

1.2.1.1 Génération par photoconduction . . . . . 14

1.2.1.2 Génération par effet non-linéaire . . . . . 16

1.2.1.3 Génération à la surface de matériau semi-conducteur . . . 17

1.2.1.4 Autres moyens de génération . . . . . 17

1.2.2 Détection . . . . . 19

1.3 La spectroscopie THz dans le domaine temporel . . . . . 21

1.3.1 Echantillonnage d'une impulsion THz . . . . . 22

1.3.2 Caractérisation des matériaux . . . . . 22

1.4 Etat de l'art des expériences de THz-TDS très large bande ($\geq$20 THz) . . 25

**2 Génération et détection de signaux THz grâce à l'optique non-linéaire** **28**

2.1 Introduction à l'optique non-linéaire . . . . . 28

2.1.1 Ecriture des champs . . . . . 30

2.1.2 Equation de propagation non linéaire . . . . . 31

2.2 Génération térahertz par rectification optique . . . . . 35

2.2.1 Optimisation de la génération THz au sein d'un cristal de ZnTe en coupe (110) . . . . . 36

2.3 Détection térahertz par effet électro-optique . . . . . 39

2.3.1 Formalisme usuel de l'effet Pockels . . . . . 40
2.3.1.1 L'ellipsoïde des indices . . . . . 40
2.3.1.2 Cas général . . . . . 41
2.3.2 Optimisation de l'efficacité de l'effet électro-optique dans le ZnTe . 42
2.3.2.1 Etude d'une coupe dans le cas général . . . . . 43
2.3.2.2 Etude de la coupe (110) du ZnTe . . . . . 45
2.3.2.3 Etude de la coupe (111) du ZnTe . . . . . 46
2.3.2.4 Influence du désaccord de phase dans les cristaux . . . . . 46
2.3.2.5 Conversion de la modulation de polarisation en modulation de puissance . . . . . 47

**II Présentation des bancs de spectroscopie THz-TDS réalisés 50**

**3 Développement d'un banc de caractérisation à très haute fréquence 52**
3.1 Conception du banc expérimental . . . . . 52
3.1.1 Etudes théoriques des capacités de l'expérience en détection . . . . 54
3.1.1.1 Dynamique de l'expérience . . . . . 54
3.1.1.2 Chaîne électronique de détection . . . . . 55
3.1.2 Réponse électro-optique du ZnTe . . . . . 56
3.2 Résultats obtenus . . . . . 57
3.2.1 Génération et détection par effet non linéaire dans ZnTe. . . . . 58
3.2.1.1 Disposition expérimentale et résultats . . . . . 58
3.2.1.2 Contrôle de la polarisation et optimisation de l'expérience 58
3.2.1.3 Remarque sur la détection Pockels . . . . . 61
3.2.2 Génération par rectification dans ZnTe et détection photoconducteur LT-GaAs. . . . . 62
3.2.3 Génération avec le photoconducteur LT-GaAs et détection par effet Pockels dans ZnTe. . . . . 66
3.2.4 Discussion . . . . . 66
3.2.4.1 Accord avec la théorie. . . . . 67
3.2.4.2 Commentaires sur les méthodes de génération et de détection. . . . . 68
3.2.4.3 Détection Pockels, et zone d'interaction . . . . . 69
3.2.4.4 Mesure du coefficient de Pockels . . . . . 71
3.2.4.5 Conclusion sur le banc haute fréquence . . . . . 75

**4 Banc de mesure de signaux THz rétro-diffusés (BRDF) 76**
4.1 Dispersion d'une impulsion optique ultra brève dans les fibres monomodes 76
4.1.1 La précompensation de la dispersion à l'aide de réseaux . . . . . 78
4.1.2 Choix des réseaux . . . . . 80
4.1.3 Fibrage de l'antenne . . . . . 82
4.2 Validation du dispositif de pré-compensation . . . . . 83
4.3 Caractérisation du spectrogoniomètre THz . . . . . 83
4.3.1 Analyse et modélisation du faisceau . . . . . 86
4.4 Etude d'échantillons diffusants . . . . . 89
4.4.1 Mise en évidence du phénomène de diffusion. . . . . 91

**III Utilisation de la THz-TDS pour la caractérisation de matériaux et dispositifs. 96**

**5 Spectroscopie de matériaux pour la sécurité dans le domaine THz. 97**
5.1 Substances pyrotechniques . . . . . 97
5.1.1 Matériaux à base de RDX . . . . . 97
5.1.2 Matériaux à base de Pentrite - PETN . . . . . 102
5.1.3 Semtex . . . . . 105
5.1.4 Matériaux à base d'Octogène - HMX . . . . . 106
5.1.5 Matériaux à base de tolite - TNT . . . . . 107
5.1.6 Matériaux à base de Propergol . . . . . 108
5.1.7 Perspectives . . . . . 111
5.2 Matériaux de dissimulation . . . . . 112
5.2.1 Remarques sur les données présentées . . . . . 112
5.2.2 Matériaux à base de bois . . . . . 112
5.2.3 Papiers et cartons . . . . . 116
5.2.4 Matériaux de construction . . . . . 119
5.2.5 Tissus . . . . . 120
5.2.6 Conclusion sur les matériaux de dissimulation . . . . . 122

**6 Plasmonique THz 123**
6.1 Présentation théorique du phénomène . . . . . 123
6.1.1 Onde de surface à l'interface métal-diélectrique . . . . . 123
6.1.1.1 Relation de dispersion . . . . . 125
6.1.1.2 Cas TE . . . . . 126

6.1.1.3 Cas TM . . . . . 126
6.1.2 Méthode de couplage-découplage des SP . . . . . 127
6.2 Dispositif à bande interdite . . . . . 128
6.2.1 Principe de l'expérience . . . . . 128
6.2.2 Description du dispositif . . . . . 130
6.2.3 Résultats . . . . . 131
6.3 Dispositif de couplage 2D pour la focalisation de SP . . . . . 132
6.3.1 Description théorique du dispositif . . . . . 133
6.3.2 Etude expérimentale du dispositif de couplage 2D . . . . . 135
6.3.2.1 Mise en évidence du caractère focalisant du dispositif . . . 135
6.3.2.2 Résolution spectrale du dispositif . . . . . 139
6.3.2.3 Extension dans l'air . . . . . 139
6.4 Structure métallique discontinue . . . . . 140
6.4.1 Principe de l'expérience . . . . . 140
6.4.2 Résultats . . . . . 141

**Conclusion** **148**

**IV Annexes** **150**

**A Raies d'absorption d'une large gamme d'explosif** **151**

**B Routine Maple exprimant le module et la direction de polarisation du champs THz dans le ZnTe (110)** **152**

**C Routine Maple de détermination du coefficient de Pockels** **157**

**D Détail des résultats obtenus sur les matériaux de dissimulation** **161**
D.0.3 B1, bois résineux . . . . . 161
D.0.4 B2, bois résineux . . . . . 161
D.0.5 B3, bois résineux . . . . . 163
D.0.6 B4, bois résineux . . . . . 163
D.0.7 B5, essence de hêtre . . . . . 164
D.0.8 B6, essence de chêne . . . . . 164
D.0.9 B7, essence d'acajou 1 . . . . . 165
D.0.10 B8, essence d'acajou 2 . . . . . 165

D.0.11 A1, aggloméré . . . . . 166
D.0.12 A2, aggloméré . . . . . 166
D.0.13 CP2, contre-plaqué . . . . . 167
D.0.14 C1, carton alvéolé . . . . . 167
D.0.15 C2, carton alvéolé . . . . . 168
D.0.16 P80, papier blanc . . . . . 168
D.0.17 P100, papier blanc . . . . . 169
D.0.18 P160, papier blanc . . . . . 169
D.0.19 P200, papier blanc . . . . . 170
D.0.20 P240, papier blanc . . . . . 170
D.0.21 PC, Pâte de ciment . . . . . 171
D.0.22 RM, roche marquise . . . . . 171
D.0.23 Pl, Plâtre . . . . . 172
D.0.24 Br, Brique . . . . . 172
D.0.25 Lai1, Laine . . . . . 173
D.0.26 Lai2, Laine . . . . . 173
D.0.27 Cot1, Coton . . . . . 174
D.0.28 Cot2, Coton . . . . . 174
D.0.29 Cr1, Cuir . . . . . 175
D.0.30 Cr2, Cuir . . . . . 175

**Bibliographie** **177**

# Introduction

L'utilisation des ondes électromagnétiques dans la gamme de fréquence térahertz (100 GHz - 20 THz) a longtemps été freinée d'un côté par la difficulté à développer des sources de rayonnement THz suffisamment puissantes, et de l'autre par l'absence de détecteurs simples d'emploi. Depuis les années 1990, on assiste à une véritable révolution technologique dans ce domaine et des progrès très significatifs ont été accomplis au niveau de la génération et de la détection des ondes térahertz (THz). Ainsi, on commence à trouver dans les laboratoires des sources THz fonctionnant en régime pulsé (de l'ordre du $\mu$W) ou continu (de l'ordre du mW) présentant des puissances de sortie raisonnables (voir figure 1.4). En parallèle, on voit apparaître les premiers détecteurs matriciels THz. Si les niveaux de performance atteints aujourd'hui avec ces composants semblent insuffisants, il semble clair que les développements technologiques permettront dans un futur relativement proche d'atteindre des performances permettant d'envisager la mise sur le marché de systèmes utilisant la technologie THz.

Ces technologies THz suscitent un intérêt certain, entre autres pour les applications de défense et sécurité. En effet, les rayonnements électromagnétiques dans cette gamme de fréquence présentent des propriétés spécifiques qui pourraient conduire au développement de nouvelles applications. Premièrement, les ondes THz se caractérisent par une excellente capacité à pénétrer de nombreux matériaux opaques aux fréquences optiques comme les vêtements, certains types de plastiques et matériaux de construction. Deuxièmement, un grand nombre de composés d'intérêt pour la sécurité, notamment certains explosifs et agents biochimiques, présentent dans le domaine THz des signatures spectrales spécifiques qui devraient permettre une détection et identification efficaces de ce type de molécules. On peut donc par exemple imaginer utiliser ces technologies pour développer des systèmes d'imagerie multispectrale capables de détecter des explosifs camouflés sous des vêtements ou dans des bagages. La détection d'agents biochimiques dans le courrier constitue un autre exemple d'application (déjà en œuvre dans certains centres de tri japonais). De nombreuses interrogations subsistent toutefois sur la pertinence de ces technologies et un travail important reste à fournir au niveau appliqué pour en connaître les limites.

Cette thèse se présente en trois parties. La première partie consiste à situer le travail dans le contexte technologique actuel et à présenter les avantages intrinsèques de la spectroscopie THz dans le domaine temporel concernant la détection de matériaux sensibles. Nous aborderons donc en détail ce type d'expériences ainsi que les formalismes mathématiques nous permettant de prédire les phénomènes misent en jeu lors de la génération et de la détection des ondes THz. En un mot, cette première partie est essentiellement un travail bibliographique et théorique que l'homme du métier pourra aisément survoler.
La seconde et troisième parties sont dédiées à la présentation des résultats obtenus au cours de cette thèse. La seconde partie traite des bancs de spectroscopie développés : un banc de spectroscopie ultra-haute fréquence permettant des caractérisations à fréquences élevées (idéalement 20 THz) de matériaux, un banc de mesure de signaux rétro-diffusés. La dernière partie porte sur les expériences de spectroscopie réalisées, à savoir la caractérisation de substances pyrotechniques et des matériaux de dissimulation dans le régime 0.1 à 5 THz. Les délais d'attentes parfois longs des différents matériels indispensables à l'avancement de ces expériences nous ont permis de travailler en parallèle sur une thématique annexe mais toutefois intéressante concernant la plasmonique THz. Cette technologie paraît prometteuse pour la spectroscopie de matériaux en couche mince ou en faible quantité, ces derniers travaux seront donc présentés aussi en troisième partie.

# Première partie

# Généralités sur les techniques de génération et de détection de rayonnement THz

L'exploration et l'utilisation des ondes électromagnétiques ont offert et offriront encore bien des applications dans tous les secteurs d'activités humaines. James Clerk Maxwell réalisa au XIX$^{e}$ siècle l'unification des champs électrique et magnétique en un ensemble d'équations portant aujourd'hui son nom ; cela lui permit d'interpréter la lumière comme une variété de ces ondes électromagnétiques [1]. Vingt ans plus tard, Heinrich Hertz démontra l'existence des ondes radio. Mais le spectre électromagnétique était encore bien loin d'être couvert entièrement... Comme l'interaction matière-champ électromagnétique est très différente d'une gamme à l'autre du spectre, une quantité d'applications pratiques et scientifiques apparaîssent à chaque nouvelle ouverture du spectre électromagnétique. C'est pourquoi le développement de sources et de détecteurs d'onde électromagnétique à des fréquences jusqu'alors inexplorées stimule l'émergence de nouvelles technologies. H. Rubens, physicien allemand, a travaillé sur le rayonnement de l'infrarouge lointain. En 1900, Rubens réalise des mesures à 6 THz lui permettant de démontrer que la loi de Wien (loi empirique du corps noir) ne s'applique pas pour les grandes longueur d'onde. M. Planck en 1922 (année de la mort de Rubens) affirme :
*"Without the intervention of Rubens the formulation of the radiation law, and consequently the formulation of quantum theory would have taken place in a totally different manner, and perhaps even not at all in Germany."*
Le rayonnement THz a donc joué un rôle à ses tout débuts dans l'arrivée de la théorie quantique. Il sera officiellement considéré comme rayonnement électromagnétique en 1923 grâce aux travaux de Ernest Fox Nichols qui montra la similitude entre onde infrarouge et hertziennes [2]. Citons aussi les travaux de Jagadish Bose dans les années 1880, qui effectua nombre de mesures dans le domaine des ondes centimétriques ; il imagina et mit au point plusieurs composants et dispositifs toujours utilisés, comme les polariseurs à grille, les prismes à réflexion total atténuée pour régler l'intensité des faisceaux, ... sans oublier le redressement des signaux électriques dans ce qu'on appelle aujourd'hui des diodes Schottky (le premier à utiliser des matériaux semi-conducteur pour de telles applications [3]). Le spectre électromagnétique est aujourd'hui très bien exploré mais il existe encore des difficultés à générer des ondes THz. Ce qui fut appelé le "gap" THz s'est aujourd'hui pratiquement fermé mais les difficultés d'avoir des sources et des détecteurs efficaces demeurent. En effet, de nombreuses innovations technologiques manquantes séparent encore les laboratoires du monde industriel. Cependant, le potentiel intrinsèque de ce rayonnement génère une pression forte pour l'apparition de ces technologies, et il est clair qu'à moyen terme les problèmes actuels seront résolus et que le rayonnement THz trouvera toute sa place dans le monde industriel.

Dans cette partie nous allons introduire en détail le cadre du travail effectué durant cette thèse. Le premier chapitre met en avant les avantages que les technologies THz peuvent apporter dans la détection d'explosifs. Puis nous abordons les méthodes de génération et de détection, ainsi que le type d'expériences qui permettent, à mon sens, de réaliser la détection de matériaux sensibles pour la sécurité. Le second chapitre de cette partie explicitera le cadre théorique qui régit les expériences menées.

# Chapitre 1

# Intérêt, capacité et potentiel du rayonnement THz

Le rayonnement THz suscite un intérêt croissant auprès des services publiques ou des industriels, et certaines niches d'applications sont d'ores et déjà bien ciblées. A titre d'exemple et pour citer les applications les plus en vogues, mentionnons la transmission de données en régime térahertz qui permettra d'augmenter les débits actuellement accessibles [4], l'étude de la dynamique moléculaire ultra-rapide [5], l'imagerie de cellules cancéreuses de la peau [6], la détection de substances prohibées (explosifs [7], ou stupéfiants [8]) au travers de leurs emballages... C'est dans cette dernière thématique, concernant les applications de sécurité, que mon travail de thèse se situe. Nous commencerons par présenter succinctement les différentes techniques utilisable pour la détection et l'identification d'explosifs en particulier par la technologie THz. Puis nous présenterons succinctement les différentes méthodes de génération et de détection permettant de combler le gap THz, en montrant l'intérêt de la spectroscopie THz dans le domaine temporel pour la détection d'explosifs. Finalement, nous aborderons sous l'aspect théorique, les méthodes de génération et de détection permettant la conception d'expérience de spectroscopie THz-TDS décrites dans la suite de cette thèse, et ainsi l'identification des substances prohibées.

## 1.1 Application à la sécurité

Nous assistons à la multiplication d'évènements tragiques comme le 11 septembre 2001, Bali en 2002, Madrid en 2004, métro de Londres en 2005 et le quotidien en Israël... Tous ces événements démontrent l'ingéniosité des organisations terroristes, et bien que de nombreuses techniques de détection d'explosifs existent d'ores et déjà, il est important de rechercher des méthodes innovantes et complémentaires permettant la prévention de telles attaques. Nous présentons dans la suite de cette partie, une étude bibliographique non

exhaustive des méthodes de détection d'explosifs. Nous montrerons l'intérêt des techniques THz dans la lutte contre le terrorisme, et présenterons les signatures spectrales d'explosifs couramment utilisés dans ce type d'attentat.

### 1.1.1 Méthodes de détection d'explosifs existantes

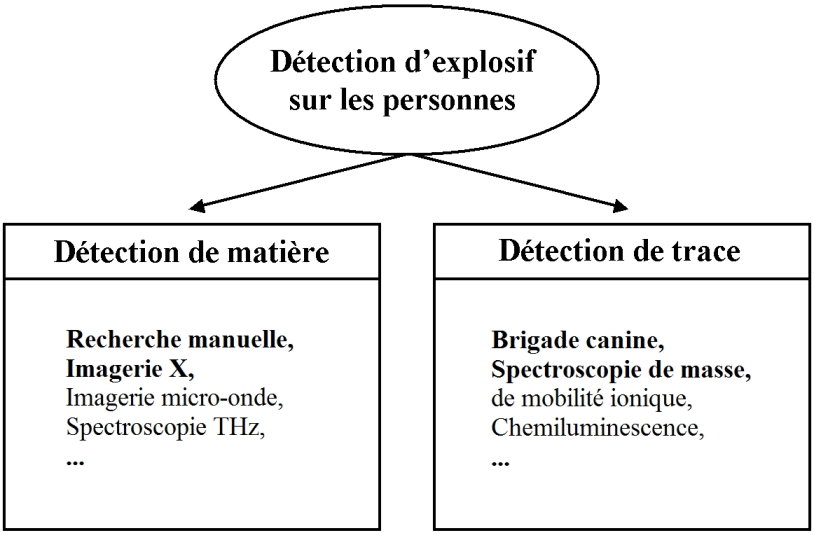



FIGURE 1.1: Différentes méthodes aujourd'hui utilisées (en gras) ou étudiées (utilisation marginale et étude en laboratoire en caractères normaux) dans le cadre de la détection d'explosifs.

Parmi les méthodes utilisées dans la détection d'explosifs [9], [10] (voir figure 1.1), nous pouvons citer la chemiluminescence [11] qui consiste en l'émission de lumière (généralement dans le visible, mais aussi dans l'infrarouge et l'ultraviolet) lors d'une réaction chimique où les électrons des produits de la réaction regagnent leur état d'énergie fondamental en émettant des photons. Cette méthode présente l'avantage d'être rapide, simple,

$$\mathrm{NO} + \mathrm{O_3} \longrightarrow \mathrm{NO_2^*} + \mathrm{O_2} \qquad \mathrm{NO_2^*} \longrightarrow \mathrm{NO_2} + \mathrm{h}\nu$$

FIGURE 1.2: Exemple typique du phénomène de chemiluminescence lors de la réaction du monooxyde d'azote avec l'ozone.

d'une sensibilité très élevée (généralement utilisée pour la détection de trace). Les explosifs identifiables avec cette technique doivent contenir des groupement nitro (monoxyde d'azote), il s'agit des explosifs de type nitramine (RDX, HMX), nitraromatique (2-NT, 3-NT, 2,4-DNT, TNT...), et les nitrate d'esther (PETN, EGDN). Toutefois la sélectivité de cette méthode est médiocre. La détection peut notamment se faire en phase gazeuse, où l'air à étudier est mélangé à l'ozone ; il en résulte l'émission de lumière si la présence des groupement nitro ou nitrate est avérée, lumière qui est détectée par un photomultiplicateur.

Une autre possibilité est la spectroscopie de masse [12] qui offre une bonne sensibilité et une bonne sélectivité. De plus les spectromètres de masse sont aujourd'hui peu encombrants, moins chers (qu'ils ne le furent) et portables. Plusieurs dispositifs de détection d'explosif ont été ainsi développés sur cette technique, nous pouvons notamment évoquer le "Syagen Guardian MS-ETD Portal", un portique dans lequel un léger courant d'air récupère les molécules éventuellement présentes sous forme de traces sur l'individu ou sur ses vêtements. L'air est récupéré, asséché, et filtré avant d'être analysé. La mesure prend moins de 15 s, et permet de détecter une large gamme d'explosifs (PETN, EGDN, TNT, DNT, RDX, HMX, PETN, EGDN, NG, ANFO, TATP, HMTD, Tetryl).
Concernant la détection de traces, les brigades canines (qui ont inspiré des technologies comme les nez électroniques) sont fréquemment employées. Ces brigades sont largement répandues à travers le monde, leur coût est faible (au regard du coût pour les technologies existantes), leur sensibilité est bonne, la détection relativement rapide, facilement transportable. En revanche, les brigades canines ne peuvent travailler qu'environ 1-2 heures par jour. Elles ne permettent pas l'identification des substances, les conditions extérieures doivent être viables (limite de température, pression...). Bien que très utile aujourd'hui, ce type de recherche s'avère inefficace devant le flux de personnes et de marchandises à contrôler, et il est clair que des appareils sont nécessaires pour rendre la lutte anti-terroriste efficace.
Concernant la détection directe de matière illicite, nous pouvons citer la méthode bien connue de l'imagerie par diffraction de rayons X ( [13] chapitre 8). Il est particulièrement intéressant pour la détection dans les bagages (le caractère ionisant de ce rayonnement limite son utilisation sur les personnes). L'étude de la tache de diffraction dans le régime des rayons X permet d'obtenir de nombreuses informations relatives aux objets présents dans les bagages (dépendamment de la technique ou du traitement effectué), telle que la densité (important car les explosifs ont une densité supérieure au plastique usuel), le volume qui peut être obtenu par tomographie (paramètre important car il existe un volume critique en deçà duquel un explosif ne présente pas de risque), la valeur moyenne du numéro atomique (qui est augmenté par le présence d'oxygène dans les explosifs), et la sensibilité à la périodicité de la maille cristalline de l'ordre 0.0001 Å qui permet de séparer des centaines de produits chimiques. Cette méthode est très utilisée dans les aéroports où 100% des bagages sont imagés de cette manière en Europe et aux États-Unis (plus de $10^9$ bagages sont imagés chaque année aux États-Unis). Mais le nombre de fausses alarmes conduit un coût très élevé en terme de personnel. Ce coût justifie à lui seul la continuité des recherches dans l'imagerie X afin de diminuer le nombre de ces fausses alarmes...

L'imagerie par onde millimétrique est très prometteuse dans la détection d'objets non métalliques (explosif, céramique...) sur les personnes. En effet, ce rayonnement non-ionisant et sans danger à basse énergie présente l'avantage de traverser la plupart des tissus et se réfléchit sur le corps humain ou sur des objets cachés sous les vêtements. L'acquisition d'image peut s'effectuer à une vitesse permettant la vidéo en temps réel, des solutions actives (éclairement de l'objet) ou passive (rayonnement naturel des corps) sont proposées [14]. La forme des objets ainsi que l'angle d'observation rendent difficile une caractérisation des diélectriques en présence (basée sur la réflexion air-diélectrique) dans une situation réelle. La plupart des systèmes actuels fonctionnent entre 10 et 200 GHz. Anecdotique ou pas, ce type de technologie rencontre quelques difficultés éthiques largement amplifiées par les médias. De mon point de vue, les images de ce type dénaturent totalement le corps, le rendant complètement neutre, toutefois la possibilité de floutage des images ou l'utilisation de système de détection automatique sont envisageables.
Finalement, nous présentons les technologies THz. Elles offrent les mêmes avantages en terme de pénétration et d'utilisation que les ondes millimétriques, mais elles présentent, compte tenu de la longueur d'onde plus faible, l'avantage d'une résolution meilleure. Leur intérêt ne réside pas seulement dans la possibilité d'imagerie THz qui donne des informations semblables à l'imagerie millimétrique (cette dernière étant techniquement plus aboutie), mais dans de l'imagerie spectroscopique ou multispectrale. En effet, ce rayonnement présente l'avantage certain d'avoir une énergie par photon proche des énergies de rotation, vibration, torsion, de l'ensemble de la molécule. Cela permet une interaction THz-matière très riche en informations spectrales. Ainsi, la spectroscopie THz permet d'identifier de nombreux matériaux qui possèdent une signature spectrale dans le régime THz. A long terme, nous pouvons imaginer une imagerie spectrale THz, qui pourrait donner une image fournissant la composition chimique de certains matériaux non-métalliques en présence.

### 1.1.2 Application à la sécurité du rayonnement THz

Plusieurs laboratoires poursuivent des études sur la spectroscopie THz de matières explosives. Nous présentons ici une étude bibliographique relative aux expériences de spectroscopie THz en transmission. Toutes ces études portent sur la caractérisation de pastilles. Ces pastilles sont obtenues à partir de poudre de la matière à étudier, d'un diamètre de grain très inférieur à la longueur d'onde THz (typiquement 1-3 $\mu$m) afin de limiter la diffusion ($\lambda_{THz} \approx 300\mu$m). L'explosif est en général mélangé à une poudre "hôte" transparente (presque systématiquement le polyéthylène **PE**) dans un rapport de

$\frac{1}{4}$ à $\frac{1}{5}$ d'explosif. L'ensemble est pressé en prenant garde d'éviter d'éventuelles bulles d'air. Les pastilles obtenues ont une épaisseur de l'ordre du millimètre. D. Grischkowski *et al.* ont présenté des mesures du 2,4- et 2,6-DNT mélangés au PE sous forme de pastilles en fonction de la température [15]. En effet, l'agitation thermique élargit les résonnances et diminue la précision sur les fréquences caractéristiques. Dans cet article, D. Grischkowski *et al.* ont aussi proposé des mesures d'une grande précision pour la largeur à mi hauteur des raies d'absorption (environ 10 GHz suivant la fréquence centrale) grâce à un dispositif de guide d'onde [16], [17] (ici un tube de cuivre) dans lequel est placé l'échantillon ($T = 11$ K). De la même manière, D. Grischkowski *et al.* proposent des caractérisations du RDX et du TNT dans l'article [18]. D. J. Cook *et al.* ont caractérisé des pastilles de RDX et PETN à température ambiante dans une matrice de PE [19]. W. R. Tribe *et al.* ont étudié les signatures du TNT, HMX, PETN, RDX, PE4 et SEMTEX-H [20] (25% de concentration d'explosif dans PE). W. H. Fan *et al.* proposent une étude de pastilles de RDX, PETN, TNT, SEMTEX, SX2 de concentration à 20% dans le PE et le PTFE [21], cette étude a permis de mettre en évidence l'effet la matrice hôte. Finalement, nous recensons les travaux de Y. Hu *et al.* sur des pastille pures (98%) de 2.4-DNT, TNT, RDX, HMX, $\epsilon$ et $\gamma$-HNIW [22].

Ces études nous indiquent que ces molécules possèdent des signatures THz spectrale qui pourrait permettre de les identifier. D'autres études bibliographiques existent aussi sur le sujet [23], [24]. La publication [23] synthétise les résultats obtenuent par H. Liu, H. Zhong, Y. Chen, et X.-C. Zhang, une synthèse de leurs études sur de nombreux explosifs (TNT, RDX, HMX, PETN, Tetryl, 2-amino-4.6-DNT, 4-amino-2.6-DNT, 4-Nitroluene, 1,3,5-TNB, 1,3-DNB, 1,4-DNB, 2,4-DNT, 2,6-DNT, 3,5-dinitro aniline, 2-nitro diphenyl amine) est présentée en annexe A. Le tableau 1.1 présente un résumé de notre étude bibliographique. D'autres matériaux comme le C-4 (dénomination américaine du RDX) ont fait l'objet d'études pour montrer la faisabilité d'une détection dans le courrier [7]. Il a été montré que la raie principale à 0,8 THz du RDX est présente dans les expériences de réflexion diffuse (plus proche des conditions réelles) et qu'aucune barrière n'empêche la progression de ce signal dans l'atmosphère [26]. Ce composé est très intéressant car il entre dans la composition de nombreux autres explosives (PE4 = RDX + liant, SEMTEX-H/-A = RDX + liant + PETN). Sur les figures 1.3 a) et b), on peut observer que la signature THz des explosifs simples présente des raies d'absorption qui permettent de les discriminer, ceci rend possible une identification de ces derniers par spectroscopie THz-TDS [27]. Les signatures des composants pures se retrouvent dans les spectres des explosifs composés... Certaines substances non explosives peuvent présenter des raies similaires cependant

| **Explosif** | **Matrice (%)** | **Position centrale des raies d'absorptions (THz)** | Référence |
|---|---|---|---|
| TNT | dans PTFE (20 %) | 1.61, 2.17, 3.70, 4.41, 5.52 | [21] |
| TNT | dans PE (20 %) | 1.66, 2.19, 3.70, 4.42, 5.52 | [21] |
| TNT | guide-onde en or pur | 0.877, 0.987, 1.004, 1.038, 1.1, 1.111, 1.360, 1.409 1.426, 1.778, 1.82, 2.005, 2.125, 2.295, 2.39, 2.42 2.49, 2.64, 2.72, 2.81, 2.94, 3.01, 3.09, 3.25 | [18] |
| TNT | dans PE (25 %) | 1.44, 1.91 | [20] |
| TNT | pur ($n_{moy} = 1.63$) | - | [22] |
| RDX | dans PTFE (20 %) | 0.80, 1.45, 1.50, 1.98, 2.20, 3.00 | [21] |
| RDX | dans PE (20 %) | 0.80, 1.45, 1.50, 1.98, 2.20, 2.95 | [21] |
| RDX | guide-onde en Al pur | 0.839, 0.876, 1.04, 1.276, 1.351, 1.550, 1.642 1.806, 1.964, 2.069, 2.290, 2.370, 2.524 2.603, 2.625, 2.91, 3.20, 3.32, 3.45 | [18] |
| RDX | dans PE (25 %) | 0.72, 1.26, 1.73 | [20] |
| RDX | pur ($n_{moy} = 1.67$) | 0.82, 1.06, 1.45, 1.98 | [22] |
| RDX | pur | 0.79, 1.05, 1.34, 1.44, 1.56, 1.77, 1.92 | [25] |
| PETN | dans PTFE (20 %) | 1.88, 2.65, 4.18, 5.30, 5.57 | [21] |
| PETN | dans PE (20 %) | 1.82, 2.63, 4.12, 5.20, 5.52 | [21] |
| PETN | dans PE (25 %) | 1.73, 2.51 | [20] |
| HMX | dans PE (25 %) | 1.58, 1.91, 2.21, 2.57 | [20] |
| HMX | pur ($n_{moy} = 1.74$) | 1.80, 2.48 | [22] |
| 2,4-DNT | guide-onde en cuivre pur à 11 K | 0.58, 0.62, 0.88, 1.06, 1.12, 1.22, 1.24, 1.46, 1.62, 1.65 1.70, 1.89, 1.95, 2.03, 2.22, 2.48, 2.77, 3.02, 3.46 | [15] |
| 2,4-DNT | dans PE (91,2 %) à 11K | 0.55, 0.63, 1.07, 1.20, 1.46, 1.60, 1.92 | [15] |
| 2,4-DNT | pur ($n_{moy} = 1.51$) | 1.08 | [22] |
| 2,6-DNT | guide-onde en cuivre pur à 13 Kpure | 1.18, 1.52, 1.68, 1.80, 1.83, 2.10 | [15] |
| 2,6-DNT | dans PE (84.2 %) à 12K | 1.17, 1.49, 1.62, 1.76, 1.80 | [15] |
| SEMTEX | pur | 0.80, 1.45, 1.99, 2.12, 2.78, 2.91, 3.04, 4.32, 5.33 | [21] |
| PE4 | dans PE (25 %) | 0.72, 1.29, 1.73, 1.94, 2.21, 2.48, 2.69 | [20] |
| SEMTEX-H | dans PE (25 %) | 0.72, 1.29, 1.73, 1.88, 2.15, 2.45, 2.57 | [20] |
| SX2 | pur | 0.80, 1.45, 1.97, 2.21, 2.92, 3.12, 4.11, 4.34 | [21] |
| $\epsilon$-HNIW | pur ($n_{moy} = 1.71$) | 0.99, 1.32, 1.43, 2.08, 2.51 | [22] |
| $\gamma$-HNIW | pur ($n_{moy} = 1.63$) | 1.05, 1.52, 1.67, 1.90 | [22] |

TABLE 1.1: Résultats obtenus par THz-TDS concernant les raies absorptions d'explosifs.

en analysant l'ensemble des raies sur un spectre suffisamment large, le pouvoir sélectif de la méthode est très élevée. L'interaction THz-matière offre donc une selectivité importante de matériaux chimiquement proches qui rendra les fausses alarmes rares. L'explication de

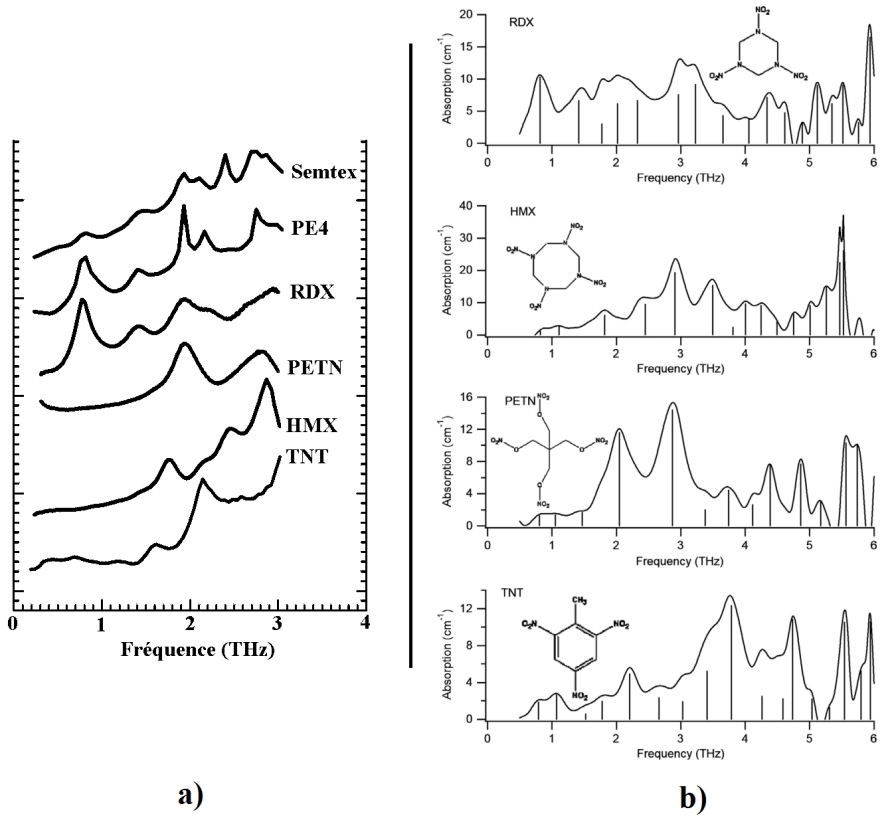



FIGURE 1.3: Figure a) Absorption d'une variété d'explosif simple (RDX, PETN, HMX, TNT) ou composé (Semtex, PE4), obtenue par Tribe *et al.* - Teraview [20]. Figure b) Absorption de la même variété d'explosif simple par une autres équipe jusqu'à 6 THz [28].

ces raies d'absorptions n'est pas chose facile. En effet, l'étude des modes propres d'une molécule ne rend compte des réponses observées pour les matériaux solides aux fréquences THz que de manière approximative. Pour valider par la simulation les spectres expérimentalement observés, il est nécessaire de connaître et de prendre en compte l'état solide des échantillons en présence. L'effet de groupe (structure cristalline) et l'existence de liaison Van Der Waals peut conduire à l'échec des simulations basées sur la molécule seule. D. G. Allis *et al.* démontrent sur le $\beta$-HMX [29], le $\alpha$-RDX [30], et le PETN [31] que l'utilisation d'une théorie "fonctionelle de la densité" (DFT) s'avère plus à même de rendre compte des résultats expérimentaux. Allis *et al.* conclut pour le HMX et le PETN que la meilleure DFT à utiliser est la VWN-BP (voir référence [32], [33] et [34] pour la méthode de simulation). L'idée de base des théories fonctionnelle de la densité est de remplacer le problème de résolution de l'équation de Schrödinger d'un système à plusieurs noyaux et plusieurs électrons (qu'il est impossible de résoudre), par une équation dont les opérateurs

(membres de droite de l'équation de Schrödinger) ne dépendent plus que de la fonction de probabilité qu'un électron se trouve dans un élément de volume donné (une fois négligée la contribution des noyaux). En effet, les opérateurs traduisant le potentiel extérieur et l'énergie cinétique peuvent s'exprimer en fonction de cette seule fonction. L'intérêt est que le problème à N corps se simplifie à un problème à un corps qui devient solvable. Toutefois cette fonction, bien que simplifiant le problème, reste inconnue. Différentes considérations théoriques, avec diverses approximations afin de l'évaluer, donnent lieu à différentes stratégies pour la résolution du problème. Allis démontre que d'une part que les méthodes de type DFT fournissent les résultats les plus intéressants (accord avec expérience), mais aussi que celle de variété VWN-BP est la meilleure (pour les explosifs étudiés).
Cette étude lui permet d'avancer que la plupart des raies simulées inférieures à 120 $cm^{-1}$ avec la molécule seule de HMX sont en réalité décalées vers les hautes fréquences par interaction inter-moléculaire et par l'effet de la structure cristalline. De plus, la plupart des raies observées sont en réalité des mouvements de la molécule entière dans la maille cristalline et non des résonances intra-moléculaires. Ceci implique que ces raies seront absentes pour un même explosif non-cristallin (sous forme dissoute par exemple).
Le contexte de l'étude étant présenté, nous allons nous intéresser ici à la technologie des systèmes THz permettant la détection.

## 1.2 Ouverture du spectre dans le régime THz

La génération d'onde électromagnétique a toujours pour origine la mise en mouvement de charges électriques. Les méthodes utilisées à d'autres fréquences (inférieures comme supérieures) sont peu adaptées pour le domaine THz. Les méthodes de génération de micro-ondes (méthodes électroniques) voient leur efficacité chuter à mesure que la fréquence augmente et de même pour les techniques de génération dans l'infrarouge où cette fois l'efficacité chute à mesure que la fréquence diminue. Malheureusement, ces deux domaines ne se recouvrent pas et il faut faire appel à des méthodes de conversion de fréquence vers le haut (pour les méthodes électroniques) ou vers le bas (pour les méthodes photoniques) qui sont encore peu efficaces (voir figure 1.4).

### 1.2.1 Génération

#### 1.2.1.1 Génération par photoconduction

L'idée est d'obtenir une variation de courant ultra bref (de l'ordre de la picoseconde) qui va générer une impulsion électromagnétique large bande. Comme aucun dispositif

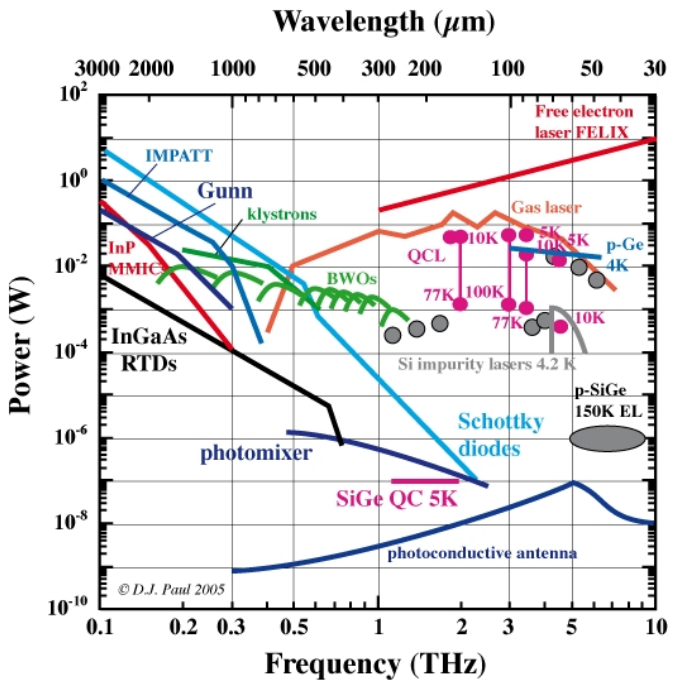



FIGURE 1.4: Efficacité de différentes sources dans la gamme THz [35].

électronique n'est capable d'une interruption de courant aussi rapide, c'est l'utilisation du phénomène de photoconduction au sein d'un matériau semi-conducteur qui permet d'obtenir ce type de transitoire de courant. Ce principe a déjà été démontré en 1981 pour la génération d'impulsion micro-ondes [36].

Une antenne photoconductrice est constituée d'un substrat semiconducteur, sur lequel

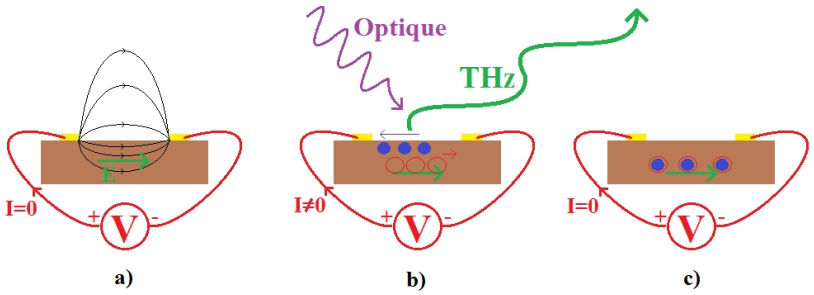



FIGURE 1.5: Schéma de principe de la génération THz dans un dispositif photoconducteur.

sont déposées deux lignes d'or conductrices. Ces lignes sont soumises à une tension électrique (typiquement quelques dizaines de Volts). Cette tension provoque l'apparition d'un champ électrique particulièrement intense (de l'ordre de 100 kV/m), notamment au niveau du dispositif qui consiste en un étranglement des lignes d'or (typiquement de 5 $\mu$m). La figure 1.5 cas a) représente la situation de l'antenne avant l'arrivée de l'impulsion laser. En éclairant le "switch" avec un laser impulsionnel, on provoque la création de photo-porteurs (uniquement si la longueur d'onde utilisée est plus énergétique que le gap du matériau

semiconducteur). Ces porteurs sont alors accélérés par le champ statique appliqué sur le semi-conducteur. Cela provoque l'apparition soudaine d'un courant (de l'ordre du nA). Comme le laser est impulsionel, cette création de photoporteurs va cesser rapidement, et la recombinaison électron-trou va alors progressivement faire disparaître ce courant. Dépendamment du semi-conducteur et de son dopage, il est possible de contrôler le temps de vie de ces photo-porteurs. On atteint des temps de vie de l'ordre de la picoseconde ou de la centaine de femtoseconde dans le substrat en LT-GaAs, ce semiconducteur est de loin le plus utilisé car il permet de conserver une bonne mobilité des porteurs, caractéristique indispensable pour une génération efficace. Ainsi une impulsion de courant est créée générant un rayonnement THz ultra-large bande [37], [38] (cf. figure 1.5 cas b) ). Après une durée de quelques temps de vie des porteurs, plus aucun courant n'est présent dans le dispositif. La situation est alors la même qu'avant l'arrivée de l'impulsion laser (cas c) de la figure 1.5). Il s'agit de la méthode la plus utilisée, car bien qu'elle offre un niveau de puissance de rayonnement faible (cf. 1.4), le rapport signal sur bruit est très bon (environ $\frac{1000}{1}$ en amplitude). De plus, le caractère large bande du rayonnement est fondamental pour la spectroscopie THz, et donc pour la reconnaissance de matériaux sensibles.
Remarque : Il est aussi possible avec la photoconduction d'obtenir un mélange d'ondes issues d'un laser bi-mode (ou de 2 lasers monomodes) dont l'écart entre l'ensemble des fréquences est situé dans le domaine THz. On obtient alors un rayonnement THz monofréquence continu. C'est la technique du battement de fréquence [39], [40].

#### 1.2.1.2 Génération par effet non-linéaire

L'excitation optique des électrons liés au sein de cristaux non centro-symétriques conduit à une oscillation de ces charges qui peut présenter un comportement non linéaire (saturation) sous fort champ optique. Ces dipôles induits vont générer à leur tour une onde électromagnétique de fréquence différente de celle incidente. Ces processus requièrent des champs excitateurs très intenses ; c'est pourquoi ils ne furent étudiés en détail qu'a partir de 1960 avec l'arrivée des premiers lasers [41]. Un de ces phénomènes est la rectification optique, qui revient à effectuer la différence entre l'ensemble des fréquences du large spectre de l'impulsion optique ultra brève. Pour un spectre optique d'une largeur à mi hauteur de 100 nm centré autour de 800 nm, la bande passante du signal rectifié est de 50 THz. Ce processus permet donc de couvrir le fossé THz, toutefois des problèmes d'efficacité se posent (rendement et accord de phase) du fait que ces processus mettent en jeu des photons d'énergies très différentes. C'est pour cette raison que les cristaux employés sont très spécifiques à ce genre d'application : les plus utilisées sont le ZnTe,

GaSe, GaP, GaAs pour les cristaux inorganiques, le DAST pour les cristaux organiques. Nous traiterons en détail dans la partie théorique ce phénomène car il est à la base de l'expérience ultra-haute fréquence de notre travail.

Remarque : Comme pour la photoconduction, il est possible de réaliser de la génération continue dans ce type de cristaux, mais le rendement est encore plus faible du fait de l'intensité crête relativement basse de l'onde exitatrice en mode continu. Ce rendement faible est en partie compensé par la possibilité d'utiliser des puissances moyennes bien supérieures que dans le cas de la photoconduction.

#### 1.2.1.3 Génération à la surface de matériau semi-conducteur

La génération THz à la surface de matériaux conducteurs [42] consiste à éclairer avec une impulsion optique intense un semi-conducteur. On crée ainsi un plasma électrons-trous libres à la surface du semi-conducteur. Les porteurs sont accélérés, généralement perpendiculairement à la surface du semi-conducteur soit par le champ natif dû à la courbure des bandes d'énergie en surface, soit par effet du gradient de la densité de charges photocréées. Dans ce cas, l'effet est exacerbé par la vitesse de déplacement des électrons supérieure à celle des trous ; il en résulte l'apparition d'une tension de surface induite par la séparation des charges (effet Dember). La génération de surface est observée dans la plupart des semi-conducteurs intrinsèques ou faiblement dopés. Un autre effet, renforçant la séparation du barycentre des charges négatives et des charges positives, est l'obtention d'une tension accélératrice statique induite par rectification optique de l'impulsion laser incidente. De nombreuses études expérimentales et théoriques ont portée sur ce type d'émetteurs. Notons les travaux de Vitalij Malevich *et al.* [43] préconisant l'utilisation de p-InAs pour une génération efficace (en comparaison dans l'ordre d'efficacité décroissante avec n-InAs, InGaAs, GaBiAs, GaAs, CiSe LT-GaAs, InSb, SI-InP, Ge). Notons par ailleurs qu'une valeur faible de gap (pour l'InAs seulement 0,36 eV ou 3,5 $\mu$m à 300 K) est un premier critère de choix pour le semi-conducteur à utiliser, ainsi les photoporteurs possèdent une plus grande énergie cinétique, permettant une diffusion rapide et donc une génération plus efficace. Cette faible valeur de gap conduit aussi à la possibilité d'utiliser des lasers de longueur d'onde plus grande que pour la photoconduction, ainsi à 1,5 $\mu$m (la longueur d'onde télécoms) la génération reste efficace.

#### 1.2.1.4 Autres moyens de génération

➢ **Laser à cascade quantique**

Les lasers à cascade quantique (QCL) apparus grâce aux avancées des nanotechnolo-

gies [44] offrent un moyen efficace de génération dans l'infrarouge moyen. L'extension spectrale vers le THz est cependant plus délicate [45], [46]. Ces lasers sont basés sur un ensemble multi-couche périodiquement constitué de couches épaisses et de couches minces. Un électron d'une couche épaisse à l'état fondamental peut franchir la barrière de potentiel constitué par la couche mince pour se trouver sur un niveau excité de la couche épaisse voisine par effet tunnel (c'est le potentiel appliqué à l'ensemble de la structure qui permet d'égaliser le niveau fondamental d'une couche au niveau excité de la couche voisine). L'électron revient alors à son niveau fondamental par une transition radiative avant de passer encore une fois (par effet tunnel) à la couche suivante (voir figure 1.6). Le challenge qui se pose en régime térahertz est que l'énergie des photons est comparable et même inférieure à l'énergie thermique à température ambiante. C'est pourquoi ces lasers doivent fonctionner à très basse température (au mieux 80 K), ce qui nécessite des systèmes cryogéniques lourds. Ils offrent toutefois un grand rendement électrique-optique pour un encombrement limité, les puissances atteintes sont de l'ordre de la dizaine de mW.

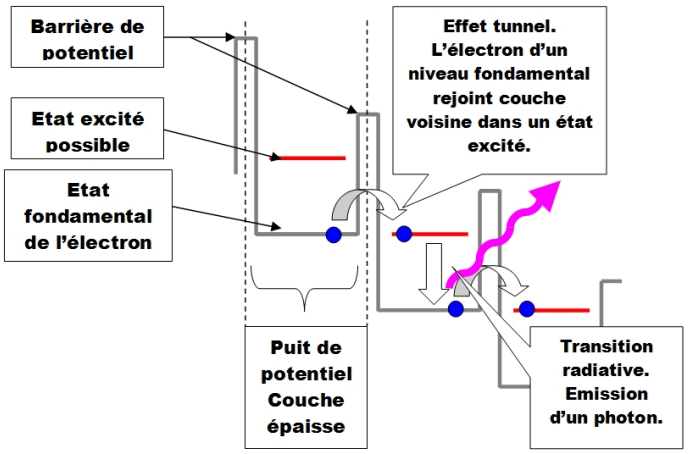



FIGURE 1.6: Schéma de principe de la génération THz dans un laser à cascade quantique.

### ➢ Lasers moléculaires

Ce type de sources cohérentes (les premières à avoir été produites) sont basées sur les transitions entre niveaux roto-vibrationnels de molécules à l'état gazeux. Pour obtenir de tels lasers en régime THz, un laser $CO_2$ est utilisé pour pomper des gaz (généralement le méthanol, le difluorométhane, l'ammoniac...) présentant un spectre de raies dans le domaine THz. Ces lasers présentent une grande pureté spectrale et des niveaux de puissance élevés (typiquement supérieur à la centaine de mW), mais ils sont encore très complexes et leur stabilité est médiocre [47].

### ➢ Le laser à électron libre

Ce type de laser est peu banal étant donné qu'il nécessite un faisceau d'électrons accéléré dans un synchrotron. Sur le parcours des électrons, on trouve des champs magnétiques transverses dont la polarisation est alternativement inversée. La force de Laplace s'exerçant sur les électrons impose à ces derniers une trajectoire sinusoïdale générant une onde électromagnétique cohérente monofréquence. En modulant la vitesse des électrons dans l'accélérateur, il est possible de couvrir un domaine de fréquence s'étalant des micro-ondes aux rayons X moux avec des puissances générées intenses (la centaine de W est atteinte de 0,1 à 3 THz [48]). Bien entendu, ce type de dispositif requiert des installations telles qu'on ne peut pas les envisager pour des applications industrielles ou grand public [49].

➢ **Méthodes électroniques**

Les composants électroniques permettent aussi de générer des signaux THz. Un des plus prometteurs est le transistor à effet plasma [50] [51], qui est un FET dans lequel le canal nanométrique est le siège d'oscillations du type plasma du gaz 2D d'électrons injectés. Le démarrage de ces oscillations résulte du comportement non linéaire de la dynamique des électrons dans le canal. Ces oscillations peuvent être pilotées par la tension de grille. Actuellement des puissances en continu de 1-2 $\mu$W sont mesurées à 1,5 THz à température ambiante [52]. Notons aussi les travaux portant sur la réalisation de micro-klystrons qui fonctionnent déjà à des fréquences de quelques centaines de GHz, en délivrant des puissances de l'ordre du watt [53].

La conversion de fréquence vers le haut des signaux électroniques peut être réalisée grâce à des multiplicateurs de fréquence (par deux et par trois) à base de diodes Schottky, qui atteignent maintenant quelques dizaines de $\mu$W jusqu'à 2 THz. Ces composants de haute technologie ont bénéficié d'une optimisation poussée. Ils permettent de construire des systèmes relativement compacts. Ils souffrent de deux problèmes, la difficulté en fourniture (2-3 fournisseurs), et la chute de puissance vers les hautes fréquences (un ordre de grandeur est perdu à chaque étage de multiplication) [54].

Le tableau 1.2 synthétise les performances des différentes sources dont nous avons parlé.

### 1.2.2 Détection

➢ **Détection par photoconduction**

Cette méthode de détection est très proche du principe de génération. Ici, il ne s'agit plus de créer un transitoire de courant pour générer une onde THz, mais d'utiliser l'impulsion THz pour accélérer les photo-porteurs crées par une impulsion laser, et ainsi créer un courant proportionnel au champ THz. Cette méthode permet la mesure temporelle du champ

| Type | Mise en œuvre | Coherence | Bande Passante | Puissance |
|---|---|---|---|---|
| Photoconduction | Simple | Oui | Large | $\sim \mu$W |
| Rectification | Très simple | Oui | Large | $\sim \mu$W |
| A la surface des SC | Simple | Oui | Large | $\sim \mu$W |
| Laser cascade quantique | Complexe | Oui | Etroite | $\sim 10\ m$W |
| Laser moléculaire | Complexe | Oui | Etroite | $> 10\ m$W |
| Laser à électron libre | Très complexe | Oui | Etroite | » W |

TABLE 1.2: Récapitulatif des différentes sources citées.

électrique de l'onde THz, et d'avoir accés grâce à une seule mesure à un spectre très large (plusieurs THz). Dans la session suivante nous aborderons la technique d'échantillonage en temps équivalent qui permet l'aquisition dans le domaine temporel d'impulsion THz.

**➢ Détection par effet Pockels**

L'effet Pockels (phénomène dual de la rectification optique) consiste en la modification de l'ellipsoïde des indices d'un cristal non centro-symétrique en présence d'un champ électrique appliqué. Ici c'est l'onde THz qui va induire cette anisotropie, l'état de polarisation d'un faisceau (optique) de sonde est alors modifié par son passage dans le cristal. En transformant cette modulation de polarisation en modulation de puissance, il est possible de remonter au champ électrique THz en présence. De la même manière que pour la détection par photoconduction, c'est une mesure en temps équivalent qui permettra de reconstruire l'impulsion THz. Cette méthode présente donc l'avantage de pouvoir être utilisée en spectroscopie THz-TDS. C'est pourquoi ces deux principes (la photo-conduction et l'optique non linéaire) sont à la base du travail effectué durant cette thèse. Signalons que les méthodes de l'optique non-linéaire sont très large bande, mais la sensibilité est d'autant plus mauvaise que la bande passante est large comme nous le verrons dans le prochain chapitre.

**➢ Détection par bolomètres**

Ce type de détection (dual à la génération par corps noir) consiste en la mesure de l'échauffement d'un matériau soumis au rayonnement THz. Il permet donc une mesure de la puissance de l'onde THz (et non plus du champ). Ce sont des systèmes incohérents mais fonctionnant sur une large bande spectrale et atteignant des sensibilités ultimes aux températures cryogéniques. Ce type de détecteur est peu adapté à la spectroscopie. Notamment le caractère incohérent de la technique fait perdre l'information spectrale de l'échantillon étudié sauf à construire des systèmes de mesures interférométriques plus complexes. On trouve aujourd'hui leur utilisation principale dans les applications d'imagerie.

➢ **Détecteur matriciel**

La détection de signaux THz s'oriente de plus en plus vers des détecteurs matriciels [55] permettant d'obtenir directement une image THz. Plusieurs technologies sont en compétition, que l'on peut séparer suivant leur fonctionnement à température ambiante ou cryogéniques. Ces détecteurs sont généralement caractérisés par leur bruit équivalent (NEP en W/ Hz). Parmi les détecteurs cryogéniques, les bolomètres à électrons chauds [56] [57] (on casse les paires de Cooper au sein d'un supraconducteur, conduisant ainsi à une modification de la résistance du dispositif) sont très avancés et sont déjà utilisés dans les applications spatiales (NEP $10^{-15}$ W/ Hz). Les détecteurs à boîte quantique déposée sur un transistor à électron unique sont extrêmement performants (NEP $10^{-19}$ W/ Hz), mais très vite saturés et encore au stade de la recherche amont dans quelques laboratoires [58]. Les détecteurs à température ambiante comprennent les micro-bolomètres (NEP $10^{-11}$ W/ Hz) [59] et les transistors à effet plasma (NEP $10^{-9}$ W/ Hz) [60] [61] [62]. Ces derniers reposent sur le même principe qu'en émission, mais le signal THz incident vient maintenant polariser les lignes d'accès du transistor et il est redressé par la nonlinéarité du canal du transistor. Les micro-bolomètres sont des éléments MEMS de haute technologie, le flux incident venant échauffer une membrane sur laquelle un élément thermo-résistif permet de mesurer la température.

Le tableau 1.3 recapitule les caractéristiques essentielles des détecteurs ici cités.

| **Type** | **Mise en œuvre** | **Coherence** | **Bande Passante** | **Sensibilité** | **Température** |
|---|---|---|---|---|---|
| Photodétection | Facile | Oui | Large | Bonne | Ambiante |
| Pockels | Facile | Oui | Large | Médiocre | Ambiante |
| Bolomètre cryogénique | Difficile | Non | Large | Très Bonne | Cryogénique |
| Bolomètre à T ambiante | Difficile | Non | Réduite | Très Bonne | Ambiante |

TABLE 1.3: Récapitulatif des différents détecteurs cités.

## 1.3 La spectroscopie THz dans le domaine temporel

La spectroscopie THz dans le domaine (THz-TDS) est une technique reposant sur une expérience permettant l'échantillonnage temporel d'une impulsion THz [63]. Cela est impossible à réaliser en temps réel avec les technologies actuelles. Nous aborderons donc ici le principe de l'échantillonnage en temps équivalent, technique nous permettant l'acquisition temporelle. Puis nous aborderons l'aspect spectroscopique afin d'obtenir les caractéristiques optiques THz (absorption et indice) d'un matériau mesuré, et nous présenterons un état de l'art des expériences THz-TDS en terme de couverture spectrale.

### 1.3.1 Echantillonnage d'une impulsion THz

Pour échantillonner une impulsion THz il est nécessaire d'avoir un détecteur permettant la mesure du champ pendant une durée courte après le déclenchement. C'est typiquement ce que nous offrent les méthodes de détection par photoconduction ou par l'effet Pockels. Une impulsion THz est émise (par rectification optique, par photoconduction ou par la génération à la surface de semi-conducteur) en direction du détecteur. Une partie de l'impulsion laser servant à la génération est prélevée (à l'aide d'une lame séparatrice) afin de déclencher la détection de façon synchrone. Si la distance optique à parcourir pour le déclenchement du détecteur est égal à la distance optique parcourue par l'onde térahertz pour arriver au détecteur, il y a superposition entre l'instant de détection et la présence du champ dans le détecteur. Nous mesurons un courant moyen proportionnel à la valeur du champ pour l'instant du recouvrement. La mesure de ce courant moyen est réalisée à l'aide d'une détection synchrone permettant de s'affranchir d'une grande partie du bruit et d'amplifier le signal. Une ligne à retard (coin de cube monté sur une platine de translation motorisée) placée sur le parcours optique de la voie de détection permet de retarder ou avancer l'instant du recouvrement et ainsi reconstruire l'amplitude du champ électrique de l'impulsion THz totale (voir figure 1.7). Chaque point de l'impulsion reconstruite est issu du moyennage de plusieurs millions d'impulsions à cet instant. Ceci demande une très bonne stabilité du laser afin que l'impulsion THz reste identique à elle même sur les quelques minutes que peut prendre la reconstruction de l'impulsion dans son ensemble.

### 1.3.2 Caractérisation des matériaux

Nous allons présenter la méthode permettant d'obtenir les caractéristiques optiques des échantillons placés sur le chemin de l'onde THz. La première étape consiste à mesurer un signal de référence (sans échantillon), puis à mesurer le signal avec un échantillon placé dans le faisceau THz en faisant parcourir à la ligne à retard le même parcours qu'a l'enregistrement de la référence (conservation de l'origine des temps). On peut observer pour le signal avec échantillon une atténuation, un élargissement temporel de l'impulsion et un décalage temporel par rapport à l'impulsion de référence (voir figure 1.8). De plus, on observe aussi des rebonds sur le signal échantillon compte tenu de l'effet Fabry-Pérot présent dans la cavité constituée par l'échantillon à faces parallèles. En réalisant la transformée de Fourier discrète des 2 signaux temporels, nous obtenons les spectres de référence et en présence de l'échantillon. Le rapport du spectre avec échantillon sur le spectre de référence fournit la fonction de transfert qui est une caractéristique propre de l'échantillon. Au premier ordre, nous pouvons dire que le déphasage n'est conditionné

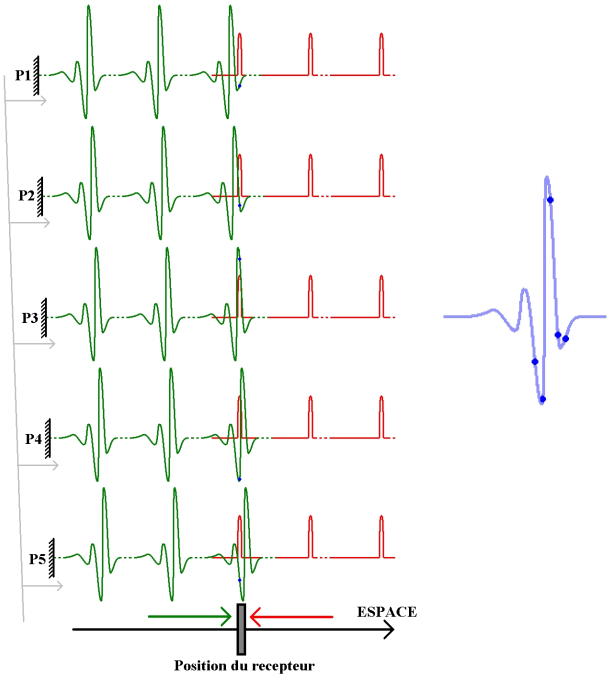



FIGURE 1.7: Principe de fonctionnement de l'échantillonnage d'une impulsion THz. Sont représentés 5 instants différents pour lesquelles on a recouvrement du champ THz et de l'impulsion optique sur le détecteur correspondant à 5 positions différentes de la ligne à retard. L'impulsion THz est représentée en vert, l'impulsion optique en rouge.

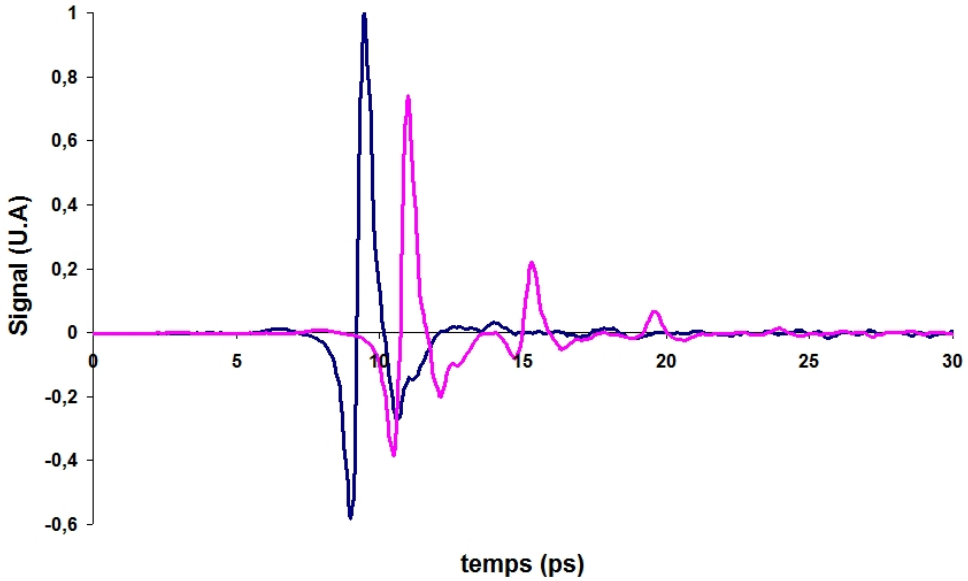



FIGURE 1.8: Signal temporel de la référence (en bleu) et de l'échantillon (en rose). Il s'agit ici d'un échantillon de 200 $\mu$m de ZnTe.

que par l'indice de réfraction, ce qui permet ensuite de retrouver l'absorption à partir du module (une fois les réflections de Fresnel prise en compte dans la perte de signal). Toutefois cela n'est qu'une approximation, et la prise en compte de l'effet Fabry-Pérot (échos multiples) ainsi que du déphasage de Fresnel impose un formalisme plus complexe afin de réaliser une extraction exacte des caractéristiques réelles. Le formalisme extraction utilisé ici est l'algorithme proposé par L. Duvillaret *et al.* [64]. Il présente l'avantage d'être rapide, efficace, mais surtout de converger dans tous les cas pratiques, notamment dans le cas d'échantillons minces (où les rebonds se confondent dans le signal temporel pouvant conduire à une divergence de certaines méthodes d'extraction). Le grand intérêt de la méthode de spectroscopie THz-TDS est qu'elle permet de déterminer l'indice et l'absorption (en supposant la diffusion et la diffraction nulles) pour un échantillon à faces parallèles d'épaisseur connue sur une bande fréquentielle très large (voir figure 1.9). Avec le banc de spectroscopie utilisé pour les caractérisations de nos échantillons (voir [65] et [66] pour une decription complète de l'expérience) la méthode conduit à une précision sur la mesure de $\Delta\alpha[cm^{-1}].L[mm] = 0,1 - 1$ et $\Delta n.L[mm] = 0,002 - 0,005$ suivant l'épaisseur $L$ de l'échantillon ; les valeurs données ne tiennent pas compte d'éventuelles incertitudes sur l'épaisseur, ni des effets dûs à la possible divergence du faisceau. Ces relations se vérifient pour des échantillons de 10 $\mu$m à 1 cm sur une gamme de typiquement 150 GHz à 1 THz en fonction des réglages et de l'échantillon (là où la dynamique est supérieure à 50 dB), aux fréquences supérieures une plus grande imprecision est constatée.

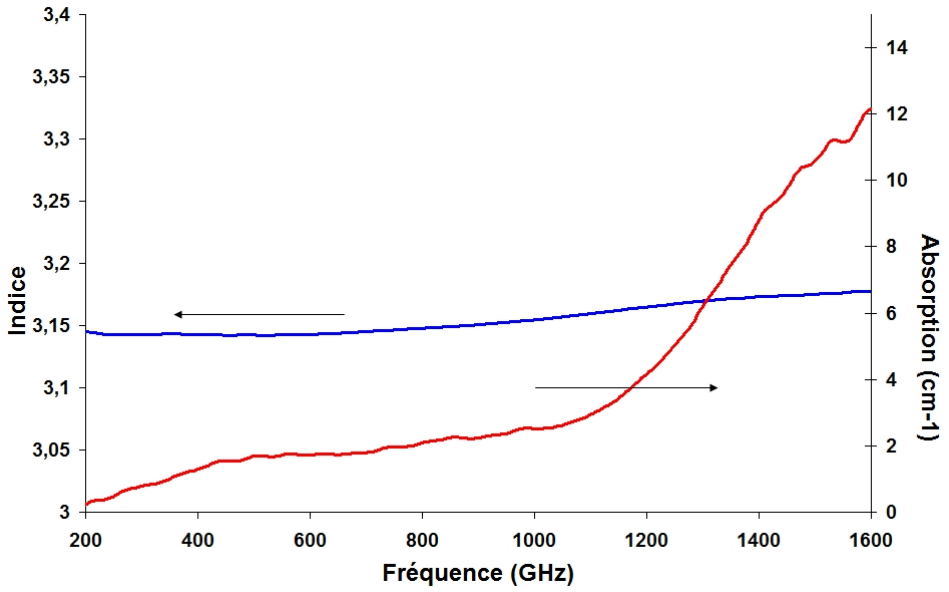



FIGURE 1.9: Indice de réfraction et absorption du ZnTe, obtenus par THz-TDS.

## 1.4 Etat de l'art des expériences de THz-TDS très large bande (≥20 THz)

Cette étude nous sera utile pour mettre en avant le choix de l'optique non-linéaire pour le banc de spectroscopie ultra-large bande que nous avons monté au laboratoire. Le tableau 1.4 résume l'état de l'art se rapportant, à ce jour, à la génération et à la détection des ondes THz ultra haute fréquence (>20 THz). Il faut noter que ces configurations expérimentales ne sont pas utilisées pour la caractérisation de matériaux, mais plutôt dans le but de disposer d'impulsions électriques ultrabrèves pour l'étude de phénomènes d'excitation et de relaxation eux-même ultrabrefs au sein de la matière. Ce tableau ne se réfère qu'aux expériences impulsionnelles, où une impulsion laser très courte est redressée pour délivrer une impulsion électromagnétique de durée sub-picoseconde et dont le spectre atteint plusieurs dizaines de THz. La fréquence maximum générée est indiquée, ainsi que la durée des impulsions laser et, si disponible, la puissance moyenne du laser. Cette

| Référence | Fréquence max (THz) | Caractéristiques du laser | Remarques |
|---|---|---|---|
| [67] | 35 | 12 fs, 300 mW sur émetteur | Génération face arrière photoswitch LT-GaAs. Détection ZnTe 20$\mu$m 110 sur substrat ZnTe 1 mm 100. |
| [68] | >30 | 20 fs | Emission 12 $\mu$m ZnTe 110 ou 100 $\mu$m GaSe. Détection LT-GaAs photoswitch L=30, D=5, W=10 $\mu$m |
| [69] | 25 | 15 fs, 110 mW sur émetteur | Emetteur InP 100 en réflection. Détection LT-GaAs photoswitch L=30, W=5 $\mu$m, temps de vie 1,4 ps (lentille Si 13 mm). |
| [70] | 170 | 6 fs, 200 mW sur émetteur et détecteur | DAST 400 $\mu$m Détection LT-GaAs photoswitch L=30, W=5 $\mu$m |
| [71] | 30-35 | 12 fs | ZnTe 110 30 et 27 $\mu$m (émetteur et détecteur) |
| [72] | 10-50 | 10 fs | Emission GaSe 90 $\mu$m Détection ZnTe 10.3 $\mu$m 110 sur 200 $\mu$m de ZnTe 100 |
| [73] | 37 | 12 fs, 350 mW sur émetteur | Emission GaAs 450 $\mu$m Détection 30 $\mu$m ZnTe 110 |
| [74] | 50 | 10 fs, 350 mW sur émetteur | Emission GaSe 30 $\mu$m Détection 10 $\mu$m ZnTe (même que [72]) |
| [75] | 33 | 23 fs, 380 mW sur émetteur, 20 mW sur détecteur | Emission GaAs 380 $\mu$m 110 réflection sur cristal organique |
| [76] | 33 | 12 fs | Emission GaAs 450 $\mu$m 110 Détection ZnTe 30 $\mu$m 110 |

TABLE 1.4: Etat de l'art de la génération-détection THz haute-fréquence.

étude bibliographique démontre que deux techniques sont aujourd'hui utilisées pour la génération et la détection d'ondes THz dans le domaine temporel (impulsionnel) visant des applications très large bande :

- la photoconduction (paragraphe 1.2.1.1) où la bande passante est inversement proportionnelle au temps de vie des porteurs dans le matériau semi-conducteur (ou à leur temps de transit dans la zone éclairée).
- la génération par redressement optique (paragraphe 1.2.1.2) dans un matériau non linéaire (la détection étant quant-à-elle assurée par échantillonnage électro-optique).

Les techniques électro-optiques sont *a priori* moins limitées en fréquence, car les effets non linéaires mis en jeu sont pratiquement instantanés. Les références [71]- [76] présentent les résultats d'expérience de spectroscopie THz-TDS utilisant uniquement des cristaux non linéaires aussi bien en émission qu'en détection. On constate dans la littérature une très forte utilisation du cristal de ZnTe aussi bien en émission qu'en détection, qui reflète tout à fait la situation dans les laboratoires travaillant avec des cristaux, et cela pour plusieurs raisons. La première raison vient du fait que ce cristal présente l'un des meilleurs accord de phase entre vitesse de groupe optique et fréquence THz. Cela permet une efficacité élevée du processus non linéaire (toutefois ce cristal possède un phonon faisant perdre cet avantage aux alentours de 5.31 THz ). Deuxièmement la valeur de ses coefficients non-linéaires est dans la moyenne des cristaux inorganiques. Avantage, mais non des moindres, ce cristal possède une structure cubique qui lui confère une isotropie et une matrice de Pockels rendant son utilisation (optimisation de son orientation) des plus simples. De plus, son absorption dans le domaine THz est l'une des plus faibles. Finalement, bien qu'aujourd'hui les matériaux organiques semblent en mesure d'offrir des cristaux possédant à la fois un bon accord de phase et une grande non-linéarité, leur utilisation sur une échelle de temps élevée s'avère encore difficile (dégradation des qualités du cristal aux cours du temps). La référence [77] rappelle les caractéristiques THz générales de quelques cristaux communément utilisées (ZnTe, GaAs, GaP, DAST, CdTe). On y voit clairement le ZnTe se détacher. Toutefois, nous faisons remarquer que la dispersion de la vitesse de groupe (DVG) (domaine optique) dans le ZnTe est assez mauvaise rendant l'accord de phase (poussé à l'ordre 2) moins bon que ce que l'on pourrait attendre à l'ordre 1 de ce cristal. Néanmoins, ce cristal reste le cristal le plus utilisé pour la génération-détection d'onde THz, et notre choix c'est donc naturellement porté vers ce dernier.

Ces techniques, pour s'étendre à un domaine spectral étendu, doivent recourir à des cristaux très fins afin de s'affranchir au maximum du désaccord de phase, et cela au détriment de la longueur d'interaction et donc de la sensibilité. Dans le cas du ZnTe, on voit clairement qu'une épaisseur de typiquement la trentaine de micromètre est nécessaire pour couvrir le domaine spectral que nous visons.

A noter que la majorité des expériences de spectroscopie utilisant des cristaux non linéaires

sont des configurations en transmission où ces ondes optique et terahertz sont colinéaires. Cela implique pour la détection de placer dans le faisceau THz un miroir optique transparent au THz afin de les superposer. Pour ce faire, plusieurs solutions existent : on peut disposer une lame de silicium haute résistivité, ou un film pelliculaire diélectrique qui vont peu modifier l'onde THz et permettre de superposer l'onde optique. La lame de silicium introduit toutefois une forte réflection qui fait perdre une partie de puissance THz, et le film pelliculaire bien qu'étant quasiment "invisible" pour l'onde THz aura tendance à être sujet aux vibrations et sera source de bruit. D'autres disposent un petit prisme dans le faisceau térahertz afin de réfléchir l'onde optique, ou alors utilise des miroirs THz percés, cela ayant pour effet d'écranter légèrement le signal THz. Les solutions du miroir percé ou de la lame de siliciums sont les plus fréquemment retrouvées dans la littérature. Finalement, comme nous le verrons par la suite, une possibilité est de sonder le cristal de détection sous une légère incidence. Cela permet donc de contourner le problème.
Le tableau 1.4 démontre aussi la possibilité d'utiliser des antennes photoconductrices aussi bien en émission qu'en détection [67]- [70]. En effet, bien que possédant un temps de vie de l'ordre de la picoseconde, il est aujourd'hui bien compris ( [78] et [79]) qu'il est possible de générer mais aussi de détecter des signaux de fréquence plus élevée. Cela vient du front montant très raide dans l'apparition des photo-porteurs, qui dote le spectre généré de composantes à très hautes fréquences, si le photoswitch est éclairé avec une impulsion optique suffisamment brève. D'ailleurs cette solution est déjà actuellement en oeuvre dans plusieurs laboratoires, notamment le NCIT au Japon qui dispose d'un spectromètre dépassant les 10 THz avec des antennes de LT-GaAs éclairés en réflexion pour l'émission et pour la détection. On constate que la plupart des expériences très hautes fréquences utilisent des configurations géométriques permettant à l'onde THz de ne pas traverser le substrat de GaAs afin de ne pas souffrir de la résonance phononique. Certaines expériences [69], dépassant les 20 THz, disposent une lentille de silicium à haute résistivité (ici de 13 mm de diamètre) pour focaliser sur l'antenne détectrice. Cela suggère que le silicium haute résistivité n'absorbe pas non plus les hautes fréquence THz, et que son utilisation ne pose pas de problème (absorption faible). On peut noter que les antennes photoconductrices utilisées pour les très hautes fréquences présentent toujours un gap assez petit (typiquement 5 $\mu$m) et la distance entre lignes d'or est elle aussi petite, de l'ordre de 30 $\mu$m. Ces valeurs sont mieux comprises grâce à l'étude récente de Miyamaru et al. [80] sur la dépendance de la géométrie de l'antenne avec le spectre généré.
Nous avons donc aussi prospecté cette voie en vue de livrer un banc de spectroscopie très haute fréquence (voir le chapitre 3).

# Chapitre 2

# Génération et détection de signaux THz grâce à l'optique non-linéaire

Nous avons précédemment introduit les méthodes de génération et de détection, en insistant sur 2 méthodes : la photoconduction ultra-rapide et l'optique non linéaire. Ce sont 2 méthodes très employées capables de délivrer une impulsion large bande cohérente permettant de réaliser des expériences de spectroscopie THz-TDS, et ainsi de caractériser rigoureusement la matière, notamment les substances relatives à la sécurité. Nous décrirons ici les méthodes d'optique non linéaire qui permettent d'obtenir des signaux très large bande. En guise d'introduction, nous présenterons l'optique non-linéaire en général, puis nous nous intéresserons au formalisme mathématique associé. Ce qui nous permettra d'aborder par la suite le redressement optique et l'effet Pockels, qui sont les phénomènes utilisés dans notre banc de caractérisation ultra-large bande.

## 2.1 Introduction à l'optique non-linéaire

Avant l'avènement du laser et la possibilité de travailler à haute énergie, la plupart des propriétés optiques des matériaux étaient considérées comme linéaires à l'exception des effets Kerr et Pockels observés avec des champs appliqués statiques. Cette linéarité présupposée a des conséquences directes sur la réaction de la matière à une excitation optique [81] :

- Des caractéristiques comme l'absorption ou l'indice de réfraction sont indépendantes de l'intensité lumineuse qui illumine le matériau considéré.
- Le principe de superposition dans les systèmes optiques est applicable. C'est à dire que la réponse d'un système à une excitation décomposable en somme de signaux, est identique à la somme des réponses de chaque terme composant le signal d'entrée.
- La fréquence de la lumière n'est pas modifiée par le passage dans un matériau.
- La lumière n'interagit pas indirectement avec la lumière, deux faisceaux dans la

même région d'un matériau linéaire n'auront pas d'effet l'un sur l'autre. La lumière ne peut pas commander la lumière.

Cette réponse linéaire classiquement observée avant 1960, s'explique avec le modèle de l'oscillateur harmonique pour décrire l'atome (modèle de Lorentz). On peut montrer que ce modèle n'est valable que lorsque l'amplitude des champs optiques $E_{opt}$ est très inférieure au champ liant l'électron au noyau $E_{at}$ [82]. Calculons le champ appliqué sur l'électron dans le cas de l'atome de Bohr :

$$E_{at} = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r^2} \approx 5.10^{11}\mathrm{V/m}$$

En comparaison, on peut calculer le champ électrique de la lumière du soleil à la surface de la terre :

$$D = \frac{1}{2} \times \frac{E_S^2}{Z_0}, \text{ avec } Z_0 \text{ l'impédance du vide.}$$

$$E_S = \sqrt{2DZ_0} \approx 800\mathrm{V/m}$$

La densité de puissance optique nécessaire pour obtenir des champs égaux à ceux résidant dans l'atome est égale à $10^{19}\mathrm{W/m}^2$. On comprend donc pourquoi l'optique non linéaire s'est particulièrement développée après la découverte des lasers. Néanmoins, certains effets non-linéaires furent observés avant, comme l'effet Kerr (1875), l'effet Pockels (1893), l'effet Raman (1928). Les conséquences d'une réponse non-linéaire de la matière sont :

- L'indice de réfraction et donc la vitesse de la lumière dans le matériaux deviennent fonction de la puissance.
- Le principe de superposition n'est plus valable.
- La fréquence de la lumière peut être modifiée à la traversée d'un matériau.
- La lumière peut commander la lumière (via la matière).

Comme nous l'avons précédemment dit, le modèle utilisé en optique linéaire est celui de l'oscillateur harmonique, issu du modèle de Lorentz. En appelant $\overrightarrow{r}$ la distance de l'électron autour de sa position d'équilibre, on a comme réponse à un champ d'excitation $\overrightarrow{E}$ :

$$\frac{\mathrm{d}^2\overrightarrow{r}}{\mathrm{d}t^2} + 2\gamma\frac{\mathrm{d}\overrightarrow{r}}{\mathrm{d}t} + \kappa\overrightarrow{r} = \frac{-e\overrightarrow{E}}{m}$$

Où le terme en $\gamma$ traduit les pertes et $\kappa$ est la constante de rappel du "ressort".

Dans le cas de l'optique non-linéaire, l'équation différentielle présente des termes anharmoniques supplémentaires. Effectivement, pour des champs $E$ élevés, la force de rappel ne peut plus être considérée comme dépendante linéairement de $\overrightarrow{r}$. Ce peut être une fonction quelconque, cependant elle peut toujours être développée sous forme de série des puissances de $\overrightarrow{r}$. En se limitant au premier terme du développement, la dynamique de

l'électron devient :

$$\frac{\mathrm{d}^2\overrightarrow{r}}{\mathrm{d}t^2} + 2\gamma\frac{\mathrm{d}\overrightarrow{r}}{\mathrm{d}t} + \kappa\overrightarrow{r} - \zeta\overrightarrow{r}^2 = \frac{-e\overrightarrow{E}}{m}$$

La matière se polarise sous l'effet d'un champ électrique. On définit le dipole élémentaire $\overrightarrow{p} = -e\overrightarrow{r}$ pour chaque atome ou molécule. La polarisation "macroscopique" de la matière dépend de l'ensemble de ces dipoles $\overrightarrow{P} = N\overrightarrow{p}$, où $N$ est la densité volumique d'atomes. La résolution de l'équation différentielle ci-dessus nous oblige à considérer une solution du type :

$$\overrightarrow{r}(t) = \overrightarrow{r}_0 + \overrightarrow{r}_1 \exp -j\omega t + \overrightarrow{r}_2 \exp -2j\omega t + C.C$$

Le terme $-\zeta\overrightarrow{r}^2$ fait apparaître deux termes oscillants, l'un à fréquence nulle, et l'autre à fréquence double. La connaissance de $\overrightarrow{r(t)}$ détermine la relation liant $\overrightarrow{P}$ et $\overrightarrow{E}$. On appelle susceptibilité $\overleftrightarrow{\chi}$ le tenseur permettant le passage de l'un à l'autre. Effectivement, dans l'espace de Fourier :

$$\overrightarrow{D} = \epsilon_0\overrightarrow{E} + \overrightarrow{P}$$

$$\overrightarrow{D} = \epsilon_0(1 + \overleftrightarrow{\chi})\overrightarrow{E}$$

Avec,

$$\overrightarrow{P} = \epsilon_0\overleftrightarrow{\chi}\overrightarrow{E}$$

Par commodité, on écrit $\overrightarrow{P} = \overrightarrow{P}_{lin} + \overrightarrow{P}_{non-lin}$, afin de séparer les effets linéaires et les effets non-linéaires. $\overleftrightarrow{\chi}$ peut aussi être séparé en $\overleftrightarrow{\chi_1}$ pour la partie réponse linéaire, en $\overleftrightarrow{\chi_2}$ pour les contributions non-linéaires d'ordre 2 (doublement, rectification...), et ainsi de suite... En général, le développement jusqu'à $\overleftrightarrow{\chi_3}$ est suffisant pour prendre en compte tous les effets, les autres effets non-linéaires étant en effet négligeables.
Nous allons aborder à présent le formalisme utilisé pour rendre compte de l'optique non-linéaire.

### 2.1.1 Ecriture des champs

Dans le cas général, nous avons pour une onde plane l'expression suivante :

$$\overrightarrow{\mathbb{E}(w_l)} = \sum_{p=1}^{3} \frac{B_{l_p}}{2}\left(e^{i(w_l t - \overrightarrow{k_l}.\overrightarrow{r} + \varphi_l + \varphi_{l_p})} + C.C\right)\overrightarrow{e_p} \tag{2.1}$$

Avec :

- $\overrightarrow{r}$ vecteur position.
- $t$ temps.
- $\overrightarrow{\mathbb{E}(w_l)}$ champ réel oscillant à la pulsation $w_l$.

- $B_{l_p}$ amplitude de la polarisation de direction $\overrightarrow{e_p}$ de la composante fréquentielle à $w_l$.
- $\overrightarrow{k_l}$ vecteur d'onde.
- $\varphi_l$ phase à l'origine, en général égale à zéro. Dans le cas d'une impulsion optique, cette phase peut être intéressante car elle permet de gérer la dispersion de l'impulsion.
- $\varphi_{l_p}$ phase de chaque composante de polarisation pour l'onde oscillant à $w_l$. Elle permet de gérer avec $B_{l_p}$ l'état de polarisation de l'onde.

On peut réécrire 2.1 sous la forme synthétique :

$$\overrightarrow{\mathbb{E}(w_l)} = \sum_{p=1}^{3} \left(E_{l_p}(\overrightarrow{r})e^{iw_l t} + C.C\right)\overrightarrow{e_p} \tag{2.2}$$

Avec :

- $E_{l_p}(\overrightarrow{r}) = A_{l_p}e^{-i\overrightarrow{k_l}.\overrightarrow{r}}$
- $A_{l_p} = \frac{B_{l_p}}{2}e^{i(\varphi_l+\varphi_{l_p})}$

### 2.1.2 Equation de propagation non linéaire

Les équations de Maxwell s'écrivent (dans le système MKSA) :

Hyp : Le matériau est considéré comme étant un diélectrique parfait c'est à dire sans charge libre, ni courant.

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{\mathbb{D}} = 0 \quad \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}} = -\frac{\partial \overrightarrow{\mathbb{B}}}{\partial t}$$
$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{\mathbb{B}} = 0 \quad \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\mathbb{H}} = \frac{\partial \overrightarrow{\mathbb{D}}}{\partial t}$$

L'induction électrique s'exprime comme :

$$\overrightarrow{\mathbb{D}} = \epsilon_0 \overrightarrow{\mathbb{E}} + \overrightarrow{\mathbb{P}}$$

$$\overrightarrow{\mathbb{D}} = \epsilon_0 \overrightarrow{\mathbb{E}} + \overrightarrow{\mathbb{P}_L} + \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}}$$
$$\overrightarrow{\mathbb{D}} = \epsilon_0(1 + \overleftrightarrow{\chi^{(1)}})\overrightarrow{\mathbb{E}} + \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}}$$

$$\overrightarrow{\mathbb{D}} = \epsilon_0 \overleftrightarrow{\epsilon_r^{(1)}}\overrightarrow{\mathbb{E}} + \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}} \tag{2.3}$$

Avec pour la polarisation non linéaire (ici les vecteurs sont écrits dans la base des axes cristallographiques) :

$$\overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}} = \epsilon_0 \overleftrightarrow{\chi^{(2)}}\overrightarrow{\mathbb{E}}\overrightarrow{\mathbb{E}} + \epsilon_0 \overleftrightarrow{\chi^{(3)}}\overrightarrow{\mathbb{E}}\overrightarrow{\mathbb{E}}\overrightarrow{\mathbb{E}} + \dots \tag{2.4}$$

Hyp : On se limitera au dévellopement au deuxième ordre pour la polarisation non linéaire. On suppose aussi que le matériau n'est pas magnétique

$$\overrightarrow{\mathbb{B}} = \mu_0 \overrightarrow{\mathbb{H}} \tag{2.5}$$

Jusqu'à présent, nous avons écrit les expressions dans la base des axes cristallographiques. Désirant exprimer les champs dans la base du laboratoire, il nous faut simplement effectuer une rotation des tenseurs $\overleftrightarrow{\epsilon_r^{(1)}}$, $\overleftrightarrow{\chi^{(2)}}$, $\overleftrightarrow{\mu_r}$. Nous appelons $A$ la matrice de passage du repère du cristal au repère du laboratoire. Les coefficients $a_{i,j}$ de cette matrice sont donc les cosinus des angles entre l'axe du cristal $i$ et l'axe du laboratoire $j$.

Hyp : Pour simplifier encore l'écriture, on suppose que le matériau est isotrope.

C'est le cas pratique que nous rencontrerons le plus souvent, puisque les cristaux que nous employons (ZnTe, GaAs,...) sont cubiques. Sous ces hypothèses, les tenseurs $\overleftrightarrow{\epsilon_r^{(1)}}$, $\overleftrightarrow{\mu_r}$ sont diagonaux et peuvent même être remplacés par des scalaires, qui sont invariants par rotation, seule la susceptibilité non linéaire $\overleftrightarrow{\chi^{(2)}}$ prendra une autre forme dans la base du laboratoire [83]. Nous l'appellerons $\aleph^{(2)}_{i,j,k}$ :

$$\aleph^{(2)}_{i,j,k} = \sum_{I,J,K} a_{i,I} a_{j,J} a_{k,K} \chi^{(2)}_{I,J,K}$$

Les équations 2.3, 2.4, 2.5 prennent maintenant la forme :

$$\begin{cases} \overrightarrow{\mathbb{D}} = \epsilon_0 \epsilon_r^{(1)} \overrightarrow{\mathbb{E}} + \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}} \\ \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}} = \epsilon_0 \overleftrightarrow{\aleph^{(2)}} \overrightarrow{\mathbb{E}} \overrightarrow{\mathbb{E}} \\ \overrightarrow{\mathbb{B}} = \mu_0 \overrightarrow{\mathbb{H}} \end{cases}$$

Nous pouvons maintenant écrire l'équation de propagation, dans le cas où la polarisation de la matière possède un comportement quadratique :

$$\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}} + \frac{\epsilon_r^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2 \overrightarrow{\mathbb{E}}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}}}{\partial t^2} \tag{2.6}$$

On obtient l'équation bien connue de propagation d'une onde, avec un terme de source issu de l'oscillation anharmonique des électrons liés. En choisissant les axes du laboratoire tels que le champ se propage selon l'axe $z$, cela simplifie énormément l'écriture de $\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}}$ car les dérivées spatiales selon $x$ et $y$ sont nulles.

$$\overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\nabla} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}} = \begin{pmatrix} -\frac{\partial^2 \mathbb{E}_x}{\partial z^2} \\ -\frac{\partial^2 \mathbb{E}_y}{\partial z^2} \\ 0 \end{pmatrix} \tag{2.7}$$

Nous allons maintenant étudier la forme que prend cette polarisation non linéaire dans le cas d'un mélange de deux ondes planes oscillant aux fréquences $w_1$ et $w_2$ :

$$\overrightarrow{\mathbb{P}_{NL}} = \epsilon_0 \overleftrightarrow{\aleph^{(2)}} \overrightarrow{\mathbb{E}(w_1)} \overrightarrow{\mathbb{E}(w_2)}$$

On projette cette expression sur l'axe $i$ du repère :

$$\mathbb{P}_{NL_i} = \epsilon_0 \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k} \mathbb{E}_j(w_1)\mathbb{E}_k(w_2)$$

En utilisant l'écriture complexe des champs 2.2 présentée précédemment on obtient :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}_{NL_i} = \epsilon_0 \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \Big[ & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1+w_2,w_1,w_2)E_{1_j}(z)E_{2_k}(z)e^{i(w_1+w_2)t} \\ + & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(-w_1-w_2,-w_1,-w_2)E^*_{1_j}(z)E^*_{2_k}(z)e^{-i(w_1+w_2)t} \\ + & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1-w_2,w_1,-w_2)E_{1_j}(z)E^*_{2_k}(z)e^{i(w_1-w_2)t} \\ + & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(-w_1+w_2,-w_1,w_2)E^*_{1_j}(z)E_{2_k}(z)e^{(-i(w_1-w_2)t}\Big]\end{aligned}$$

Nous voyons que le terme de source inclut des fréquences somme à $w_1 + w_2$ et différence à $w_1 - w_2$.

<u>Remarque</u> : Il est intéressant de constater que $\aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_m + w_n, w_m, w_n)$ est la transformée de Fourier d'une fonction nécessairement réelle, impliquant que $\aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_m + w_n, w_m, w_n) = \aleph^{(2)^*}_{i,j,k}(-w_m - w_n, -w_m, -w_n)$.
Sous cette condition, on peut écrire :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}_{NL_i} = \epsilon_0 \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \Big[ & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1+w_2,w_1,w_2)E_{1_j}(z)E_{2_k}(z)e^{i(w_1+w_2)t} + C.C_{w_1+w_2} \\ + & \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1-w_2,w_1,-w_2)E_{1_j}(z)E^*_{2_k}(z)e^{i(w_1-w_2)t} + C.C_{w_1-w_2}\Big]\end{aligned}$$

Après avoir effectué les dérivations temporelles, nous obtenons deux équations différentielles à résoudre.
Pour la génération de fréquence somme (avec $\pm = +$) et pour la génération de fréquence différence (avec $\pm = -$) :

$$-\frac{\partial^2 E_{1\pm 2_i}(z)}{\partial z^2} - \frac{\epsilon_r^{(1)}(w_1 \pm w_2)^2}{c^2}\big(E_{1\pm 2_i}(z)\big) =$$
$$\frac{(w_1 \pm w_2)^2}{c^2} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \big(\aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1 \pm w_2, w_1, \pm w_2)E_{1_j}(z)E^{*\mathrm{si}\pm = -}_{2_k}(z)\big)$$

Nous choisissons une solution du type $E_{1\pm 2_i}(z) = A_{1\pm 2_i}(z)e^{-ik_{1\pm 2}z}$, l'amplitude $A_{1\pm 2_i}$ variant suivant la distance de propagation $z$. Néanmoins, nous supposons que $A_{1\pm 2_i}(z)$ varie peu sur des distances comparables à la longueur d'onde (hypothèse de l'enveloppe lentement variable), donc nous négligerons les dérivées secondes de $A_{1\pm 2_i}(z)$. Nous obtenons :

$$2ik_{1\pm 2}\frac{\partial A_{1\pm 2_i}(z)}{\partial z}e^{-ik_{1\pm 2}z} = \frac{(w_1 \pm w_2)^2}{c^2} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1 \pm w_2, w_1, \pm w_2)A_{1_j}(z)A^{*\mathrm{si}\pm = -}_{2_k}(z)e^{-i(k_1 \pm k_2)z}$$

que nous pouvons réécrire, en posant $\Delta k^{\pm} = k_1 \pm k_2 - k_{1\pm 2}$, sous la forme :

$$\frac{\partial A_{1\pm 2_i}(z)}{\partial z} = \frac{(w_1 \pm w_2)^2}{2ik_{1\pm 2}c^2} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1 \pm w_2, w_1, \pm w_2) A_{1_j}(z) A^{*\mathrm{si}\pm=-}_{2_k}(z) e^{-i\Delta k^{\pm} z} \quad (2.8)$$

Hyp : L'effet non linéaire étant peu efficace dans le cas d'une transformation optique/THz, on peut alors considérer que l'amplitude des champs de pompe est indépendante de *z*. Il est alors facile d'intégrer l'expression 2.8, en posant L la longueur du cristal, nous avons :

$$A_{1\pm 2_i}(L) = \frac{w_1 \pm w_2}{2n(w_1 \pm w_2)c} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1 \pm w_2, w_1, \pm w_2) A_{1_j} A^{*\mathrm{si}\pm=-}_{2_k} \Big(\frac{e^{-i\Delta k^{\pm} L} - 1}{\Delta k^{\pm}}\Big) \quad (2.9)$$

Nous pouvons maintenant calculer l'intensité optique grâce au vecteur de Poynting, étant défini comme $\overrightarrow{\Pi} = \frac{\overrightarrow{\mathbb{E}} \wedge \overrightarrow{\mathbb{B}}}{\mu_0}$ avec $\overrightarrow{\mathbb{B}} = \frac{\overrightarrow{k} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}}}{\omega}$, nous obtenons :

$$\overrightarrow{\Pi} = \frac{\overrightarrow{\mathbb{E}} \wedge \big(\overrightarrow{k} \wedge \overrightarrow{\mathbb{E}}\big)}{\omega\mu_0} = \frac{\big(\overrightarrow{\mathbb{E}}\,\overrightarrow{\mathbb{E}}\big)\overrightarrow{k}}{\omega\mu_0}$$

ce qui donne pour la densité de puissance instantanée :

$$|\overrightarrow{\Pi}| = \frac{n(w_1 \pm w_2)\overrightarrow{\mathbb{E}}^2}{c\mu_0} = n(w_1 \pm w_2)\frac{\overrightarrow{A}^2 e^{2i(\omega t - kz)} + \overrightarrow{A}^{*2} e^{-2i(\omega t - kz)} + 2\overrightarrow{A}\overrightarrow{A^*}}{c\mu_0}$$

On peut déterminer l'intensité en moyennant sur une période l'expression précédente. Les termes en exponentielle imaginaire sont en moyenne nuls, il reste :

$$I_{1\pm 2}(L) = \frac{2n(w_1 \pm w_2)|\overrightarrow{A_{1\pm 2}(L)}|^2}{c\mu_0} \quad (2.10)$$

Ce qui donne en injectant dans l'équation 2.10 l'expression de la solution 2.9 :

$$I_{1\pm 2}(L) = C\Big|\frac{e^{-i\Delta k^{\pm} L} - 1}{\Delta k^{\pm}}\Big|^2$$

Avec :

$$C = \frac{2n(w_1 \pm w_2)}{c\mu_0}\Big(\frac{w_1 \pm w_2}{2n(w_1 \pm w_2)c}\Big)^2 \sum_{i=1}^{3}\Big(\sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(w_1 \pm w_2, w_1, \pm w_2) A_{1_j} A^{*\mathrm{si}\pm=-}_{2_k}\Big)^2$$

On peut remarquer que :

$$\Big|\frac{e^{-i\Delta k^{\pm} L} - 1}{\Delta k^{\pm}}\Big|^2 = L^2 \mathrm{sinc}(\frac{\Delta k^{\pm} L}{2})^2$$

D'où :

$$I_{1\pm 2}(L) = CL^2 \mathrm{sinc}(\frac{\Delta k^{\pm} L}{2})^2 \quad (2.11)$$

Nous allons dans la session suivante étudier en détail la génération THz à partir de la rectification d'une impulsion femtoseconde optique. Nous appliquerons ensuite notre théorie dans le cas du cristal de ZnTe.

## 2.2 Génération térahertz par rectification optique

Dans le cas de la génération térahertz, seule la solution de l'équation 2.9 avec $\pm = -$ nous intéresse. En effet, le mélange issu des composantes spectrales de l'onde incidente (de l'ordre de $10^{15}$) ne fournira une réponse dans le domaine THz que dans le cas d'un processus de différence de fréquence. Nous posons $w_1 = \omega + \Omega$, $w_2 = \omega$, et $w_3 = \Omega$ avec $\Omega$, pulsation THz, très inférieure à $\omega$, pulsation optique. L'équation 2.9 s'écrit :

$$A_{\Omega_i}(L) = \frac{\Omega}{2n(\Omega)c} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\Omega, \omega+\Omega, \omega) A_{\omega+\Omega_j} A^*_{\omega_k} \Big( \frac{e^{-i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \Big)$$

De plus, le spectre de la pompe optique présente une infinité de mélanges possibles entre composantes séparées de $\Omega$. On intègre donc cette équation par rapport à $\omega$ afin de sommer toutes les contributions possibles.

$$A^T_{\Omega_i}(L) = \frac{\Omega}{2n(\Omega)c} \int_0^\infty \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\Omega, \omega+\Omega, \omega) A_{\omega+\Omega_j} A^*_{\omega_k} \Big( \frac{e^{-i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \Big) \mathrm{d}\omega \tag{2.12}$$

Avec :

$$\Delta k = k_{\omega+\Omega} - k_\omega - k_\Omega = \frac{\omega+\Omega}{c} n_{\omega+\Omega} - \frac{\omega}{c} n_\omega - \frac{\Omega}{c} n_\Omega$$

Le développement limité à l'ordre 1 de l'indice s'écrivant $n_{\omega+\Omega} = n_\omega + \frac{\partial n_\omega}{\partial \omega}\Omega$. Il vient :

$$\Delta k = \frac{\Omega}{c} \Big( n_\omega - n_\Omega + (\omega+\Omega) \frac{\partial n_\omega}{\partial \omega} \Big)$$

On peut maintenant faire apparaître l'indice de groupe $n_G$ car :

$$\frac{\partial \omega}{\partial k} = V_G = \frac{c}{n_G} \Rightarrow n_G = c\frac{\partial k}{\partial \omega} = c\frac{\partial \frac{\omega n_\omega}{c}}{\partial w} = n_\omega + \omega \frac{\partial n_\omega}{\partial \omega}$$

$$\Rightarrow \frac{\partial n_\omega}{\partial \omega} = \frac{n_G - n_\omega}{\omega}$$

$$k_{\omega+\Omega} - k_\omega - k_\Omega = \frac{\Omega}{c} \Big( n_G - n_\Omega + \frac{\Omega}{w}(n_G - n_\omega) \Big)$$

Après le cristal, le champ térahertz à la fréquence $\Omega$ est égal à :

$$\mathbb{E}_{\Omega_i} = A^T_{\Omega_i}(L) e^{i(\Omega t - k_{ZnTe} L - k_{air}(z-L))} + C.C$$

Ainsi l'efficacité de la génération THz est proportionnelle au $\overleftrightarrow{\chi^{(2)}}$ mais aussi à $\mathrm{sinc}(\frac{\Delta k^{\pm} L}{2})$ et $L$ (voir équation 2.11). Il s'agit donc bien de faire un compromis entre la sensibilité et l'accord de phase. Plus le cristal est fin et plus l'accord de phase est bon (génération de haute fréquence) mais plus le signal est faible. C'est en cela que le ZnTe est intéressant car il présente le meilleur accord de phase entre onde THz et optique loin des 5,31 THz

de sa résonance phononique, et ses coefficients non linéaires sont assez élevés. Le tableau 2.1 résume les caractéristiques essentielles des cristaux inorganiques traditionnellement rencontrés dans la génération ou détection THz. Le GaP est aussi un cristal intéressant pour la génération-détection inférieure à 12 THz.

| Cristal | $n_g$ | $n_\Omega/\alpha(\mathrm{cm}^{-1})$ | | | phonon (THz) | r(pm/V) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | à 800 nm | à 1 THz | à 2 THz | à 4 THz | | |
| ZnTe | 3,24 | 3,18/0,32 | 3,23/1,60 | 3,66/22,11 | 5,30 | 4,04 |
| GaP | 3,57 | 3,34/0,04 | 3,35/0,16 | 3,39/0,78 | 11,98 | 0,97 |
| GaAs | 4,18 | 3,61/0,13 | 3,62/0,58 | 3,70/3,54 | 8,06 | 1,43 |

TABLE 2.1: Cristaux inorganiques rencontrés fréquemment dans les applications THz et leurs principales caractéristiques [77].

### 2.2.1 Optimisation de la génération THz au sein d'un cristal de ZnTe en coupe (110)

Afin de maximiser la dynamique de notre banc de caractérisation, une première étape est d'analyser la dépendance du module du champ THz en fonction de l'état de polarisation vis à vis des axes cristallographiques du cristal de ZnTe (voir figure 2.1). Ici les

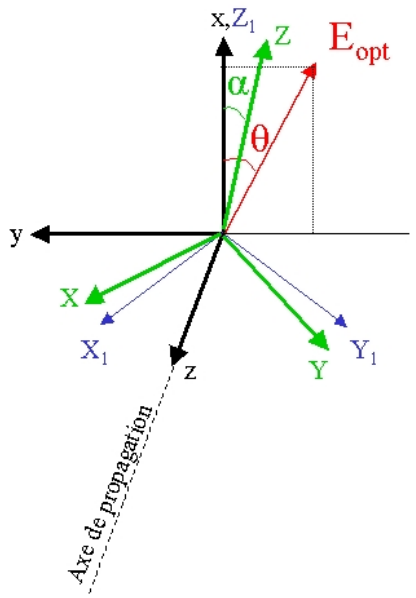



FIGURE 2.1: Configuration géométrique dans le cas de la coupe (110).

champs se propagent suivant $\overrightarrow{z}$, dans le repère du laboratoire , la polarisation de l'onde optique de pompe appartient au plan $(xOy)$. Pour obtenir la matrice de passage du laboratoire aux axes cristallographiques, on utilise une base intermédiaire $(O,\overrightarrow{X_1},\overrightarrow{Y_1},\overrightarrow{Z_1})$.

La matrice de passage du repère du laboratoire au repère intermédiaire présentée dans le tableau 2.2, consiste en une rotation d'axe $\overrightarrow{y}$ de $+90°$, puis une rotation d'axe $\overrightarrow{x}$ de $+135°$. Finalement, désirant avoir le degré de liberté $\alpha$ traduisant la rotation du cristal

| cos | $X_1$ | $Y_1$ | $Z_1$ |
|---|---|---|---|
| $x$ | 0 | 0 | 1 |
| $y$ | $\frac{\sqrt{2}}{2}$ | $-\frac{\sqrt{2}}{2}$ | 0 |
| $z$ | $\frac{\sqrt{2}}{2}$ | $\frac{\sqrt{2}}{2}$ | 0 |

TABLE 2.2: Forme de la matrice de passage du repère du laboratoire à l'intermédiaire.

par rapport à l'axe de propagation $\overrightarrow{z}$, on obtient pour la matrice de passage du repère intermédiaire au repère cristallographique $(O,\overrightarrow{X},\overrightarrow{Y},\overrightarrow{Z})$ l'expression donnée au tableau 2.3. Elle correspond à une rotation autour de l'axe $\frac{\overrightarrow{X_1}+\overrightarrow{Y_1}}{\sqrt{2}}$ d'angle $-\alpha$. Une routine maple

| cos | X | Y | Z |
|---|---|---|---|
| $X_1$ | $\frac{1+cos(\alpha)}{2}$ | $\frac{1-cos(\alpha)}{2}$ | $-\frac{sin(\alpha)}{\sqrt{2}}$ |
| $Y_1$ | $\frac{1-cos(\alpha)}{2}$ | $\frac{1+cos(\alpha)}{2}$ | $\frac{sin(\alpha)}{\sqrt{2}}$ |
| $Z_1$ | $\frac{sin(\alpha)}{\sqrt{2}}$ | $-\frac{sin(\alpha)}{\sqrt{2}}$ | $cos(\alpha)$ |

TABLE 2.3: Matrice de passage du repère intermédiaire au repère cristallographique.

(cf. annexe B) reprend le formalisme précédemment présenté. Elle nous permet d'étudier l'efficacité de génération en fonction de l'angle $\theta$ de la polarisation de l'onde optique de pompe par rapport à $\overrightarrow{z}$, et en fonction de $\alpha$ angle de rotation du cristal de ZnTe (angle entre $\overrightarrow{Z}$ et $\overrightarrow{x}$ d'axe de rotation $\overrightarrow{z}$). Le tenseur électro-optique du ZnTe est tel que l'onde générée de polarisation donnée est proportionnelle au produit des composantes sur les 2 autres axes du champ incident (voir le tableau 2.4). Cette figure de mérite est présentée en figure 2.2. Pour $\alpha = 0$, on retrouve les valeurs maximales du module pour une direction de polarisation $\theta$ d'environ 55° et 125° déjà déterminées dans la littérature [84], [85]. Les équations donnant l'amplitude normalisée des 2 directions de polarisation de l'onde THz générée en fonction de l'angle de rotation $\alpha$ du cristal, et de l'angle $\theta$ de l'onde optique, se réduisent à :

$$E_{THzLab} \propto \begin{pmatrix} -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)(2\sin(\alpha)\cos(\theta+\alpha)+\cos(\alpha)\sin(\theta+\alpha)) \\ -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)(2\cos(\alpha)\cos(\theta+\alpha)+\sin(\alpha)\sin(\theta+\alpha)) \\ 0 \end{pmatrix}$$

Si la détection est insensible à l'état de polarisation alors une simple rotation du cristal permettra d'optimiser le signal sur le maximal globale. Dans le cas d'une détection sensible

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix}$$

TABLE 2.4: Forme du tenseur électro-optique du ZnTe.

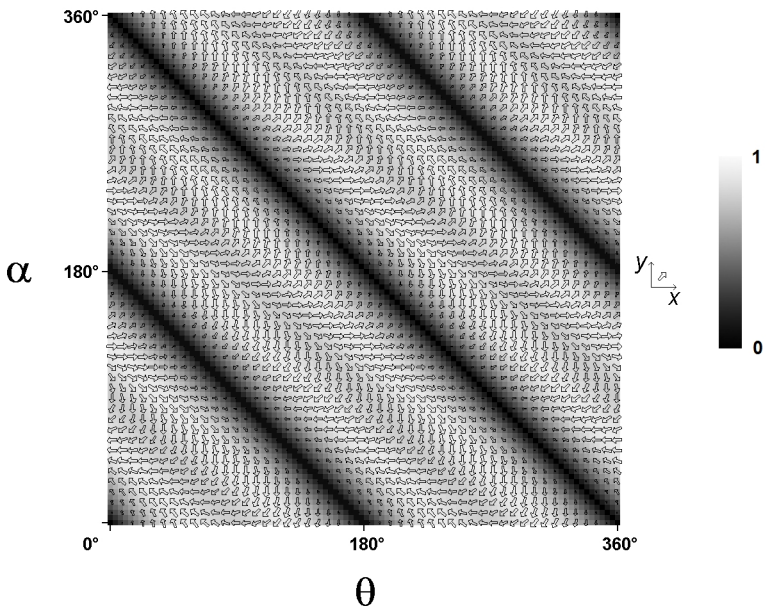



FIGURE 2.2: Champ généré (direction et module du vecteur) dans le repère du laboratoire en fonction de la direction de la polarisation de la pompe $\theta$ et de la rotation du cristal $\alpha$ par rapport à l'axe $z$.

à 1 seul état de polarisation, une bonne stratégie est d'optimiser en premier lieu l'angle du cristal, puis d'effectuer une rotation identique de l'angle du cristal et de la polarisation optique (les détails de ce type d'optimisation sont donnés dans la partie 3.2.4).

## 2.3 Détection térahertz par effet électro-optique

Ce type de calcul a déjà été traité dans la littérature, en particulier par Gallot *et al.* [86]. Le champ THz généré dans le cristal atteint, après une propagation de $L_0$ dans l'air, l'entrée du cristal de détection. Le champ en entrée de cristal s'écrit :

$$E_{\Omega_i} = A^T_{\Omega_i}(L)e^{i(\Omega t - k_{ZnTe}L - k_{air}(L_0 - L))}$$

On pose :

$$A'_{\Omega_i} = A^T_{\Omega_i}(L)e^{-i(k_{ZnTe}L + k_{air}(L_0 - L))}$$

Ainsi on cache dans le terme $A'_{\Omega_i}$ la phase de l'onde en entrée de cristal et on peut considérer pour la propagation dans le cristal de détection que l'interface du cristal se trouve en $z = 0$. On néglige la partie réfléchie pour ne pas alourdir les équations.
Nous allons à présent introduire l'effet Pockels dans le formalisme de l'optique non linéaire. L'effet Pockels est un mélange de deux ondes, une onde optique de sonde et l'onde térahertz à mesurer. Le champ électromagnétique issu de la différence et de la somme de fréquence (entre onde optique et onde THz) peut présenter une polarisation différente du champ optique initial. Nous appellerons $A_{d\omega_j}$ l'amplitude de la sonde optique au sein du cristal et $\aleph'^{(2)}_{i,j,k}$ la susceptibilité non linéaire du cristal de détection dans le repère du laboratoire. De manière similaire au cas de la génération, nous écrivons les équations 2.13 et 2.14 sous la forme :

$$A^S_{\omega_i}(L_c) = \frac{\omega}{2n(\omega)c}\int_0^\infty \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\omega, \omega - \Omega, \Omega) A_{d\omega-\Omega_j} A'_{\Omega_k}\Big(\frac{e^{-i\Delta k^+ L_c} - 1}{\Delta k^+}\Big)\mathrm{d}\Omega \qquad (2.13)$$

$$A^D_{\omega_i}(L_c) = \frac{\omega}{2n(\omega)c}\int_0^\infty \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\omega, \omega + \Omega, -\Omega) A_{d\omega+\Omega_j} A'^*_{\Omega_k}\Big(\frac{e^{-i\Delta k^- L_c} - 1}{\Delta k^+}\Big)\mathrm{d}\Omega \qquad (2.14)$$

Hyp : $\Omega$ étant très petit devant $\omega$, on considère que le spectre de la sonde optique et la susceptibilité sont inchangés $A_{d\omega+\Omega_j} = A_{d\omega-\Omega_j}$ et $\aleph'^{(2)}_{i,j,k}(\omega, \omega - \Omega, \Omega) = \aleph'^{(2)}_{i,j,k}(\omega, \omega + \Omega, \Omega)$.
Ainsi il vient pour le champ induit à $\omega$ après une propagation de $L_c$ dans le cristal de détection :

$$A_{\omega_i}(L_c) = \frac{\omega}{n(\omega)c}\int_0^\infty \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\omega, \omega - \Omega, \Omega) A_{d\omega-\Omega_j} A'_{\Omega_k}\Big(\frac{e^{-i\Delta k L_c} - 1}{\Delta k^+}\Big)\mathrm{d}\Omega$$

Avec

$$\Delta k^+ = k_{\omega-\Omega} + k_\Omega - k_\omega = \frac{\Omega}{c}\Big(n_\Omega - n_G + \frac{\Omega}{w}(n_G - n_\omega)\Big)$$

Toutefois, pour traiter l'effet Pockels un autre formalisme est usuellement rencontré, que nous présentons au paragraphe suivant. Ce formalisme permet de rendre compte de manière plus directe des quantités effectivement mesurée expérimentalement. Ces calculs nous permettront d'évaluer les performances de détection de notre banc de spectroscopie.

### 2.3.1 Formalisme usuel de l'effet Pockels

L'effet Pockels se retrouve dans tous les milieux non centro-symétriques. Pour les milieux anisotropes, la biréfringence naturelle est modifiée. Pour ceux qui sont isotropes (cubique comme le ZnTe), l'effet se traduit par une biréfringence induite. La polarisation de la matière ne dépend plus linéairement du champ, et on a pour le vecteur d'induction électrique [87], [88] [1] :

$$\overrightarrow{D} = f(\overrightarrow{E}) = \epsilon_0 \overleftrightarrow{\epsilon_r} \overrightarrow{E} = \epsilon_0 \overrightarrow{E} + \overrightarrow{P} = \epsilon_0 \overrightarrow{E} + \epsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(1)} \overrightarrow{E} + \epsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(2)} \overrightarrow{E}.\overrightarrow{E} + \dots$$

En se limitant au premier terme non linéaire, on obtient :

$$\overleftrightarrow{\epsilon_r} = 1 + \overleftrightarrow{\chi}^{(1)} + \overleftrightarrow{\chi}^{(2)} \overrightarrow{E}$$

$\overleftrightarrow{\chi}^{(1)}$ étant la partie linéaire, nous pouvons écrire, en négligeant l'aspect vectoriel :

$$\epsilon_r = n^2 + \chi^{(2)} E = (n + \Delta n)^2$$

$\Delta n^2$ est négligeable devant $2n\Delta n$, on obtient :

$$\Delta n = \frac{\chi^2}{2n} E$$

On voit apparaître une variation de l'indice proportionnelle au champ appliqué. Ce comportement "linéaire" avec le champ appliqué est caractéristique de l'effet Pockels. Un développement aux ordres supérieurs de la polarisation de la matière ferait apparaître d'autres effets, notamment l'effet Kerr à l'ordre 3 pour lequel la dépendance suivant le champ $E$ est quadratique.

#### 2.3.1.1 L'ellipsoïde des indices

Pour décrire complètement l'effet électro-optique, il faut tenir compte de l'aspect tensoriel des relations et donc de l'anisotropie optique des cristaux. Dans un repère *0xyz*,

1. $\overleftrightarrow{M}$ représente le tenseur de composante $M_{ijk}$

l'équation de l'ellipsoïde des indices d'un milieu matériel est telle que :

$$\frac{x^2}{n_{xx}^2} + \frac{y^2}{n_{yy}^2} + \frac{z^2}{n_{zz}^2} + 2\frac{xy}{n_{xy}^2} + 2\frac{yz}{n_{yz}^2} + 2\frac{xz}{n_{xz}^2} = 1$$

Pour des raisons de symétrie, on peut écrire cette ellipsoïde dans un repère *0XYZ* tel que :

$$\frac{X^2}{n_{XX}^2} + \frac{Y^2}{n_{YY}^2} + \frac{Z^2}{n_{ZZ}^2} = 1$$

Ce repère est appelé base propre, ou encore base des axes cristallins pour les milieux de fortes symétries. Nous exprimerons toujours nos coefficients électro-optiques dans cette base.

#### 2.3.1.2 Cas général

On exprime l'indice $n_{ij}(E)$ en fonction du champ appliqué $\overrightarrow{E}$. Pour cela, on utilise une série de Taylor limitée au $1^{er}$ ordre (prise en compte de l'effet Pockels uniquement) :

$$n_{ij}(\overrightarrow{E}) = n_{ij} + \sum_{k=1}^{3} a1_{ijk} E_k$$

avec $n_{ij} = n_{ij}(0)$. Toutes ces grandeurs sont écrites par rapport aux axes propres $XYZ$ du cristal, notés respectivement 1, 2 et 3 dans les sommations. En posant, $r_{ijk} = \frac{-2a1_{ijk}}{n_{ij}^3}$, il est commode d'écrire le développement de Taylor ainsi :

$$n_{ij}(\overrightarrow{E}) = n_{ij} - \frac{1}{2}\sum_{k=1}^{3} r_{ijk} n_{ij}^3 E_k$$

Cette écriture est très pratique pour déterminer l'imperméabilité de la matière en fonction du champ. L'imperméabilité est proportionnelle à la matrice inverse du coefficient diélectrique. Elle se définit à partir de la relation :

$$\epsilon_0 \overrightarrow{E} = \overleftrightarrow{\eta} \overrightarrow{D}$$

Ainsi $\overleftrightarrow{\eta} = \overleftrightarrow{\epsilon_r}^{-1}$.
Donc une variation d'un coefficient du tenseur d'imperméabilité s'écrit :

$$\Delta\eta_{ij} = \frac{\mathrm{d}\eta_{ij}}{\mathrm{d}n_{ij}} \Delta n_{ij}$$

On connaît l'expression de $\Delta n_{ij}$ :

$$\Delta n_{ij} = -\frac{1}{2}\sum_{k=1}^{3} r_{ijk} n_{ij}^3 E_k$$

ainsi que le calcul de la dérivée :

$$\frac{\mathrm{d}\eta_{ij}}{\mathrm{d}n_{ij}} = \frac{\mathrm{d}\frac{1}{\epsilon_{r\,ij}}}{\mathrm{d}n_{ij}} = -2\frac{1}{n_{ij}^3}$$

Finalement :

$$\Delta\eta_{ij} = -2\frac{1}{n_{ij}^3} \times \left(-\frac{1}{2}\sum_{k=1}^{3} r_{ijk} n_{ij}^3 E_k +\right)$$

$$\Delta\eta_{ij} = \sum_{k=1}^{3} r_{ijk} E_k$$

En écrivant l'imperméabilité induite :

$$\eta_{ij}(\overrightarrow{E}) = \eta_{ij}(0) + \sum_{k=1}^{3} r_{ijk} E_k$$

Et en écriture tensorielle, on obtient :

$$\overleftrightarrow{\eta(\overrightarrow{E})} = \overleftrightarrow{\eta(0)} + \overleftrightarrow{r}\,\overrightarrow{E}$$

Finalement l'ellipsoïde des indices induite s'écrit :

$$X^2\eta_{XX} + Y^2\eta_{YY} + Z^2\eta_{ZZ} + 2YZ\eta_{YZ} + 2ZX\eta_{ZX} + 2XY\eta_{XY} = 1$$

Cette nouvelle ellipsoïde dépend du tenseur de Pockels (propre au cristal) et du champ électrique appliqué. Le principe de la détection électro-optique est de remonter au champ électrique ayant induit une variation de l'ellipsoïde. Cette variation de l'ellipsoïde est déterminée grâce à la mesure de la modification de l'état de polarisation d'une onde optique traversant le cristal sous champ. La modulation de la polarisation sera convertie en modulation d'intensité. Pour optimiser la détection, il faut donc faire un choix concernant l'orientation des axes du cristal ainsi que la polarisation des champs électrique et optique. C'est ce que nous proposons de calculer dans le cas d'un cristal de ZnTe.

### 2.3.2 Optimisation de l'efficacité de l'effet électro-optique dans le ZnTe

Ici nous souhaitons déterminer la configuration optimale pour la détection THz avec un cristal de ZnTe [89]. La coupe (110) est très souvent utilisée car elle présente une très bonne sensibilité au champ térahertz. La coupe (111) est elle aussi intéressante car, comme nous le verrons, l'efficacité est assez bonne et la modification de l'ellipsoïde ne dépend pas (en excentricité) de l'orientation du champ THz. Le choix de la coupe nous impose la direction de l'incidence du faisceau optique qui devra être perpendiculaire à

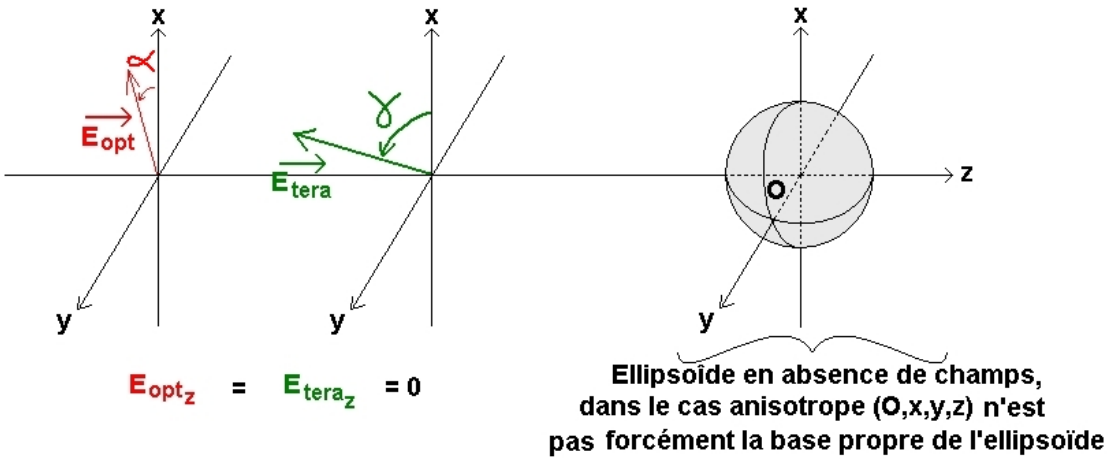



FIGURE 2.3: Angles des faisceaux THz et optiques par rapport aux axes du cristal.

la coupe du cristal (incidence normale). De plus, il faut que la propagation du signal THz soit co-propagative avec celle du champ optique, ainsi la zone d'interaction est maximum (transverse ou contraprogative demanderait des cristaux si fins que ce n'est pas envisageable dans le domaine THz). Ainsi, pour une coupe donnée il ne reste que deux paramètres à ajuster : les directions des polarisations optique et THz par rapport aux axes cristallographiques. Nos états de polarisation étant rectilignes, ils sont déterminés par les deux angles $\alpha$ et $\gamma$, par rapport à l'axe $x$ du repère du laboratoire, respectivement pour les polarisations optique et THz (voir Fig. 2.3).

#### 2.3.2.1 Etude d'une coupe dans le cas général

Ces calculs sont tirés de la publication écrite par L. Duvillaret *et al.* [88], ils nous permettent de calculer la variation de la biréfringence d'un cristal en fonction d'un champ électrique appliqué.

Dans la base propre du cristal $OXYZ$, l'ellipsoïde induite est égale à :

$$\begin{pmatrix} \alpha & \kappa & \varepsilon \\ \kappa & \beta & \delta \\ \varepsilon & \delta & \gamma \end{pmatrix}$$

Avec :

$$\begin{cases} \alpha = \left(n_x^{opt}\right)^{-2} + r_{11}E_x^{thz} + r_{12}E_y^{thz} + r_{13}E_z^{thz} \\ \beta = \left(n_y^{opt}\right)^{-2} + r_{21}E_x^{thz} + r_{22}E_y^{thz} + r_{23}E_z^{thz} \\ \gamma = \left(n_z^{opt}\right)^{-2} + r_{31}E_x^{thz} + r_{32}E_y^{thz} + r_{33}E_z^{thz} \\ \delta = \left(r_{41}E_x^{thz} + r_{42}E_y^{thz} + r_{43}E_z^{thz}\right)/2 \\ \varepsilon = \left(r_{51}E_x^{thz} + r_{52}E_y^{thz} + r_{53}E_z^{thz}\right)/2 \\ \kappa = \left(r_{61}E_x^{thz} + r_{62}E_y^{thz} + r_{63}E_z^{thz}\right)/2 \end{cases}$$

Où $E_x^{thz}$, $E_y^{thz}$, $E_z^{thz}$ sont les composantes du champ THz oscillant à la pulsation $\omega$ et $n_x^{opt}$, $n_y^{opt}$, $n_z^{opt}$ sont les indices de réfraction du cristal pour le faisceau laser de longueur d'onde $\lambda$, c'est à dire dans le domaine optique ($\lambda \sim 800$ nm dans notre cas).
La matrice de Pockels est exprimée dans la base propre du cristal, il faut donc exprimer l'ellipsoïde induite dans le repère du laboratoire. Cela revient à connaître les deux angles de rotation permettant le passage d'un repère à l'autre (voir Fig. 2.4).

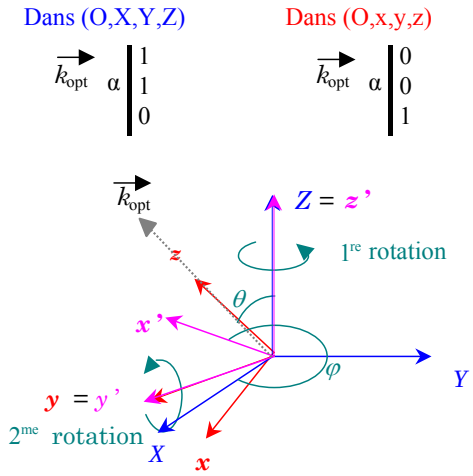



FIGURE 2.4: Représentation des deux rotations dans l'espace pour une coupe (110) permettant d'exprimer le champ dans la base des axes cristallins $OXYZ$ à partir de ceux dans le repère du laboratoire $Oxyz$.

On a donc dans la base du laboratoire $Oxyz$ (choisie telle que l'axe $\vec{z}$ soit l'axe de propagation) pour l'ellipsoïde à l'aide des matrices de rotation $\Re$ :

$$\left(\Re_{\theta/y'=Y}\right)\cdot\left(\Re_{\varphi/z=z'}\right)\cdot\begin{pmatrix}\alpha & \kappa & \varepsilon\\ \kappa & \beta & \delta\\ \varepsilon & \delta & \gamma\end{pmatrix}\cdot\left(\Re_{-\varphi/z=z'}\right)\cdot\left(\Re_{-\theta/y'=Y}\right)=\begin{pmatrix}A & F & E\\ F & B & D\\ E & D & C\end{pmatrix}$$

Où :

$$\Re_{\theta/y'=y}=\begin{pmatrix}\cos\theta & 0 & -\sin\theta\\ 0 & 1 & 0\\ \sin\theta & 0 & \cos\theta\end{pmatrix}$$

est la matrice de rotation d'angle $\theta$ autour de l'axe $y'=y$ et

$$\Re_{\varphi/z'=Z}=\begin{pmatrix}\cos\varphi & \sin\varphi & 0\\ -\sin\varphi & \cos\varphi & 0\\ 0 & 0 & 1\end{pmatrix}$$

est la matrice de rotation d'angle $\varphi$ autour de l'axe $Z = z'$ . L'équation de l'ellipse correspondant à l'intersection du plan d'onde avec l'ellipsoïde s'obtient alors simplement en posant $Z = 0$ :

$$AX^2 + BY^2 + 2FXY = 1$$

On obtient alors :

$$\begin{cases} A = \left(\alpha \cos^2 \varphi + \beta \sin^2 \varphi + \kappa \sin 2\varphi\right) \cos^2 \theta + \gamma \sin^2 \theta - (\varepsilon \cos \varphi + \delta \sin \varphi) \sin 2\theta \\ B = \alpha \sin^2 \varphi + \beta \cos^2 \varphi - \kappa \sin 2\varphi \\ F = \left(\frac{\beta - \alpha}{2} \sin 2\varphi + \kappa \cos 2\varphi\right) \cos \theta - (\delta \cos \varphi - \varepsilon \sin \varphi) \sin \theta \end{cases}$$

Les deux états de polarisation propres de l'onde optique s'obtiennent par diagonalisation de la matrice 2 x 2 associée à l'équation de l'ellipse écrite ci-dessus. Leurs indices de réfraction associés sont :

$$n_{\pm} = \sqrt{\frac{2}{A + B \pm \sqrt{(A - B)^2 + 4F^2}}}$$

#### 2.3.2.2 Etude de la coupe (110) du ZnTe

En incidence normale, pour une coupe (110) du cristal, le vecteur d'onde optique s'écrit :

$$\overrightarrow{k}_{opt} = k_{opt} . \begin{pmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \\ 0 \end{pmatrix}$$

Les angles de rotation permettant de passer du repère cristallin au repère du laboratoire (ou $\overrightarrow{k}_{opt}$ est porté par $z$) sont alors $\varphi = \frac{\pi}{4}$ et $\theta = \frac{\pi}{2}$. On obtient pour les indices, en substituant dans l'équation 2.3.2.1, et en présence du champ THz :

$$n_+ = n_{ZnTe} - E_{Thz}\ {n_{ZnTe}}^3\ r_{41} [\ \frac{\sqrt{6}}{12} \cos(\gamma) - \frac{\sqrt{3}}{12} \sqrt{7 - 5\cos(2\gamma)}\ ] \tag{2.15}$$

$$n_- = n_{ZnTe} - E_{Thz}\ {n_{ZnTe}}^3\ r_{41} [\ \frac{\sqrt{6}}{12} \cos(\gamma) + \frac{\sqrt{3}}{12} \sqrt{7 - 5\cos(2\gamma)}\ ] \tag{2.16}$$

$$\Psi = \text{atan}(\frac{2\sqrt{3} \sin \gamma}{\sqrt{2} \cos \gamma + \sqrt{7 - 5 \cos 2\gamma}}) \tag{2.17}$$

Avec $\Psi$ l'orientation de l'ellipse et $\gamma$ l'angle de la polarisation rectiligne du champ THz dans le repère du laboratoire.

#### 2.3.2.3 Etude de la coupe (111) du ZnTe

Pour la coupe (111), les deux angles sont : $\varphi = \frac{\pi}{4}$ et $\varphi = \frac{\pi}{4}$

$$n_+ = n_{ZnTe} + \frac{E_{Thz}\ n_{ZnTe}^3\ r_{41}}{\sqrt{6}} + \frac{1}{4}\ E_{Thz}^2\ n_{ZnTe}^5\ r_{41}^2 \tag{2.18}$$

$$n_- = n_{ZnTe} - \frac{E_{Thz}\ n_{ZnTe}^3\ r_{41}}{\sqrt{6}} + \frac{1}{4}\ E_{Thz}^2\ n_{ZnTe}^5\ r_{41}^2 \tag{2.19}$$

$$\Psi = \pi - \frac{\gamma}{2} \tag{2.20}$$

Cette coupe présente l'avantage d'offrir un $\Delta n = 2\frac{E_{Thz} n^3 r_{41}}{\sqrt{6}}$ indépendant de l'orientation $\gamma$ du champ THz. De plus, pour améliorer la sensibilité et la linéarité de la mesure, il faut que la polarisation optique soit à 45° des axes $n_+$ et $n_-$. Soit $\alpha = \frac{\gamma}{2} + \frac{\pi}{4} + p\frac{\pi}{2}$, avec $p \in \mathbb{Z}$.

#### 2.3.2.4 Influence du désaccord de phase dans les cristaux

Dans les calculs précédents (relatifs au formalisme usuel de l'effet Pockels), nous n'avons pas pris en compte l'influence de l'épaisseur du cristal. Pour améliorer le modèle, nous allons considérer que les ondes optique et THz ne se propagent pas à la même vitesse dans le cristal (nous négligerons ici les phénomènes de dispersion de l'onde THz et optique). Ainsi la sonde optique parcourt une portion de la sinusoïde représentant le champ THz lors de sa propagation deans le cristal (voir figure 2.5). Pour simuler ce moyennage de la modulation optique, il suffit de déterminer le retard temporel entre les deux champs à la traversée du cristal (voir Fig. 2.5).

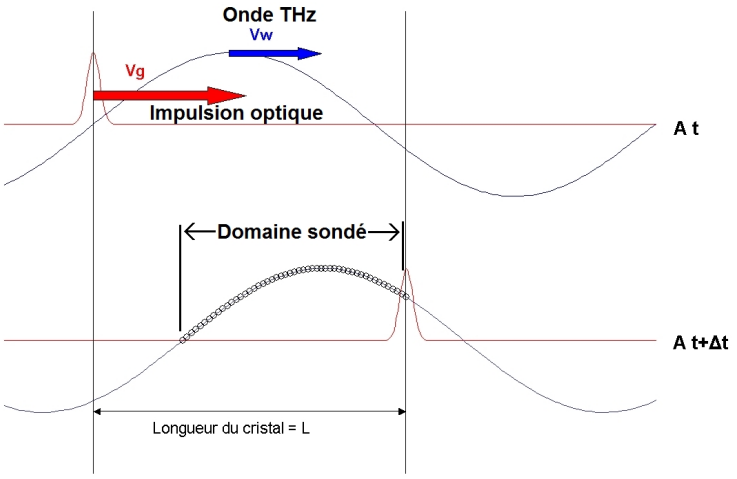



FIGURE 2.5: Cause du désaccord de phase : décalage temporel entre impulsion optique et une composante spectrale du pulse térahertz

On s'intéresse à deux positions $z_1$ et $z_2$ dans le cristal telles que $z_1 < z_2$. L'impulsion optique parcours cette distance en $\Delta t = \frac{z_2 - z_1}{V_G}$, où $V_G$ est la vitesse de groupe à la longueur

d'onde du laser. En $z_2$, l'onde térahertz est proportionnelle à $e^{j(\omega(t+\Delta t)-\frac{\omega}{c}n_\omega z_2)}$. En $z_2$ à l'instant $\Delta t$ la contribution au signal EO est donc égale $S(z_2) = Ae^{j(\omega(t+\frac{z_2-z_1}{Vg})-\frac{\omega}{c}n(\omega)z_2)}$. Et on remarquera que :

$$S(z_2) = S(z_1)e^{j\frac{\omega}{c}(n_G-n_\omega)(z_2-z_1)}$$

Finalement, le signal enregistré correspond à la somme de toutes les contributions sur l'épaisseur du cristal. On intégre sur la longueur du cristal $L$, en posant $z_1 = 0$ :

$$\begin{aligned} S_{total} &= A\int_0^L e^{j\frac{\omega}{c}(n_G-n_\omega)z}\mathrm{d}z && (2.21)\\ &\propto \frac{e^{j\frac{\omega}{c}(n_G-n_\omega)L}-1}{j\frac{\omega}{c}(n_G-n_\omega)} && (2.22)\\ &\propto e^{j\frac{\omega(n_G-n_\omega)L}{2c}} \times \mathrm{sinc}\frac{\omega(n_G-n_\omega)L}{2c} && (2.23)\end{aligned}$$

Le premier zéro du signal est donc atteint en $\frac{\omega(ng-n(\omega))L}{2c} = \pi$. La fréquence maximum du signal THz mesurable est donc :

$$f_{max} = \frac{c}{(n_G - n_{f_{max}})L}$$

Pour le ZnTe, la différence entre indice optique et THz peut en première approximation être considérée comme constante ($n_G - n(f) = 0.3$). Nous obtenons ainsi la courbe 2.6.

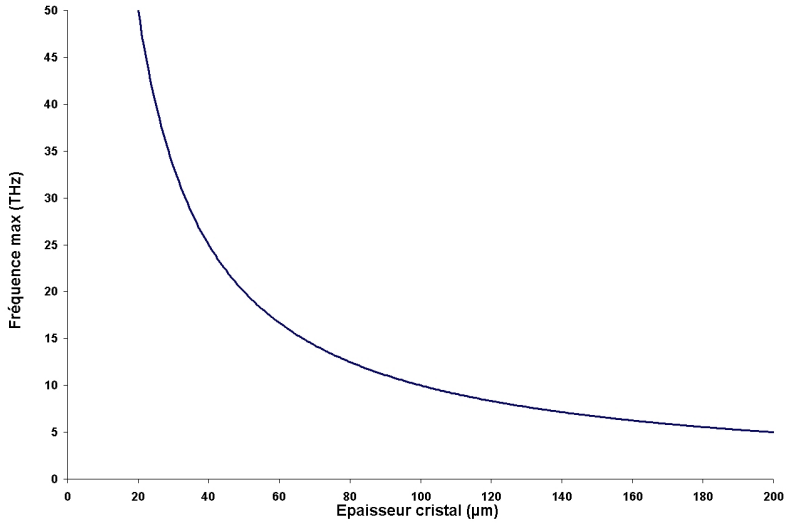



FIGURE 2.6: Position du premier zéro de détection en fonction de l'épaisseur $L$, limitée par le désaccord de phase ($\Delta n = 0,3$), dispersion optique et THz sont négligées.

#### 2.3.2.5 Conversion de la modulation de polarisation en modulation de puissance

Nous avons précédemment calculé la modulation de biréfringence induite par l'onde électrique, nous allons conclure ce chapitre en explicitant comment cette modulation se

traduit en modulation de polarisation, et finalement en modulation de puissance [90]. La détection électro-optique a en effet cet avantage d'offrir une modulation de puissance que l'on peut relier à une valeur absolue du champ.

Dans notre cas, les faisceaux optique et THz sont co-propagatifs suivant la direction $z$. Le champ optique $\overrightarrow{E^{opt}}$ "voit" dans le cas général deux indices optiques différents $n_x$ et $n_y$. En sortie d'un cristal de longueur L, les polarisations sont déphasées :

$$\begin{aligned} E_x^{opt} &= E_{ox}^{opt}\cos(\omega t - \frac{\omega}{c}n_x L) \\ E_y^{opt} &= E_{oy}^{opt}\cos(\omega t - \frac{\omega}{c}n_y L) \end{aligned}$$

où $E_{ox}^{opt}$ et $E_{oy}^{opt}$ sont les composantes du champ optique à l'entrée du cristal. En posant $\Phi = \frac{\omega}{c}n_x L$ et $\Delta = \frac{\omega}{c}(n_y - n_x)L$. On obtient :

$$\begin{aligned} E_x^{opt} &= E_{ox}^{opt}\cos(\omega t - \Phi) \\ E_y^{opt} &= E_{oy}^{opt}\cos(\omega t - \Phi - \Delta) \end{aligned}$$

En éliminant $(\omega t - \Phi)$ on obtient l'équation de l'ellipse :

$$(\frac{E_x^{opt}}{E_{ox}^{opt}})^2 + (\frac{E_y^{opt}}{E_{oy}^{opt}})^2 - 2\frac{E_x^{opt}}{E_{ox}^{opt}}\frac{E_y^{opt}}{E_{oy}^{opt}}\cos\Delta = \sin^2\Delta$$

On simplifie l'équation en posant $x = \frac{E_x^{opt}}{E_{ox}^{opt}\sin\Delta}$ et $y = \frac{E_y^{opt}}{E_{oy}^{opt}\sin\Delta}$ :

$$x^2 + y^2 - 2xy\cos\Delta = 1$$

Cette ellipse possède les axes propres a, b d'orientation $\theta$ :

$$\begin{aligned} a &= \frac{1}{\sqrt{2}\cos\frac{\Delta}{2}} \\ b &= \frac{1}{\sqrt{2}\sin\frac{\Delta}{2}} \\ \theta &= \frac{\pi}{4} \end{aligned}$$

En présence du champ THz, nous pouvons considérer qu'un déphasage supplémentaire $\delta$ s'applique à $E_y^{opt}$ par rapport à $E_x^{opt}$, avec $\delta = \frac{\omega}{c}L(\Delta n_x - \Delta n_y)$. Dans le cas isotrope, $\delta$ est simplement égal au déphasage introduit par la présence du champ entre les deux polarisations optiques. En remplaçant $\Delta$ par $\Delta + \delta$ dans les équations ci-dessus, on a alors une modification des axes propres de l'ellipse $\delta a$, $\delta b$ et de l'orientation de $\delta\theta$ :

$$\begin{aligned} \delta a &= \frac{\delta}{\sqrt{2}}\sin\Delta \\ \delta b &= \frac{-\delta}{\sqrt{2}}\cos\Delta \\ \delta\theta &= \frac{-\delta}{2}\tan\Delta \end{aligned}$$

On rappelle que ces variations $\delta a$ et $\delta b$ sont proportionnelles aux variations d'amplitude des deux polarisations optiques avec et sans champ.
Le principe de la détection est de mesurer les deux états de polarisation de l'onde optique ; ceci est réalisé grâce à un prisme de Wollaston, qui les sépare. Un détecteur de type photodiode auto-balancées délivre la différence des deux signaux divisée par leur somme. Avec une lame $\frac{\lambda}{4}$ entre le cristal EO et le Wollaston, nous pouvons régler la polarisation de telle manière qu'en absence de champ THz les amplitudes des deux polarisations soient identiques (le signal différence est nul). Le signal différence va nous renseigner sur la différence de phase, tandis que le signal somme permet de nous affranchir des fluctuations de la puissance reçue. Si on appelle $\xi$ le rendement des photodiodes (sensibles à l'intensité, c'est à dire au carré du champ) et $S_1$ et $S_2$ les signaux de ces diodes :

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = \frac{E_x^{opt\,2} - E_y^{opt\,2}}{E_x^{opt\,2} + E_y^{opt\,2}}$$

En absence de champ, on règle la lame $\frac{\lambda}{4}$ telle que :

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = \frac{\sin^2 \frac{\Delta}{2} E_{ox}^{opt\,2} - \cos^2 \frac{\Delta}{2} E_{oy}^{opt\,2}}{\sin^2 \frac{\Delta}{2} E_{ox}^{opt\,2} + \cos^2 \frac{\Delta}{2} E_{oy}^{opt\,2}} = 0$$

Finalement en présence de champ terahertz, ce rapport est égal à :

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = 2\delta \tan \frac{\Delta}{2} = 2\delta \frac{E_{oy}^{opt}}{E_{ox}^{opt}}$$

Dans cette configuration la mesure est proportionnelle au déphasage $\delta$ induit par le champ térahertz entre les deux directions de polarisation.

Dans le cas d'un cristal de ZnTe sous la coupe (110) on obtient :

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = \frac{4\pi}{\lambda} L \sqrt{\frac{7 - 5\cos(2\gamma)}{12}} r_{41} n^3 \frac{E_{oy}^{opt}}{E_{ox}^{opt}} E_{Thz}$$

Et dans le cas du cristal de ZnTe sous la coupe (111) :

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = \frac{4\pi}{\lambda} L \sqrt{\frac{2}{3}} r_{41} n^3 \frac{E_{oy}^{opt}}{E_{ox}^{opt}} E_{Thz} \tag{2.24}$$

Le signal détecté est proportionnel au champ térahertz. Dans le cas de la coupe (111), le coefficient de proportionnalité ne dépend pas de l'angle de la polarisation du champ térahertz $\gamma$, ce qui n'est pas le cas pour une coupe (110).
L'ensemble de ces calculs, tout comme l'étude bibliographique sur les expériences larges bande, montre la nécessité de recourir à cristaux de la trentaine de $\mu m$ d'épaisseur pour l'obtention de signaux de fréquences supérieures à la vingtaine de THz.

# Deuxième partie

# Présentation des bancs de spectroscopie THz-TDS réalisés

Nous avons conçu, développé, et optimisé plusieurs configurations expérimentales permettant de réaliser de la spectroscopie THz-TDS. Nous présentons dans le chapitre 3 les travaux que nous avons effectués dans le but de munir notre laboratoire d'un banc de spectroscopie très large bande. L'objectif étant d'explorer les signatures spectrales d'explosifs au-delà de ce qui est actuellement publié (jusqu'à 5 voir 7 THz au maximum).
Le chapitre 4 s'intéresse au développement d'un banc de spectroscopie à détecteur fibré permettant la mesure des signaux rétro-diffusés, génération et détection sont assurées par photoconduction ultra-rapide dans un dispositif à base de LT-GaAs. L'intérêt d'un tel banc est l'étude d'échantillon pour une incidence et un angle de détection quelconque, permettant une analyse des matériaux très proche des conditions réelles.

# Chapitre 3

# Développement d'un banc de caractérisation à très haute fréquence

Par banc très hautes fréquences, nous entendons un banc expérimental capable de couvrir une gamme de quelques THz à 20 - 30 THz, donc bien au-delà des bancs expérimentaux communément employés qui atteignent au mieux 5 à 7 THz. Nous décrirons dans un premier temps le montage nous avons retenu, puis nous présentons l'aspect équipement avec une description des matériels et instruments de mesure nécessaires au montage de l'expérience. Nous discuterons ensuite, à partir de calculs théoriques, les capacités de détection offertes par notre banc de spectroscopie en fonction des épaisseurs de cristaux et des matériels électroniques disponibles. Enfin nous présenterons les signaux obtenus avec cette nouvelle expérience.

## 3.1 Conception du banc expérimental

La figure 3.1 donne un synoptique du montage retenu pour élaborer notre spectromètre THz-TDS. Ce type de montage est traditionnel des expériences THz-TDS, toutefois au cours de notre travail, quelques modifications mineures furent apportées afin de tester d'autres configurations (détection ou émission par photoconducteur, incidence de la sonde optique non colinéaire au champ THz...). Nous disposons d'un système de précompensation à réseau ainsi que d'un autocorrélateur (de précision inférieur à la femtoseconde) qui ne sont pas représentés sur le schéma. Ils nous permettent d'obtenir des impulsions d'environ 20 fs sur les émetteurs et détecteurs.

**Descriptif du fonctionnement de l'expérience**

Dans un premier temps, le faisceau laser femtoseconde ($\lambda$ =800 nm) est séparé en deux par une lame séparatrice (2). La polarisation du premier faisceau est modifiable grâce à la lame $\frac{\lambda}{2}$ (13). Ce faisceau, utilisé pour la génération, est focalisé par la lentille (3) au cœur du cristal non-linéaire (4) afin d'optimiser le processus non linéaire de redressement

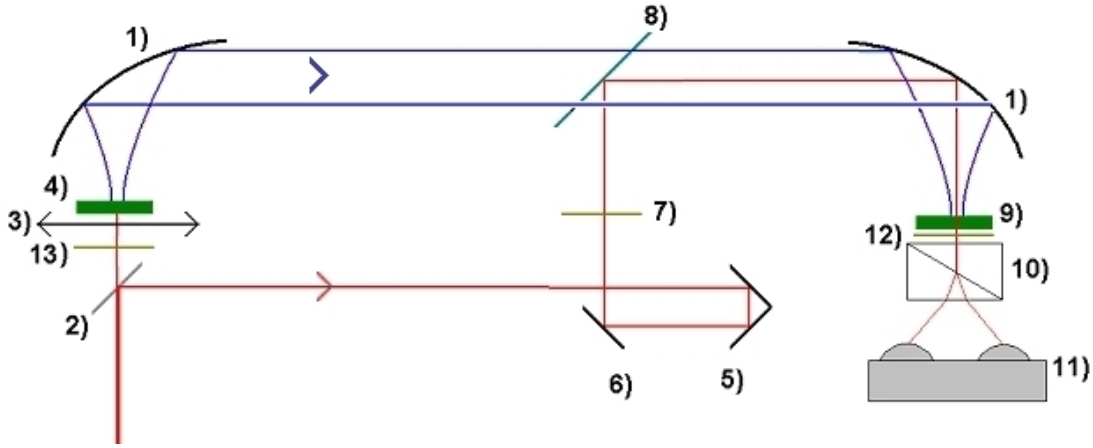



FIGURE 3.1: Schéma de principe de l'expérience de spectroscopie THz dans le domaine temporel. 1) Miroir métallique parabolique à focale hors axe, 2) Lame séparatrice, 3) Lentille, 4) Cristal non linéaire pour la génération, 5) Ligne à retard, 6) Miroir, 7) Lame $\frac{\lambda}{4}$, 8) Wafer de silicium haute résistivité (transparent au rayonnement THz, réfléchissant dans l'optique), 9) Cristal non linéaire pour la détection, 10) Prisme de Wollaston, 11) Jeu de deux photodiodes auto-balancées, 12) Lame $\frac{\lambda}{4}$ et $\frac{\lambda}{2}$, 13) Lame $\frac{\lambda}{2}$.

optique. L'onde THz obtenue est mise en forme par des miroirs paraboliques métalliques. Ce jeu de miroirs (1) permet de focaliser l'onde THz sur le détecteur. On remarque qu'il est aussi possible de faire des mesures en faisceau THz collimaté.

La détection est basée sur l'effet électro-optique (effet Pockels) : le champ THz incident modifie l'ellipsoïde des indices du cristal non-linéaire (9). L'état de polarisation du faisceau optique de mesure est rendu circulaire grâce à la lame $\frac{\lambda}{4}$ (7). Cet état est modifié en fonction du champ THz incident qui sera alors analysé pour remonter au champ THz. Cette analyse utilise un système construit à partir d'un prisme de Wollaston (10) qui, associé à un jeu de lames demi d'onde (7) et quart onde (12), permet de séparer les deux états de polarisation de l'onde optique, ceux ci sont alors mesurés par un système de deux photodiodes auto-balancées (11). La ligne à retard (5) permet l'échantillonnage temporel du signal, en décalant l'instant de la mesure par rapport à l'impulsion THz générée. Un amplificateur à détection synchrone est utilisé afin d'augmenter le rapport signal à bruit de l'expérience. Le filtre (8) transparent aux ondes THz et réfléchissant dans le visible, permet la superposition du faisceau THz et du faisceau optique de sonde. La mesure devant être automatisée, un système de gestion et d'acquisition piloté par ordinateur (carte d'acquisition et interface) a été développé au laboratoire.

Afin de générer et détecter des ondes THz ultra-large bande (>10 THz), nous avons principalement étudié la configuration à base de cristaux non-linéaire (voir chapitre 1.4). Cette configuration, "tout optique", utilise en émission le redressement optique et en détection l'échantillonnage électro-optique. Nous avons choisi le cristal de ZnTe aussi bien

pour l'émission que pour la détection. Le choix du ZnTe a été notamment motivé par la possibilité d'obtenir une grande bande passante, plusieurs dizaines de THz, grâce à la différence des indices THz et optique parmi les plus faibles, et limitée seulement autour de 5 THz du fait de la présence d'un phonon optique transverse (5,31 THz pour ZnTe) [91]. Différentes épaisseurs et orientations du cristal ont été étudiées afin de trouver le meilleur compromis bande passante-sensibilité pour cette configuration. L'emploi d'autres cristaux (par exemple GaAs, GaP, GaSe), pour lesquels les bandes d'absorption phononiques se produisent à d'autres fréquences, devrait permettre d'obtenir de manière complémentaire l'ensemble de la bande spectrale. Nous allons à présent présenter les calculs électro-optiques qui nous ont permis de valider l'utilisation du ZnTe pour la région 7 à 30 THz du spectre.

### 3.1.1 Etudes théoriques des capacités de l'expérience en détection

Ici nous présentons la chaîne exacte de détection. En évaluant le déphasage induit, nous déterminons la dynamique des signaux mesurés et mesurables (à l'ordre de grandeur près). Et nous conclurons sur la capacité de détection de l'ensemble de la chaine de détection.

#### 3.1.1.1 Dynamique de l'expérience

Ainsi, la détection est réalisée par un jeu de photodiodes auto-balancées (voir figure 3.2), qui nous permet d'effectuer une mesure de la variation de puissance entre les deux polarisations. Pour cette étude, nous nous intéressons à la coupe (111). Cette coupe présente l'avantage d'induire une modulation du même ordre de grandeur que pour la coupe (110), mais ceci quelque soit l'orientation du champ THz. Ainsi, ce qui sera calculé pour la coupe (111) constituera une limite basse en terme de détection pour la coupe (110). La différence de phase entre les polarisations en coupe (111) exprimée par l'équation 2.24 donne :

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} L \Delta_{n(E)} = \frac{2\pi}{\lambda} L \sqrt{\frac{2}{3}} r_{41} n^3 E_{Thz}$$

De plus, $\frac{\Delta P_{opt}}{P} = \frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = 2\delta \frac{E_{oy}^{opt}}{E_{ox}^{opt}}$ ce qui donne dans le cas où $E_{oy}^{opt} = E_{ox}^{opt}$ :

$$\frac{\Delta P_{opt}}{P_{opt}} = 2\delta$$

Ainsi pour la variation de puissance détectée :

$$\Delta P_{opt} = P_{opt} \frac{4\pi}{\lambda} L \sqrt{\frac{2}{3}} r_{41} n^3 E_{Thz}$$

La puissance équivalente de bruit $\sigma$ de notre détecteur "Nirvana" est de l'ordre de 3 pW / $\sqrt{\text{Hz}}$. Si on considère que le signal minimum détectable est deux fois supérieur

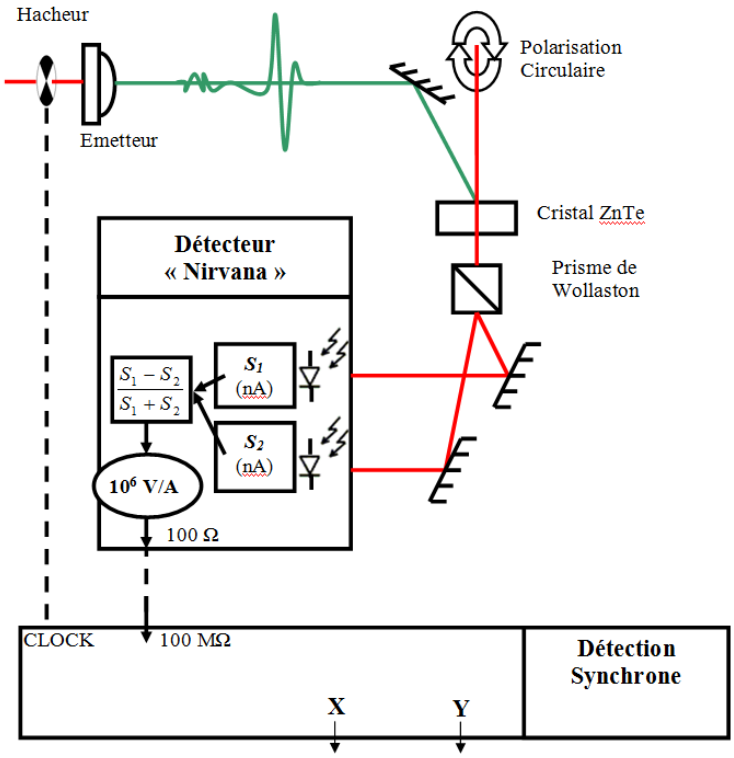



FIGURE 3.2: Principe de la chaine de détection.

à ce niveau de bruit, avec une fenêtre de moyennage temporelle $\Delta t$, on obtient pour la puissance minimale détectable :

$$\Delta Pmin_{mes} = 2\sigma\sqrt{\frac{1}{\Delta t}}$$

Le champ THz minimum détectable est alors égal à :

$$E_{THz}(min) = \frac{\sigma\lambda\sqrt{6}}{\sqrt{\Delta t}P_{opt}Lr_{41}n^3}$$

Dans notre expérience, $\lambda = 800$ nm, $r_{41} = 4$ pm/V, $n = 2.8$, $\Delta t = 100$ ms et $P_{opt} \approx 1$ mW. On obtient :

$$E_{THz}(min) \approx \frac{4,5}{L}\text{V/m}$$

Avec L en $\mu$m. Le choix du cristal est défini par le compromis entre la sensibilité de détection, qui varie comme $L$, et la bande passante qui varie comme $\frac{1}{L}$. Ainsi, pour une bande passante de 30 THz, il faut un épaisseur $L = 29$ $\mu$m, correspondant à un champ THz minimum détectable de 0,155 V/m. Les champ THz rayonnés dans de tels expériences étant de l'ordre du kV/m la dynamique de la mesure est de l'ordre de 38 dB.

#### 3.1.1.2 Chaîne électronique de détection

Le facteur de conversion de notre détecteur auto-balancé (Nirvana - New Focus) est de $0,52$ A/W et le gain transimpédance est de $10^6$ $\frac{V}{A}$, soit un facteur de conversion

équivalent de $5,2 \times 10^5$ V/W. L'impédance de sortie du détecteur est de 100 $\Omega$ et il sera branché sur l'entrée de la détection synchrone d'impédance 100 M$\Omega$ (>> 100 $\Omega$). Le signal issu du détecteur (Nirvana) peut être directement obtenu à partir de celui délivré par l'amplificateur à détection synchrone. Pour mesurer $Pmin_{mes} = 19$ pW, il faut pouvoir être sensible à 10 $\mu$V, et le calibre le plus bas de la détection synchrone est de 1 nV. La partie "électronique" permet de suivre la sensibilité offerte par le détecteur Nirvana.

### 3.1.2 Réponse électro-optique du ZnTe

En conséquence de l'étude précédente, il apparaît que le ZnTe est un bon candidat pour la détection de signaux THz aux fréquences élevées (jusqu'à 30 THz). Nous rappelons néanmoins la présence d'un phonon à 5,31 THz qui empêchera toute mesure autour de 5 THz. Afin de tenir compte de ce phonon, il est donc important de considérer l'absorption $\gamma$ des cristaux dans les calculs précédents. Cette absorption va dégrader la sensibilité de la mesure, qui tendra vers zéro au voisinage de la résonance phononique. Pour prendre en compte cette absorption, il suffit de prendre des valeurs complexes et non plus réelles pour l'indice de réfraction du cristal $n(\omega)$ dans l'équation 2.22. Cet indice s'exprime en fonction des pulsations des phonons transverse et longitudinal, ainsi :

$$n(\omega) = \sqrt{(1 + \frac{(\hbar\omega_{LO})^2 - (\hbar\omega_{TO})^2}{(\hbar\omega_{TO})^2 - (\hbar\omega)^2 - i\hbar\gamma\omega})\epsilon_\infty}$$

Si nous considérons qu'une partie du signal THz ne pénètre pas le cristal, alors l'équation 2.22 doit être multipliée par le coefficient de transmission de Fresnel de l'interface air-cristal, et on obtient :

$$G(\omega) = \frac{2}{n(\omega) + 1} \frac{c(e^{-j\omega L \frac{ng - n(\omega)}{c}} - 1)}{-j\omega L(ng - n(\omega))}$$

Nous retrouvons le formalisme proposé par A. Leitenstorfer [92]. L'amplitude et la phase du signal THz à la fréquence $\omega$ sont proportionnelles à la fonction $G(\omega)$. Ici, $\hbar\omega_{TO}$ est l'énergie du phonon transverse et $\hbar\omega_{LO}$ celle du phonon longitudinal.

Le coefficient $r_{41}$ n'est plus constant en fonction de la fréquence, notamment dans la zone du phonon où il varie de manière très importante, ce qui influence l'efficacité de la détection. Une expression analytique pour $r_{41}(\omega)$ en fonction de l'absorption s'écrit [92] :

$$r_{41}(\omega) = r_e[1 + C(1 - \frac{(\hbar\omega)^2 - j\hbar\omega\gamma}{(\hbar\omega_{TO})^2})^{-1}]$$

avec $C$ le coefficient de Faust-Henry.

La réponse complexe totale du cristal $R(\omega)$ en unité arbitraire est :

$$R(\omega) = G(\omega) r_{41}(\omega)$$

A titre d'exemple, nous avons tracé sur la figure 3.3 la réponse du détecteur en unité arbitraire, respectivement pour un cristal de ZnTe de 16,6 $\mu$m d'épaisseur et pour un cristal de GaP de 150 $\mu$m. Les caractéristiques du ZnTe et du GaP sont présentées dans le tableau 3.1. La région 4-6 THz n'est pas couverte par la détection à base de ZnTe. Nous

| | $\hbar\omega_{TO}(\mathrm{cm}^{-1})$ | $\hbar\omega_{LO}(\mathrm{cm}^{-1})$ | $\gamma(\mathrm{cm}^{-1})$ | $\epsilon_\infty$ | $C$ | $ng$ à 835 nm |
|---|---|---|---|---|---|---|
| ZnTe | 177 | 206 | 3.01 | 6.7 | -0.07 | 3.224 |
| GaP | 367.3 | 403 | 4.3 | 9.075 | -0.47 | 3.556 |

TABLE 3.1: Données caractéristiques des cristaux de ZnTe et de GaP.

avons aussi tracer la réponse du cristal de GaP. Le GaP possède un phonon à environ 12 THz, et nous avons cherché l'épaisseur de cristal donnant une fréquence de coupure à la fréquence de ce phonon. Cette épaisseur est de 150 $\mu$m nous permet d'obtenir un maximum de sensibilité pour la plage 0-8 THz. La réponse électro-optique du cristal est donnée en figure 3.3 de droite. Finalement, des mesures spectroscopiques d'échantillon qui seraient réalisées avec ces deux couples de cristaux, offriraient une caractérisation sur un domaine de 0,1 à 30 THz.

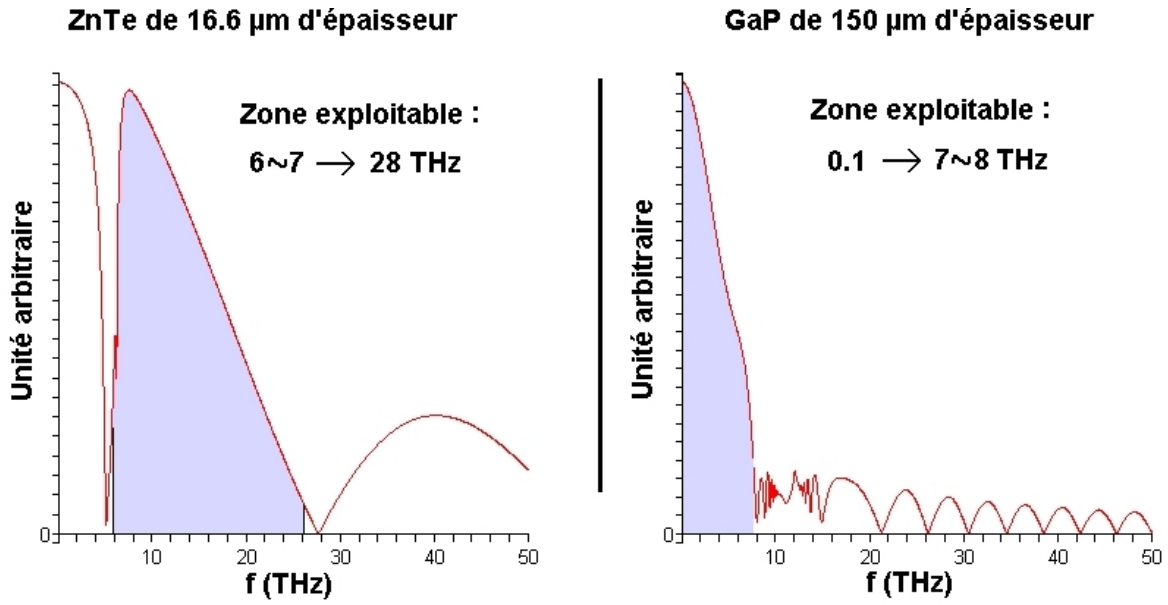



FIGURE 3.3: Réponse électro-optique théorique d'un cristal de ZnTe de 16,6 $\mu$m (à gauche), et celle d'un cristal de GaP de 150 $\mu$m (à droite).

## 3.2 Résultats obtenus

Nous présenterons ici quelques uns des résultats expérimentaux obtenus avec les diverses configurations explorées durant cette thèse. Nous allons en premier lieu traiter

l'expérience où émission et détection sont assurées par respectivement la rectification optique et l'effet Pockels au sein de cristaux de ZnTe. Puis nous nous intéresserons à des configurations "hybrides" ou une antenne photo-conductrice viendra assurer tantôt la détection, tantôt l'émission.

### 3.2.1 Génération et détection par effet non linéaire dans ZnTe.

#### 3.2.1.1 Disposition expérimentale et résultats

Nous avons ici assuré la génération par un cristal de ZnTe coupe (110) (1 mm et 200 $\mu$m d'épaisseur) et la détection par un cristal de ZnTe coupe (111) (pour 1 mm et 200 $\mu$m d'épaisseur). L'expérience est en configuration "non-colinéaire", c'est à dire que faisceau sonde et onde THz ne possède pas le même axe de propagation dans le cristal. La figure 3.4 représente les signaux temporels ainsi que leurs composantes spectrales. Cette configuration présente de nombreux avantages par rapport au cas colinéaire notamment en nous épargnant l'utilisation de la lame assurant la superposition THz - optique. Ainsi cette configuration présente une dynamique supérieure (pas de perte de signal THz par réflexion sur la lame) et elle n'a que peu d'influence sur le spectre observé. La légère perte d'interaction du fait de la non-colinéarité des faisceaux (environ 15° entre les faisceaux) est en effet négligeable ; d'une part car le cristal est fin, d'autre part car on améliore l'accord de phase dans le cristal (l'indice de réfraction dans le domaine optique est plus faible que dans le domaine THz, mais le faisceau optique parcours une distance plus grande).
On constate sur les signaux temporels (normalisés) que l'impulsion THz est d'autant plus courte que les cristaux mis en œuvre (en émission et / ou détection) sont fins. Toutefois concernant les composantes fréquentielles, nous n'observons pas d'amélioration notable de la bande passante. Nous observons bien une amélioration de la dynamique pour les fréquences comprises entre 1 et 2-3 THz pour le couple de cristaux fin (200 $\mu$m-200 $\mu$m) mais aussi une coupure plus raide conduisant à un spectre de largeur similaire. Nous rendons compte de ce comportement à l'aide de la partie théorique (voir figure 3.14 dans le paragraphe 3.2.4).

#### 3.2.1.2 Contrôle de la polarisation et optimisation de l'expérience

Ici nous présentons la procédure d'optimisation des angles (de la polarisation optique de pompe et de l'angle de rotation du cristal d'émission. Nous rappelons qu'en détection l'utilisation de cristaux ZnTe (111) sondés par un faisceau optique de polarisation circulaire, conduit à une excentricité de la polarisation. Cette excentricité est constante quel que soit l'angle de la polarisation THz, ainsi une simple rotation du cristal de détection

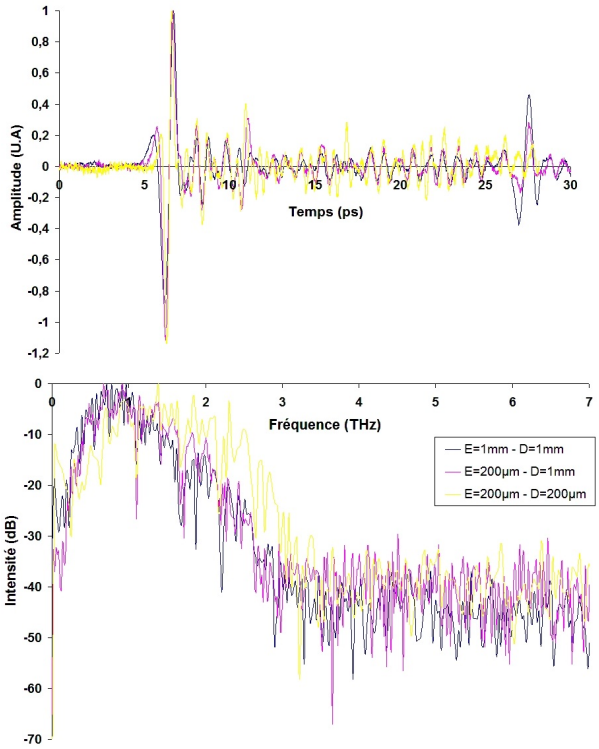



FIGURE 3.4: Signal temporel et amplitude du spectre, dans le cas d'une génération (E) et détection (D) pour différente épaisseur du cristal de ZnTe.

permet d'optimiser la détection sur le maximum global.

L'utilisation de cristaux (110) en émission excité par une onde de polarisation linéaire nécessite plus de précaution pour obtenir un signal optimisé. Nous avons mesuré en fonction de l'angle de la polarisation de la pompe optique $\theta$ et de l'angle $\alpha$ de rotation du cristal d'émission coupe (110) (voir figure 2.1) l'amplitude du champ sous la polarisation "s" en plaçant un polariseur à grille (grille en position horizontale) sur le parcours THz. La détection est aisément optimisée en trouvant l'angle idéal du cristal de détection (111) permettant de mesurer la composante de polarisation "s", elle n'est plus touchée durant toute la mesure. Nous obtenons le résultat de la figure 3.5. Ce dernier est en accord avec le calcul effectué pour les cristaux de type $\overline{4}3m$ qui conduit à l'équation suivante (voir annexe B pour le détail du calcul et la figure 3.6 pour la représentation graphique de l'amplitude de la polarisation "s" en fonction des angles de polarisation optique et de rotation de cristal.) :

$$E_s \propto -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)(2\sin(\alpha)\cos(\theta+\alpha)+\cos(\alpha)\sin(\theta+\alpha))$$

On peut remarquer que les lignes de crête de la courbe 3.6 ne sont pas de simples lignes droites comme cela est le cas pour le module du champ total (voir figure 2.2). En effet,

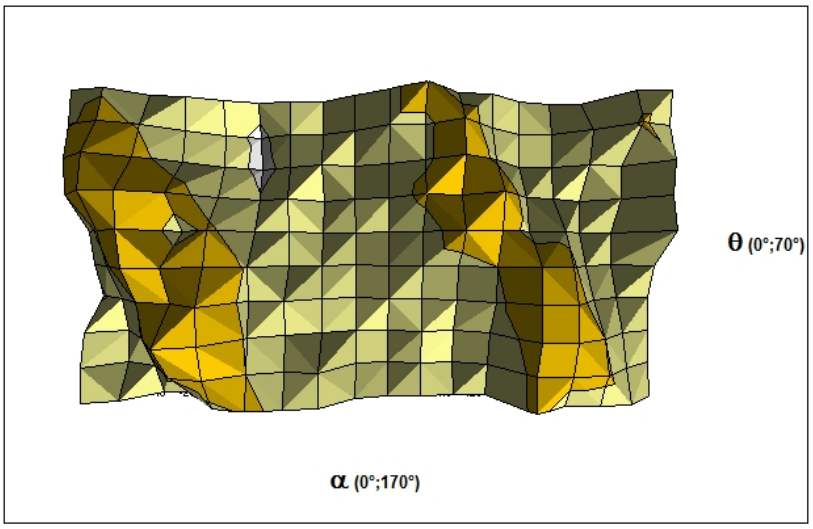



FIGURE 3.5: Valeur crête à crête du signal THz de polarisation "s", en fonction des angles de la polarisation optique $\theta$ et de rotation $\alpha$ du cristal. La valeur des angles ne correspond pas aux valeurs absolues dans le repère du laboratoire (nous ne connaissons pas les axes des cristaux).

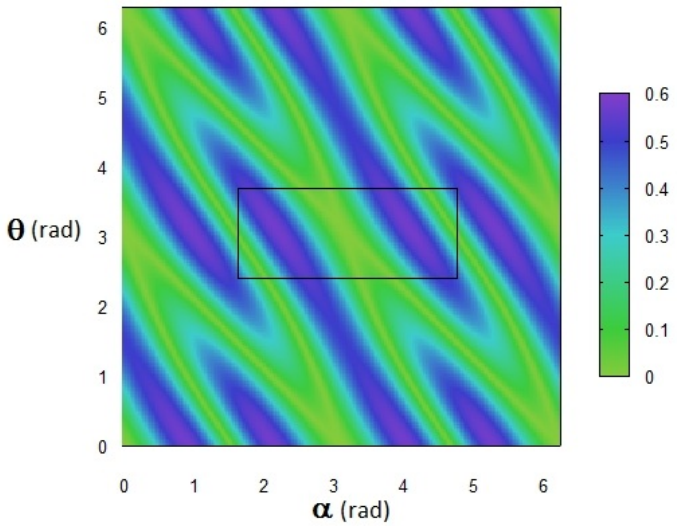



FIGURE 3.6: Amplitude (en valeur absolue) théorique du signal THz de polarisation "s", en fonction des angles de la polarisation optique $\theta$ et de rotation $\alpha$ du cristal. La valeur des angles correspond à celle décrite en figure 2.1. Le carré central repère l'un des lieux possible pour les angles $\alpha$ et $\theta$ de la courbe 3.5.

sur la figure 3.6 les lignes de crête suivent une forme légèrement en "zigzag", s'écartant ainsi de la tendance dominante en $\theta = 2\alpha + c$ (voir figure 3.7).
Une stratégie efficace d'optimisation de la génération à une polarisation donnée, et d'effectuer (une fois un premier signal obtenu) de petites rotations ($\approx 10°$) de la polarisation optique et du cristal telles que de $\Delta\theta = 2\Delta\alpha$. Autrement dis la lame $\frac{\lambda}{2}$ doit être tournée dans le même sens et d'une valeur égale à celle du cristal. On reste ainsi au voisinage de la ligne de crête (la figure 3.7 réprésente les points de crête expérimentaux, les lignes représentent les tendances générales). De petites corrections de l'une des rotations permet de se placer directement sur la crête, et ainsi de proche en proche, de trouver sans ambiguïté le maximal global de génération à la polarisation de la détection. La figure 3.7 représente dans la même configuration que pour la figure 3.5 un parcours de cette ligne de crête par la méthode ici mentionnée. On retrouve bien l'allure en "zigzag" pour la ligne de crête observée sur la figure 3.5 et 3.6. Ces mesures nous assurent le passage par le maximum global de génération à la polarisation "s".

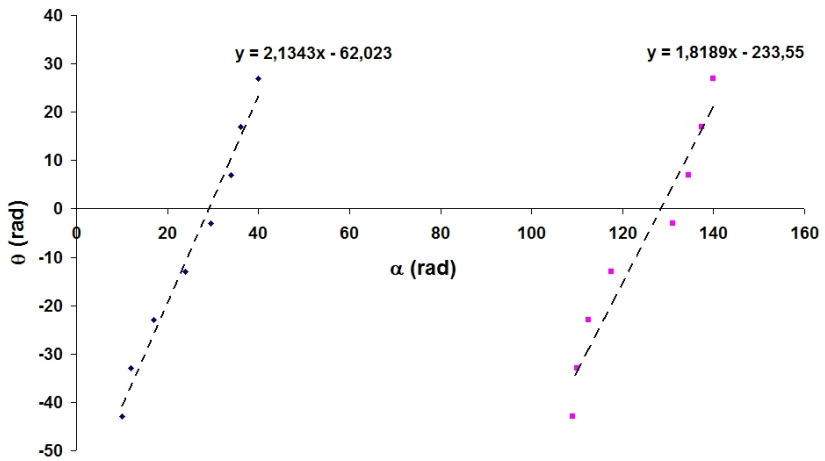



FIGURE 3.7: Couples de points expérimentaux ($\alpha$,$\theta$) permettant de suivre la ligne de crête passant par le maximum global.

#### 3.2.1.3 Remarque sur la détection Pockels

Du bruit et un offset au niveau du signal de sortie de la détection synchrone ont été constatés, et cela dans toutes les expériences où l'effet Pockels était utilisé pour assurer la détection. J'ai fait le constat que la détection est très sensible à tout rayonnement cohérent avec le faisceau sonde, conduisant à la nécessité de filtrer le faisceau optique de pompe. En effet, une partie non négligeable de la pompe optique parvient dans la détection,

rendant toute mesure impossible. Dans ce paragraphe, nous présentons des acquisitions dans la configuration 200 $\mu$m-200 $\mu$m avec des filtres de nature différente (voir figure 3.8). Le premier filtre est une lame de téflon de 5 mm d'épaisseur et le second une feuille de papier blanc 80g (type papier d'imprimante). Le polyéthylène noir (type sac poubelle) est un très bon candidat pour filtrer la pompe optique, cependant la puissance optique à dissiper (de l'ordre de 200 mW/cm$^2$) est trop élevée pour ce matériaux thermoplastique, et il se déforme rapidement.

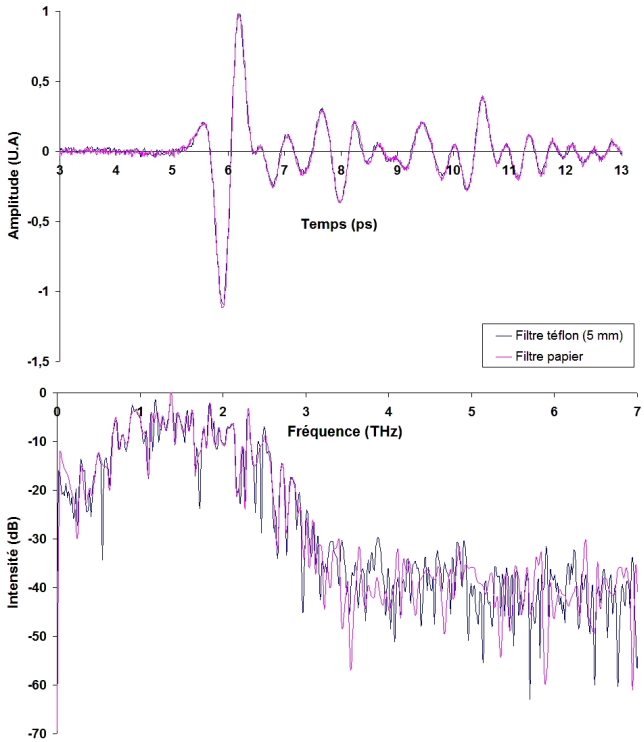



FIGURE 3.8: Signal temporel et amplitude du spectre, pour 3 types de filtres différents (téflon-papier-polariseur THz).

La figure 3.8 nous montre une réponse spectrale et temporelle identique pour le filtre papier et téflon. Ces 2 filtres (papier et téflon) étant de nature très différente, et les signaux mesurés étant rigoureusement identiques, nous pouvons dire que la bande passante présentée n'est en rien affectée par leur présence. Nous préférons toutefois l'utilisation de la feuille de papier qui ne donne pas lieu à des rebonds sur la trace temporelle.

### 3.2.2 Génération par rectification dans ZnTe et détection photoconducteur LT-GaAs.

Nous avons montré que de nombreuses configurations expérimentales étaient possibles pour la génération très large-bande (voir section 1.4), notamment la possibilité d'utiliser des antennes photoconductrices. Dans cette partie, nous présentons les mesures réalisées

avec une antenne photoconductrice en détection, la génération étant assurée par rectification optique dans le ZnTe. Une première mesure s'intéresse à l'évolution des signaux en fonction de l'épaisseur du cristal de ZnTe utilisé en émission. Puis nous regardons l'influence de la lentille hémisphérique de silicium montée sur l'antenne photoconductrice en effectuant des mesures avec et sans lentille. Finalement, nous réalisons une mesure en retournant l'antenne de détection (configuration "backward"). Cette configuration offre un accès direct pour l'onde THz à la zone de détection. Ainsi l'onde THz ne traverse ni lentille, ni substrat. Ce type de configuration permet de s'abstraire totalement des éventuelles absorptions dans le silicium ainsi que des phonons dans le substrat de GaAs, en revanche, le diagramme de rayonnement (et donc l'efficacité de détection) ainsi que la focalisation du champ THz sont moindres. En théorie, cette configuration offre des bonnes capacités de détection pour les hautes fréquences mais une sensibilité plus faible. Pour la configuration "backward", il nous faut déclencher l'antenne de détection par la même face de l'antenne que celle recevant l'onde THz, la configuration est alors de type colinéaire, et pour superposer le faisceau sonde à l'onde THz, nous utilisons un "wafer" de silicium haute résistivité (voir figure 3.9). Nous observons sur le graphique 3.10 les mesures effec-

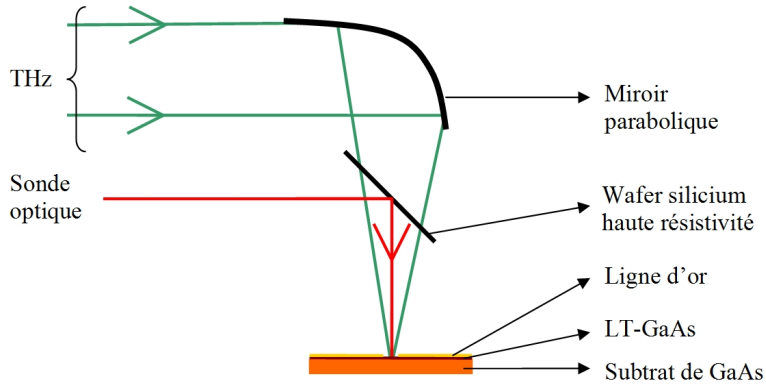



FIGURE 3.9: Schéma de principe de la détection en configuration "backward".

tuées pour différentes tailles de cristaux d'émission. On constate que les cristaux de 200 $\mu$m nous permettent de gagner légèrement sur la bande-passante (coupure à 4 THz au lieu de 3,5 THz). De plus, cette mesure nous permet de comparer les cristaux de différents fournisseurs, et les cristaux provenant de la société IngCrys présentent le meilleur rapport signal/bruit. A titre de comparaison, la densité spectrale de puissance moyenne entre 5 THz et 10 THz est de -48,86 dB pour le cristal IngCrys de 200 $\mu$m et de -46,71 dB pour le cristal ABCVision de même épaisseur. Une perte de 2.15 dB sur la dynamique est donc observée pour deux cristaux similaires de provenances différentes.

Afin de contrôler que la lentille de silicium haute résistivité placée sur l'antenne de

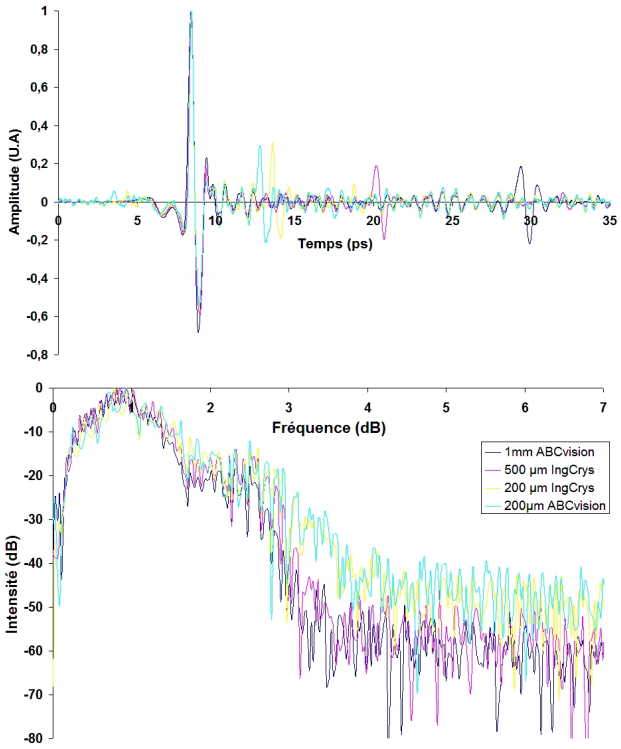



FIGURE 3.10: Mesure avec détection assurée par antenne photoconductrice LT-GaAs et émission par rectification optique dans ZnTe coupe (110) pour 1 mm d'épaisseur (fournisseur ABCVision), 500 $\mu$m (IngCrys), 200 $\mu$m (IngCrys), 200 $\mu$m (ABCVision).

détection ne détruit pas le signal, nous l'avons retirée et procédé aux acquisitions de la figure 3.11. Nous n'observons aucune modification sur la bande passante, en revanche le rapport signal sur bruit est dégradé dans le cas sans lentille. On constate une perte de sensibilité aux basses fréquences certainement dû à la baisse de focalisation causé par l'absence de la lentille, cela ayant pour effet de décaler le maximum de sensibilité vers les hautes fréquences. Comme nous présentons des courbes normalisées au maximum cela explique le décalage vers le haut de la courbe "sans lentille".

La littérature suggère que la configuration "backward" pour les antennes photoconductrices (configuration ou l'onde THz ne traverse aucun substrat) est la configuration optimale pour la génération et/ou détection très large bande, nous avons donc monté cette l'antenne de détection sous cette configuration pour nous assurer que la perte des hautes fréquences ne venaient pas du substrat de GaAs, le résultat obtenu pour le cristal le plus fin (200 $\mu$m) est donné en figure 3.12. La bande passante observée est toutefois identique au cas précédant.

Ces résultats suggèrent que les fréquences supérieures à 4 THz ne sont pas générées dans le cristal de 200 $\mu$m. En effet, que ce soit en détection Pockels ou photoswitch (sous

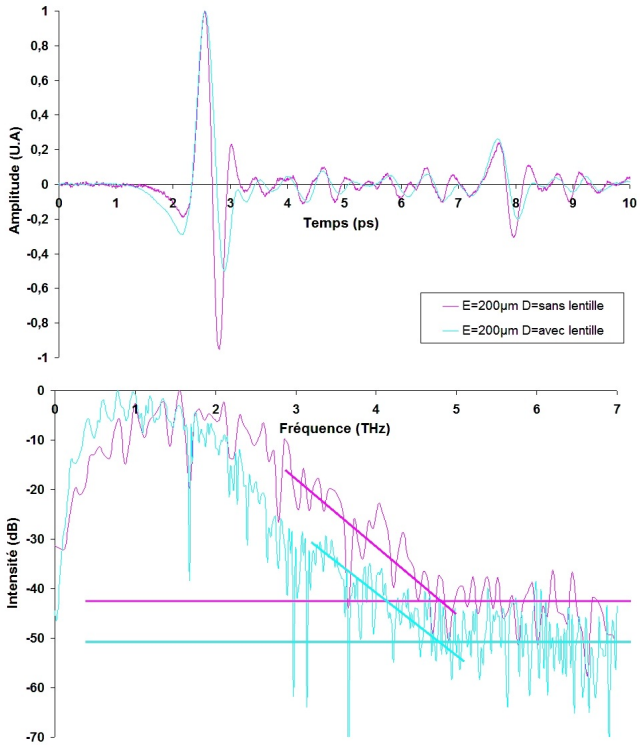



FIGURE 3.11: Comparaison de l'effet de la lentille de focalisation sur la zone efficace de détection pour les cristaux de provenance IngCrys 200 $\mu$m.

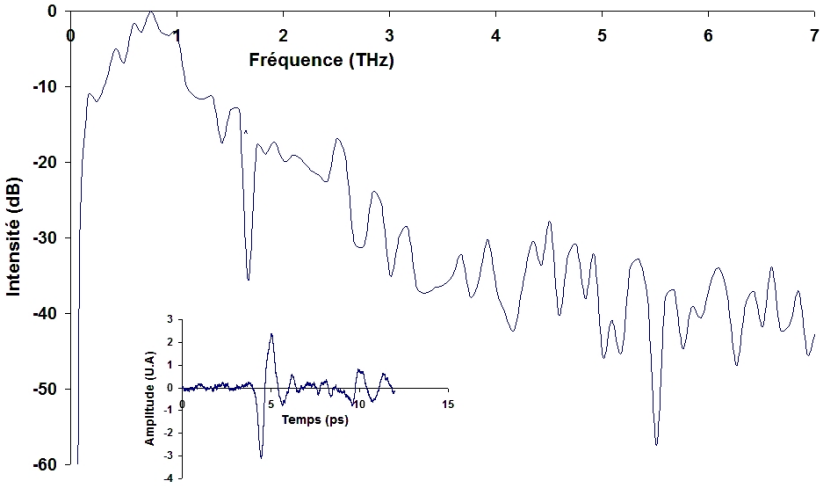



FIGURE 3.12: Cristal de génération ZnTe (110) 200 $\mu$m IngCrys et antenne de détection en configuration "backward", sans lentille.

toutes les configurations possibles), nous ne parvenons jamais à obtenir des signaux de fréquences supérieures à 4 THz, suggérant que l'émission ne permet pas de les obtenir. Nous montrerons en partie 3.2.4 que cela est en accord avec la théorie.

### 3.2.3 Génération avec le photoconducteur LT-GaAs et détection par effet Pockels dans ZnTe.

Le temps de vie des porteurs dans le LT-GaAs est de l'ordre de 0,5 ps pour notre antenne photoconductrice. Cela conduit, dans le domaine temporel pour le signal mesuré, à la convolution entre signal THz et la fonction de densité de porteurs dans le détecteur. Le signal mesuré est donc fortement moyenné par ce temps de réponse. L'effet de ce moyennage temporel se traduit par une perte de sensibilité de détection aux hautes fréquences. Toutefois, il est connu que cette perte est beaucoup moins importante dans le cas de la génération. En effet, le front montant très rapide du courant photo-généré dote le spectre de l'onde THz de composantes fréquentielles élevées. Nous avons ainsi voulu tester si l'utilisation de l'antenne en émission avec les cristaux de ZnTe permet d'obtenir un signal plus large-bande. Nous avons donc placé l'antenne photoconductrice en émission en configuration classique, et en détection les cristaux de ZnTe (sondé en configuration non-colinéaire) pour les différentes épaisseurs que nous possédons. Ce résultat est présenté en figure 3.13.

Nous ne constatons pas de modification notable du spectre qui s'étend jusqu'à 4,5 THz. Seule la perte de dynamique lorsque les cristaux s'amincissent peut être observée. Le cristal de 31 $\mu$m a été aminci par polissage mécanique d'un cristal de 100 $\mu$m collé sur une lame de verre. Lors de ce traitement, le cristal a subit de très importants dommages, totalement fissuré, seules certaines zones (de l'ordre du mm$^2$) restant exploitables ; cela rend les optimisations difficiles et toutes conclusions sur ce cristal hasardeuses. En revanche, comme aucune modification notable du spectre n'est observé pour les différents cristaux, nous pouvons conclure que l'antenne photoconductrice ne génère pas de fréquences supérieures à 4,5 THz.

### 3.2.4 Discussion

Dans cette partie, je vais tenter de justifier les résultats expérimentaux obtenus. Mais aussi je souhaite partager l'expérience que j'ai acquise pour la conception de ce type de banc de spectroscopie.

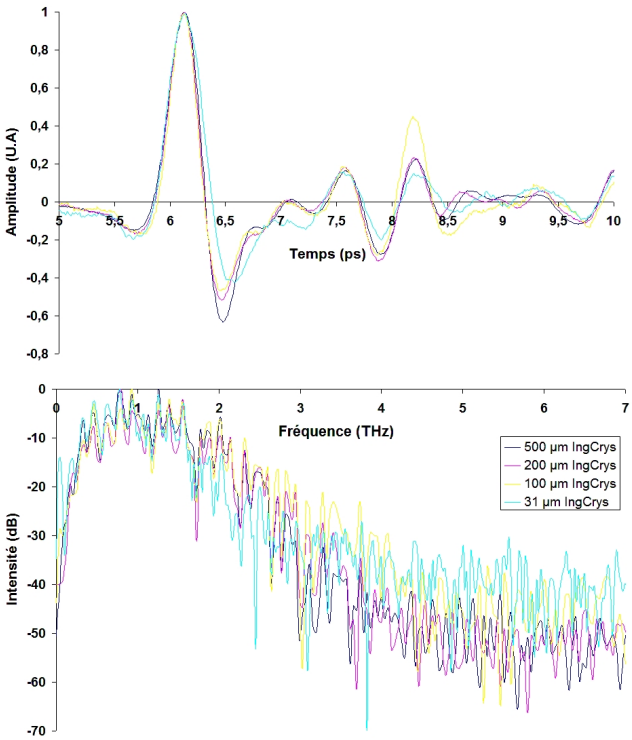



FIGURE 3.13: Etude de la génération par antenne photoconductrice, détection assurée par effet Pockels dans ZnTe (110) (500 $\mu$m - 200 $\mu$m - 100 $\mu$m - 31 $\mu$m).

#### 3.2.4.1 Accord avec la théorie.

Je présente ici les hypothèses et simplifications que nous avons effectuées en vue d'obtenir un code permettant la simulation des spectres générés. Ainsi l'équation 2.12 de la partie théorique est réécrite sous la forme :

$$A^T_{\Omega_i}(L) = \frac{\Omega}{2n(\Omega)c} \sum_{j,k=1,1}^{3,3} \aleph^{(2)}_{i,j,k}(\Omega, \omega+\Omega, \omega) A_{\omega+\Omega_j} A^*_{\omega_k} \int_0^\infty \Big(\frac{e^{-i\Delta kL}-1}{\Delta k}\Big) \mathrm{d}\omega$$

Hyp : Nous faisons l'hypothèse que $\aleph_{i,j,k}(\Omega, \omega+\Omega, \omega)$, $A_{\omega+\Omega_j}$ et $A^*_{\omega_k}$ sont des constantes par rapport à $\omega$, permettant de sortir ces termes de l'intégrale. Compte-tenu de la largeur limitée des spectres expérimentaux THz, et de la durée de l'impulsion optique, cette hypothèse est correcte pour le terme d'autocorrélation $(A_{\omega+\Omega_j} A^*_{\omega_k})$. L'hypothèse est valable pour $\aleph_{i,j,k}(\Omega, \omega+\Omega, \omega)$ uniquement loin des résonnances phononiques, ce qui sème le doute de la validité du modèle proposé vers les 5,3 THz. Toutefois, même si le coefficient non linéaire subit une exaltation au niveau des résonances, nous pensons que la réponse est d'avantage gouvernée par le désaccord de phase. On peut alors montrer que :

$$A^T_{\Omega_i}(L) \propto \frac{\Omega L}{n(\Omega)} \int_0^\infty e^{-i\frac{\Delta kL}{2}} \mathrm{sinc}(\frac{\Delta kL}{2}) \mathrm{d}\omega \tag{3.1}$$

L'équation 3.1 est utilisée pour tracer les courbes d'émission par un cristal de ZnTe de différentes épaisseurs (voir figure 3.14). Les expressions pour les indices optiques et THz sont pris dans la référence [93]. L'intégration est réalisée sur le domaine optique correspondant à la largeur à mi-hauteur de la puissance d'une impulsion pompe de 12 fs.
On constate que les spectres théoriques sont de largeurs spectrales similaires à nos résultats expérimentaux. Cette cohérence entre théorie et expérience, suggère à la fois que les hypothèses théoriques sont correctes et que nos mesures sont bonnes. Toutefois, on observe un décalage du maximum de génération vers les basses fréquences par rapport à la théorie. Ce décalage (déjà observé et analysé par S. Vidal [94]) s'explique par une modification de l'accord de phase aux fortes intensités de pompe optique. La création de porteurs libres par absorption à 2 photons conduit à une modification de l'indice complexe du ZnTe et donc de l'accord de phase.

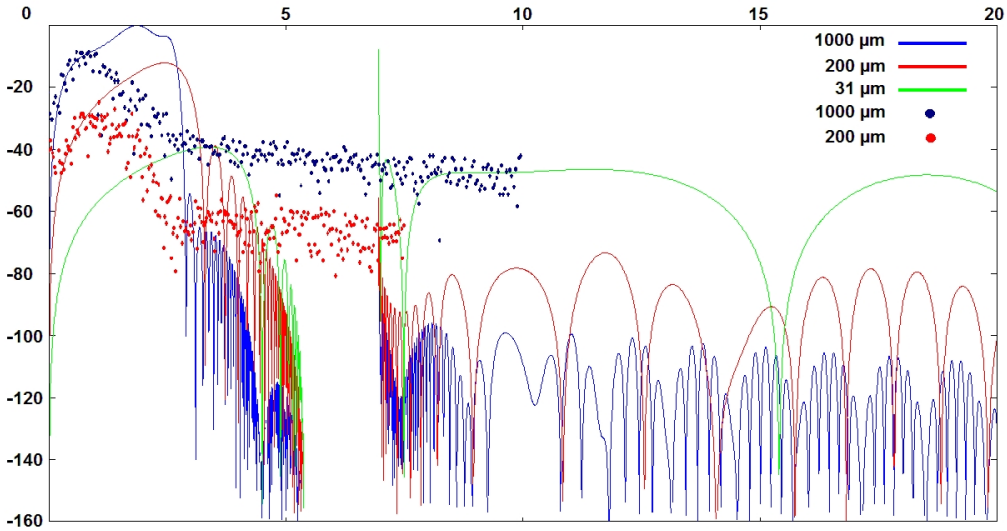



FIGURE 3.14: Spectre par application de l'équation 3.1 pour un cristal de ZnTe de différentes épaisseurs, et donnée expérimentales.

#### 3.2.4.2 Commentaires sur les méthodes de génération et de détection.

A présent, je vais insister sur les points expérimentaux incontournables pour l'élaboration de ce type d'expérience. En premier lieu, nous pouvons dire que l'utilisation en détection comme en génération d'antennes photoconductrices ne présente pas de difficultés particulières. Le "bon" rendement de conversion optique-THz (en génération typiquement de l'ordre du $\frac{\mu W}{mW}$) et THz-courant (en détection $\frac{\mu W}{nA}$) permet d'obtenir des signaux d'une dynamique très élevée (le bruit sur les signaux étant faible). Concernant la génération par rectification optique, le principe, tout comme la mise en œuvre, sont des plus simples.

Ici le faible rendement peut aisément être compensé par la possibilité d'utiliser une forte intensité de pompe. En défocalisant le faisceau optique de pompe, on s'assure de ne pas endomager le cristal. Il est ainsi possible d'obtenir des signaux d'amplitude crête à crête très bonne. Un autre avantage réside dans la possibilité de gérer de manière très aisée la polarisation de l'onde THz émise.
Les plus grosses difficultés expérimentales ont été rencontrée pour la détection par effet Pockels. Dans ce cas il est impératif d'empêcher tout faisceau diffusé (de la pompe ou de la sonde) de pénétrer la détection. Une précaution utile et de prendre garde à la position du hacheur optique, en s'arrangeant pour que le spot laser sur les pales du hacheur soit du coté opposé du détecteur. Dans le cas d'une génération par rectification optique un filtre est nécessaire pour couper l'onde pompe, et l'empêcher de venir interférer dans le dispositif de détection. Un autre aspect très important de ce type de détection est la nécessité absolue de réduire au maximum la zone THz sondée par le faisceau. La raison n'est pas pleinement identifiée, et nous abordons ce point plus en détail dans le paragraphe suivant.

#### 3.2.4.3 Détection Pockels, et zone d'interaction

Nous avons étudié l'incidence sur l'amplitude du signal d'une variation de la zone sondée par le faisceau optique. Pour cela deux techniques ont été mises en œuvre. La première est l'utilisation d'un diaphragme après le cristal (entre cristal et prisme de Wollaston) afin d'envoyer dans le détecteur qu'une partie limitée du faisceau sonde. La seconde est l'utilisation d'une lentille avant le cristal pour focaliser la sonde dans ce dernier, une autre lentille après le cristal permet d'obtenir un système afocal (voir figure 3.15).
La technique utilisant le diaphragme permet de mieux étudier l'effet de la zone de dé-

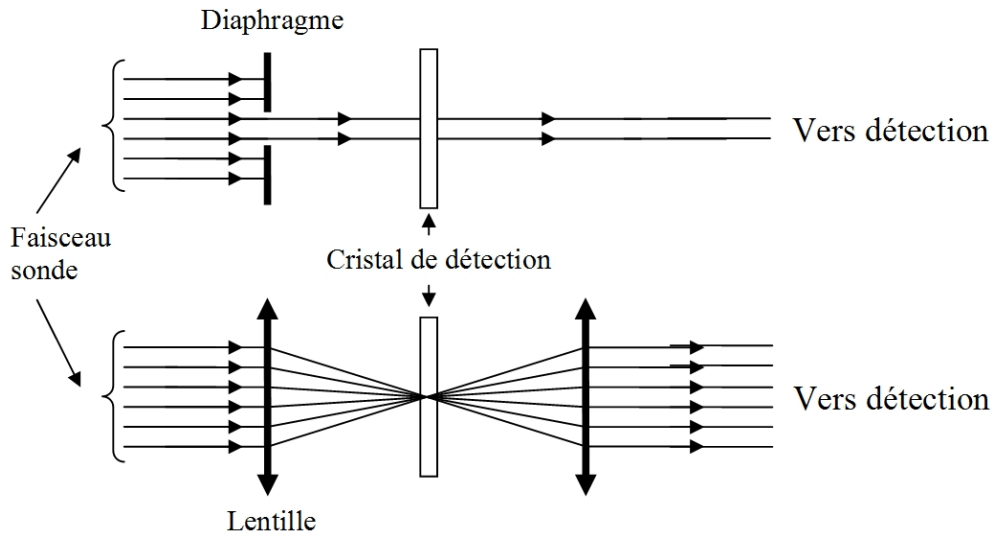



FIGURE 3.15: Principe des 2 techniques utilisées pour limiter la zone de détection sondé par le faisceau optique.

tection sur le signal mesuré. On constate qu'en augmentant le diamètre d'ouverture du diaphragme (une partie plus large du faisceau optique pénètre la détection) on augmente le niveau de bruit sur le signal. En revanche, le signal n'augmente pas et a même tendance à diminuer. Nous expliquons ce phénomène (de disparition du signal avec l'augmentation de la zone sondée) par des modulations de l'indice du cristal différentes suivant les régions. A titre d'exemple, un calcul basé sur un tracé de rayon, montre que pour un miroir de distance focale hors axe de 4 pouces et éclairée par un pinceau de rayons parallèles d'un diamètre de 5 cm écarté de 1° de l'incidence idéale, un retard temporel de 189 fs est observé au niveau du cristal entre les rayons les plus "rapides" et les plus "lents". Cette dispersion atteint 400 fs pour une incidence de 2° (voir figure 3.16).

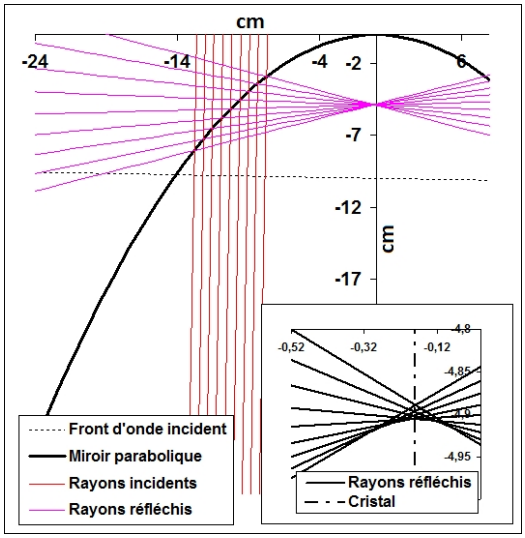



FIGURE 3.16: Tracé de rayons pour un miroir hors axes de focale 2 pouces (4 pouces de focale hors axe) éclairé par un pinceau parallèle de 5cm de diamètre d'incidence 1°.

On constate donc qu'une légère aberration géométrique peut facilement conduire à une modulation de l'indice du cristal très différente suivant le lieu considéré. Ainsi en augmentant le diamètre de la sonde, le bruit augmente (car la puissance détectée augmente), mais le signal n'augmente pas de manière proportionel (voir diminue pour de larges zones de détection). Conduisant à une déterioration du rapport signal/bruit. Les deux techniques (lentilles et diaphragme) se sont avérées tout à fait similaire pour obtenir un signal clair. Notre préférence va à l'utilisation de la lentille, elle permet d'avoir une zone de détection très limitée spatialement. De plus, la lentille de focalisation du faisceau sonde se retrouve dans de nombreuses publications, même si son intérêt n'y est pas explicité, cela nous indique que son effet positif sur le signal est récurrent. A ma connaissance, il n'y a pas d'explication claire de son utilité, et l'idée que l'aberration géométrique soit la cause de cet effet me parait satisfaisante. De plus, dans l'objectif d'une expérience très large bande,

cet aspect géométrique deviendra de plus en plus critique, et un grand soin devra être apporté aux alignements. Il n'en reste pas moins qu'il est indispensable de réduire au maximum la zone du cristal sondée en vue d'obtenir un signal mesurable.

#### 3.2.4.4 Mesure du coefficient de Pockels

➢ **Recherche du $r_{41}$ du cristal (111) de 1 mm**

Ici nous allons présenter les deux méthodes expérimentales pour obtenir le $r_{41}$ d'un cristal de ZnTe (111). Pour ce faire nous soumettons un champs électrique alternatif intense au sein du cristal. Cela à pour effet d'introduire une biréfringence dans le cristal initialement isotrope (effet Pockels). Une onde optique de polarisation circulaire nous sert de sonde pour remonter à l'ellipse des indices du cristal sous champ en mesurant l'état de polarisation devenu légèrement elliptique. Pour cela, nous mesurons la polarisation ($s$) du champ optique à l'aide d'une photodiode. Le signal électrique (courant) délivré par la photodiode est filtré par un filtre passe haut pour recueillir la modulation à la fréquence d'exitation du cristal à l'aide d'un analyseur de spectre, la valeur moyenne étant observée grâce à un oscilloscope (cf. 3.17).

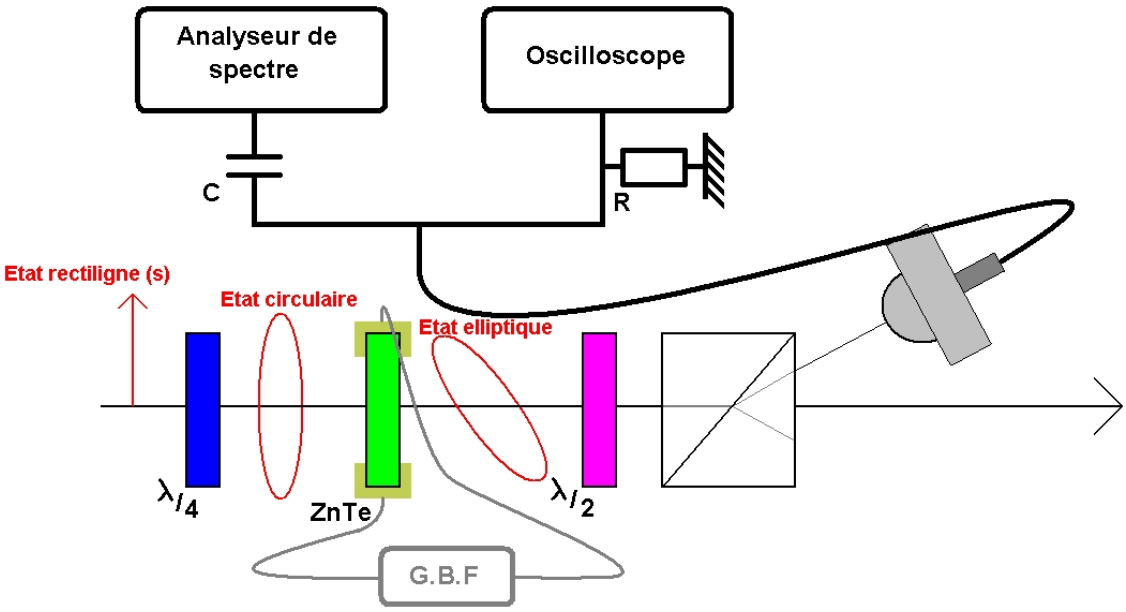



FIGURE 3.17: Schéma de l'expérience.

Avec la lame $\frac{\lambda}{4}$ nous obtenons un état de polarisation circulaire pour le faisceau optique de sonde à 800 nm. Nous appliquons entre les électrodes une tension de modulation à la fréquence de quelques centaines de KHz (474 KHz dans le cas présent). Nous optimisons l'orientation de l'ellipse induite du faisceau optique de sonde avec la lame $\frac{\lambda}{2}$ afin d'avoir le maximum de modulation.

La photodiode utilisée (DET110) est très rapide, à la fréquence de 474 KHz son rendement

peut être considéré comme égal à celui en continu. Le champ électrique de modulation dans le cristal est généré à l'aide d'une tension crête à crête Vpp appliquée sur les électrodes espacées de 3 mm (cf. 3.18).

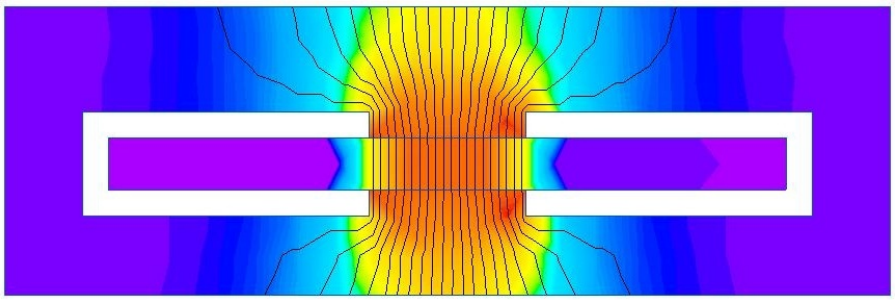


FIGURE 3.18: Allure du champ électrique avec 1 V de tension entre électrodes (bloc blanc), ligne équipotentielles en noire, intensité du champ en niveau de couleur.

L'expérience consiste à mesurer la profondeur de modulation en fonction du champ de modulation.
La photodiode délivre un courant possédant une valeur moyenne $I_{MOY}$ (dont l'image est affichée sur l'oscilloscope) et une composante alternative $I_{mod}$ (affichée sur analyseur de spectre).
L'analyseur de spectre délivre un signal valant $S_{spectrum}$ en dBm soit :

$$S_{spectrum} = 10 \log 1000 R_{spectrum} I_{mod}^2$$

Comme la photodiode délivre un courant lié par la puissance optique $P_{opt}$ et le rendement $\eta$ tel que :

$$I_{photodiode} = \eta P_{opt}$$

Soit pour le signal mesuré à l'analyseur de spectre :

$$S_{spectrum} = 10 \log 1000 R_{spectrum} \eta^2 P_{mod}^2$$

On remonte facilement à la puissance optique modulée en Watt :

$$P_{mod} = \sqrt{\frac{10^{\frac{S_{spectrum}}{10}}}{1000 R_{spectrum} \eta^2}}$$

**Remarque :** Nous mesurons sur l'analyseur uniquement la composante oscillante du signal donné par la photodiode. Un filtre passe haut du premier ordre avec pour fréquence de coupure $f_c = \frac{1}{2\pi R_{spectrum} C} = 3,2$ KHz nous permet de rejeter la composante continue (affichée sur l'oscilloscope) sans dégrader le signal à 474 KHz.

L'oscilloscope retourne une tension liée au courant $I_{MOY}$ de la photodiode tel que $V_{oscillo} =$

$RI_{MOY} = R\eta P_{MOY}$.

La profondeur de modulation $d$ étant définie comme $d = \frac{P_{mod}}{P_{MOY}}$, on obtient pour la profondeur de modulation en fonction des données expérimentales accessibles :

$$d = \frac{\sqrt{\frac{10^{\frac{S_{spectrum}}{10}}}{1000 R_{spectrum}}}}{\frac{V_{oscillo}}{R}}$$

Avec $R = 10000\Omega$ et $R_{spectrum} = 50\Omega$, nous avons obtenu le graphique 3.19.

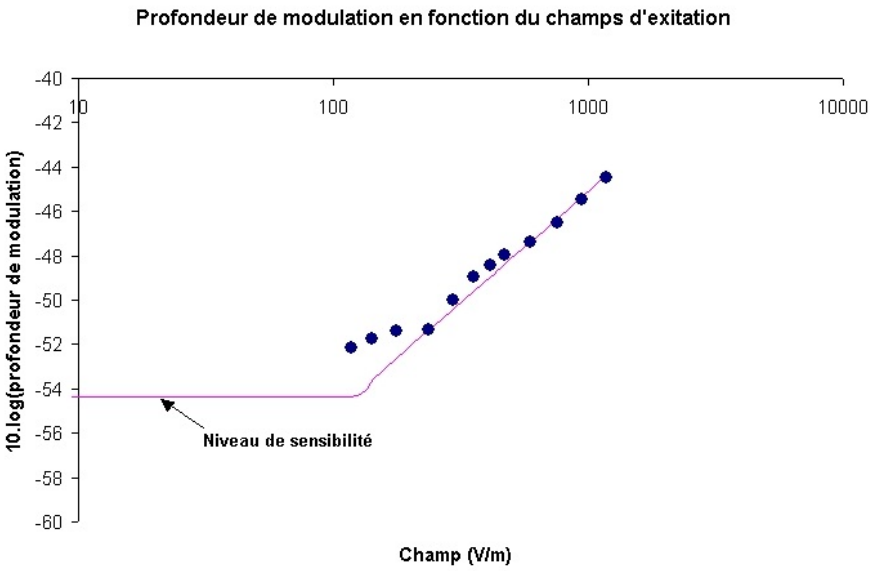



FIGURE 3.19: Courbe log-log de la profondeur de modulation en fonction du champs appliqué.

Il est connu que la profondeur de modulation $d$ pour une orientation optimale de l'ellipse induite (référence [95]) est égale pour un cristal de ZnTe (111) à :

$$d = \alpha E = \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{2\pi n^3 L}{\lambda} r_{41} E$$

Nous avons trouvé pour $\alpha$ une valeur de $3110^{-9}$ donc pour $r_{41}$ la valeur de $2,4610^{-13}$ m/V. Il apparait que cette valeur est très inférieure à celle de $410^{-12}$ m/V donnée dans la littérature [96], ce qui met en évidence une qualité de cristal plus que médiocre.

**➢ Vérification du $r_{41}$ par une autre méthode**

Afin de valider le résultat précédent montrant une valeur faible du coefficient de Pockels, nous avons mis en œuvre une seconde expérience pour déterminer $r_{41}$.

Nous avons effectué une rotation de l'ellipse induite et mesuré sous une tension de 10 V crête à crête la profondeur de modulation obtenue pour la composante s de la polarisation. Ainsi il nous est possible de reconstruire l'ellipse induite (qui diverge très peu du cas circulaire), et d'obtenir l'ellipticité de cette dernière. La seconde étape est de modéliser la

déformation d'une onde polarisée circulairement par la traversée d'un cristal présentant une biréfringence de $\Delta n = \sqrt{\frac{2}{3}} n^3 r_{41} E$, d'en calculer l'ellipticité et de chercher le $r_{41}$ rendant compte de la valeur de l'ellipticité obtenue expérimentalement.
Expérimentalement, nous avons obtenu pour la profondeur de modulation en fonction de l'orientation de l'ellipse la figure 3.20.

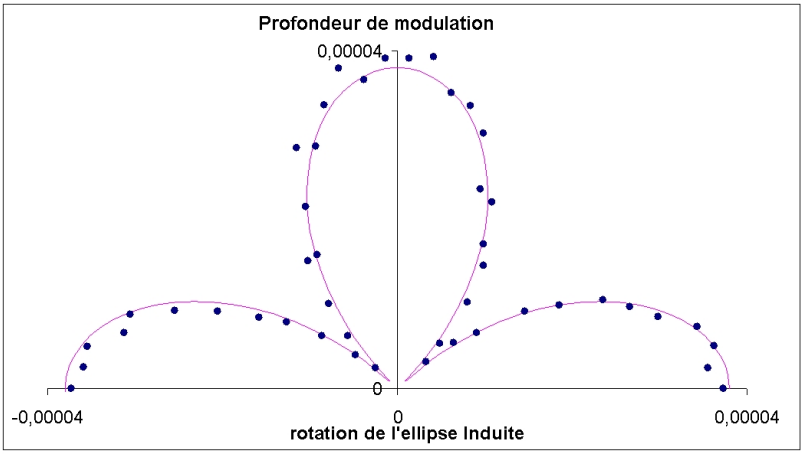



FIGURE 3.20: Courbe en coordonnées polaires. Module = Profondeur de modulation. Phase = orientation de l'ellipse induite (en radians).

Il est possible de déterminer l'évolution de la polarisation s de l'ellipse induite en fonction de la rotation de l'ellipse (voir figure 3.21).

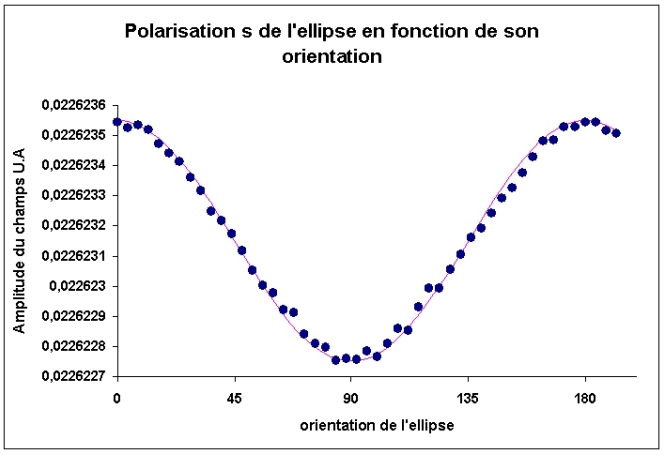



FIGURE 3.21: Variation du champs en fonction de l'orientation de l'ellipse après passage dans Wollaston (composante TE).

Nous calculons alors une ellipticité $\epsilon = 1 - \frac{PetitAxe}{GrandAxe}$ de $3,5410^{-5}$. Pour la coupe (111), l'ellipticité de l'ellipse des indices (et donc de l'ellipse de la polarisation optique) ne dépend que de l'intensité du champ appliqué (pour une longueur de cristal et son coefficient de Pockels). Nous avons alors cherché à déterminer quelle valeur de $r_{41}$ permettait d'obtenir la même ellipticité. Nous avons obtenue une valeur de $r_{41} = 2,38.10^{-13}$ m/V pour obtenir

la même ellipticité qu'expérimentalement (voir annexe C). Cette valeur est très proche de celle obtenue dans la partie précédente est reste très inférieure à celle attendue.

#### 3.2.4.5 Conclusion sur le banc haute fréquence

Nous n'avons pas réussi à obtenir des spectres à très haute fréquence avec ce banc électro-optique. La raison principale concerne l'épaisseur des cristaux, trop épais pour être efficace à très haute fréquence. Una autre raison est sans doute un problème d'alignements des faisceaux optique et THz très délicat pour les très hautes fréquences. En effet, pour détecter par exemple la composante à 30 THz ($\lambda = 10\mu$m), il faut superposer les faisceaux à quelques microns près. C'est facile pour le faisceau laser, mais bien plus délicat pour le faisceau THz. Pour cela, il conviendra sans doute de monter tous les éléments d'optique THz sur des platines de déplacement micrométriques. Toutefois, la dynamique à base fréquence reste faible, la raison de cela est la qualité des cristaux de ZnTe. En effet, nous avons expérimentalement déterminé un $r_{41}$ pour le cristal 1 mm (111) de provenance ABCvision d'une valeur 16 fois inférieure (paragraphe 3.2.4.4) à celle attendue, soit un gain potentiel de +12 dB à l'émission comme à la détection. L'achat de cristaux de bonne qualité est donc un point essentiel pour obtenir des signaux THz très large bande. Avec des cristaux fins de qualité et une attention particulière sur les alignements, il nous semble donc possible de fournir des signaux de référence aux très hautes fréquences avec une dynamiques de 20 - 25 dB, avec le banc actuel, ce qui serait suffisant pour des caractérisations d'échantillons très minces.

# Chapitre 4

# Banc de mesure de signaux THz rétro-diffusés (BRDF)

La mesure de signaux diffusés nécessite de pouvoir modifier aisément la position angulaire du détecteur (ou respectivement de l'émetteur). Dans une expérience de THz-TDS, l'émetteur et le détecteur sont déclenchés de façon synchrone par la même impulsion optique ce qui nécessite pour toute modification du banc expérimental un réglage précis (à quelque $\mu$m près) des chemins optiques de chacune des voies. Pour cette raison, le fibrage d'au moins l'un des bras optique (celui mobile) apportera une grande facilité d'utilisation du banc pour des mesures de signaux diffusés. Notre expérience (voir figure 4.1) est constituée d'un détecteur qui sera monté sur le bras mobile d'un goniomètre afin de mesurer les signaux diffusés par l'échantillon dans le plan d'incidence. Le détecteur sera fibré afin de pouvoir être déplacé sans modifier les chemins optiques. Cependant, l'utilisation d'une fibre optique introduit un élargissement temporel très rapide de l'impulsion lumineuse. Afin de générer ou de détecter un spectre dans le domaine THz, l'impulsion doit rester brève ($<$ 100 fs), c'est pourquoi nous devons développer au préalable un système de précompensation de la dispersion de l'impulsion optique femtoseconde dans la fibre (particulièrement forte à 800 nm).

## 4.1 Dispersion d'une impulsion optique ultra brève dans les fibres monomodes

Dans cette partie, nous allons nous intéresser à l'élargissement temporel induit par une fibre sur une impulsion de durée $\Delta T_{in} = 60$ fs.
En se limitant au développement au second ordre pour la phase induite par le matériau, un simple calcul de dispersion (voir [81] paragraphe 5.6) permet d'évaluer la durée de

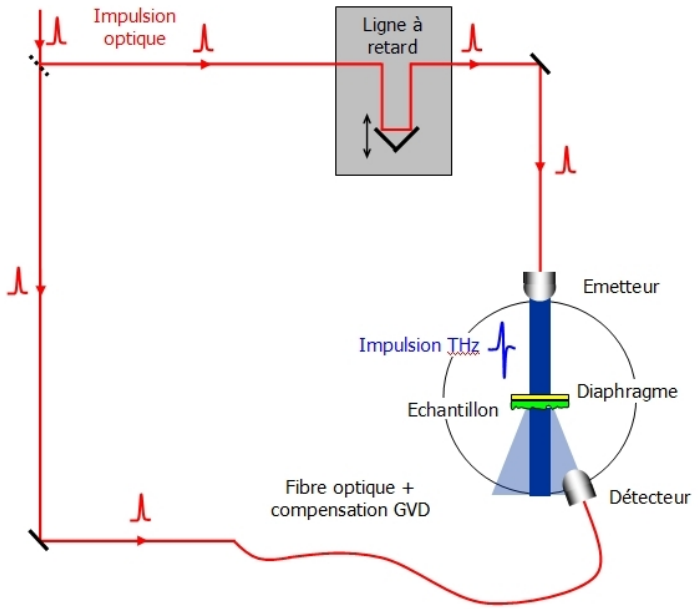



FIGURE 4.1: Schéma de principe du banc permettant les mesures de signaux diffusés.

l'impulsion en sortie de fibre. La durée de l'impulsion en sortie de fibre est donnée par :

$$\Delta T_{out} = \frac{\sqrt{\Delta T_{in}^4 + 16ln(2)^2\phi^2}}{\Delta T_{in}}$$

Avec $\phi = DVG \times L$, où la $DVG$ représente la Dispersion de la Vitesse de Groupe par unité de longueur et $L$ la longueur de matériau. La DVG est égale à $\frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\left(\frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2}\right)$ ; pour de la silice fondue (et donc la fibre optique) on trouve à 800 nm : $DVG = 36,11$ fs$^2$/mm. Nous obtenons ainsi, en fonction de la durée de l'impulsion initiale, l'élargissement temporel de l'impulsion en sortie d'une fibre de silice fondue de longueur 88 cm (voir figure 4.2). Pour une durée de l'impulsion incidente de 60 fs (ce qui est le cas pour le laser que nous

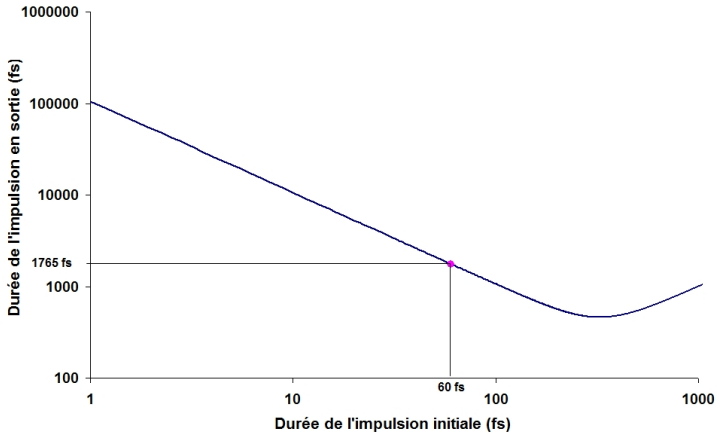



FIGURE 4.2: Durée de l'impulsion de sortie en fonction de l'impulsion en entrée pour une fibre de 88 cm .

utiliserons pour cette expérience), $\lambda = 800$nm et $\Delta\lambda \approx 20$nm, l'impulsion est allongée

jusqu'à 1,8 ps par la fibre. Nous avons validé ces considérations expérimentalement pour une fibre monomode de 88 cm (figure 4.3). Par ailleurs, on observe sur la courbe donnée

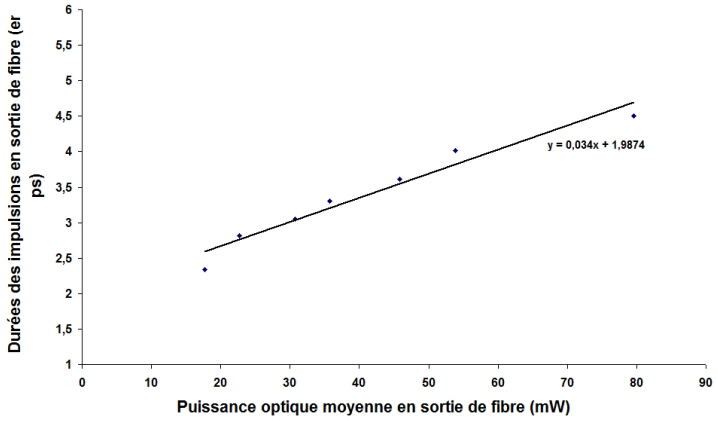



FIGURE 4.3: Durée de l'impulsion de sortie en fonction de la puissance moyenne en sortie d'une fibre monomode de 88 cm .

en figure 4.3 que la dispersion augmente aussi avec la puissance du faisceau laser du fait d'effets non linéaires dans la fibre. L'extrapolation de la courbe à une puissance optique nulle (suppression des effets non linéaires) donne environ une durée de l'impulsion de sortie de 2 ps comme celle calculée en figure 4.2.

### 4.1.1 La précompensation de la dispersion à l'aide de réseaux

Pour précompenser notre impulsion, nous utilisons la propriété bien connue de la dispersion négative (anormale). Cette dispersion anormale se retrouve dans des dispositifs optiques qui présente la capacité de retarder les grandes longueurs d'onde par rapport aux courtes. Cela représente un comportement inverse de celui que présente les matériaux transparents dans le domaine optique. En effet, les lois empiriques de Cauchy ou de Sellmeier qui modélisent l'indice de réfraction des matériaux transparents (domaine visible pour Cauchy, plus infrarouge et ultraviolet pour Sellmeier) nous enseignent que les matériaux naturels présentent une dispersion dont l'effet est toujours dans le même sens, à savoir un indice plus faible et donc une vitesse plus élevée pour les grandes longueurs d'onde. Nous oublions ici la dispersion anormale au voisinage de pics d'absorption des matériaux, à cause des pertes induites. L'existence de dispositifs présentant un comportement inverse permet de compenser cette dispersion, et de rétablir une impulsion ultra-brève en sortie de fibre (système de pré-compensation). Il existe différents systèmes à dispersion négative :

- Les systèmes à base de prismes,
- Les systèmes à base de réseaux,

- Les fibres optiques à dispersion anormale.

Les systèmes à bases de prismes présentent une dispersion anormale faible par rapport à ceux reposant sur les réseaux. Les dispositifs à base de réseaux sont donc plus compacts, en revanche leur transmission est plus faible. En effet, les réseaux possèdent un ou plusieurs autres ordres de diffraction faisant perdre de la puissance utile en sortie (en général 1 seul ordre de diffraction supplémentaire dans ce type d'application). Le choix d'un système à 2 réseaux a donc été préféré à celui utilisant des prismes de par la compacité du système final. Finalement, la transmission du système n'étant pas le critère le plus important, des réseaux conventionnels peuvent être envisagés, conduisant à un faible coût. Par ailleurs, les réseaux (comme les prismes) offrent la possibilité de modifier aisément la dispersion négative introduite sur l'impulsion, et permettent plus de souplesse pour l'optimisation de l'impulsion finale (ce qui n'est pas le cas pour les fibres à dispersion anormale). Nous allons donc décrire en détail le phénomène de dispersion anormale dans le cas de réseau. Commençons par définir l'équation du réseau, dans le cas de réseaux en réflexion. Nous

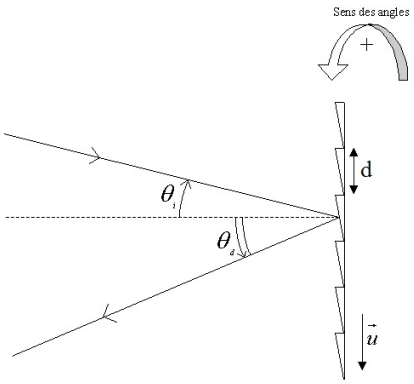



FIGURE 4.4: Convention utilisées.

utilisons les conventions présentées sur la figure 4.4. La conservation de la quantité de mouvement implique que $\overrightarrow{k_i} + p\overrightarrow{k_g} = \overrightarrow{k_d}$ avec $\overrightarrow{k_i}$ le vecteur d'onde incident, $\overrightarrow{k_g}$ celui du réseau, $\overrightarrow{k_d}$ celui diffracté et $p$ ordre de diffraction. En projetant cette relation sur l'axe $\overrightarrow{u}$ nous obtenons la relation :

$$d(\sin\theta_i + \sin\theta_d) = p\lambda$$

Maintenant nous allons nous intéresser à la configuration géométrique pour précompenser l'impulsion. Nous considérons un dispositif composé de deux réseaux parallèles identiques représentés en figure 4.5. La figure 4.5 représente le parcours de 2 longueurs d'onde différentes avec $\lambda_1 < \lambda_2$. Le chemin optique (si $n = 1$) vaut $L_1$ et $L_2$ pour respectivement $\lambda_1$ et $\lambda_2$, tels que :

$$L_1 = AB_1 + B_1C_1$$

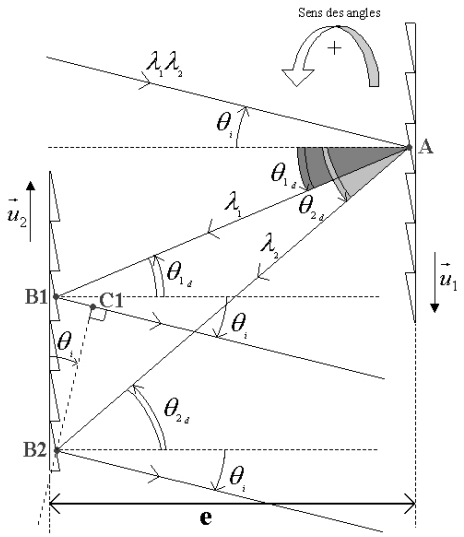



FIGURE 4.5: Disposition géométrique pour notre dispositif de précompensation.

$$L_2 = AB_2$$

On se place dans le cas où $\theta_i < 0 \Rightarrow \theta_{1d} > 0$ et $\theta_{2d} > 0$, alors :

$$\begin{aligned} AB_1 &= \frac{e}{\cos\theta_{1d}} \\ AB_2 &= \frac{e}{\cos\theta_{2d}} \\ B_1B_2 &= e(\tan\theta_{2d} - \tan\theta_{1d}) \\ B_1C_1 &= B_1B_2\sin(-\theta_i) \end{aligned}$$

Dans une fibre optique à dispersion "normale", les grandes longueurs d'onde se propagent plus vite que les courtes, il devra en être différemment dans le dispositif de précompensation, et ainsi $\lambda_2$ doit parcourir un chemin plus long que $\lambda_1$. Ainsi il faut que la disposition expérimentale des réseaux satisfasse l'équation :

$$\frac{L_2 - L_1}{c} = \Delta T_{out}$$

Où $\Delta T_{out}$ est la dispersion induite par la fibre (voir paragraphe 4.1). Cette égalité est obtenue en choisissant la bonne distance entre les réseaux $e$.

### 4.1.2 Choix des réseaux

Ces considérations nous ont permis d'effectuer un choix pour les réseaux de diffraction à utiliser (angles d'incidence et périodicité), cependant des considérations relatives à la forme du profil des réseaux sont importantes (afin de maximiser la transmission du dispositif). Pour cela, nous cherchons un réseau ayant une efficacité diffractionelle à l'ordre utilisé la plus élevée possible. Le réseau devra donc sous les conditions d'éclairement choisi

présenter une efficacité diffractionelle absolue élevée et constante sur la bande spectrale de l'impulsion optique. Pour ce faire une solution est d'utiliser un réseau à échelette. Pour

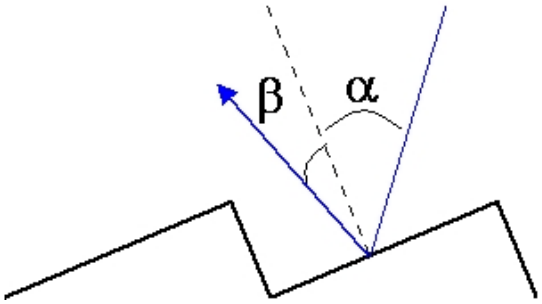



FIGURE 4.6: Principe d'un réseau à échellette.

une incidence quelconque, on sait que le maximum d'énergie diffractée correspond à la longueur d'onde de blaze pour laquelle $\alpha = \beta$ (voir figure 4.6). De plus, la condition de Littrow ($\alpha = \beta = 0$) permet d'obtenir le maximum d'énergie diffractée à la longueur d'onde de blaze [97]. Une déviation de 10° entre faisceau incident et diffracté est couramment utilisée $\alpha + \beta = 10°$, cela permet de travailler sous des conditions proches Littrow tout en offrant la possibilité de séparer énergie diffractée et incidente sans recourir à une lame semi-réfléchissante. En tenant compte de ces considérations, nous avons opté pour des réseaux commercialement disponibles (réseau GR25-1208, Thorslab). Ils possèdent les caractéristiques constructeur présentés en figure 4.7. Sur cette figure, on observe qu'en

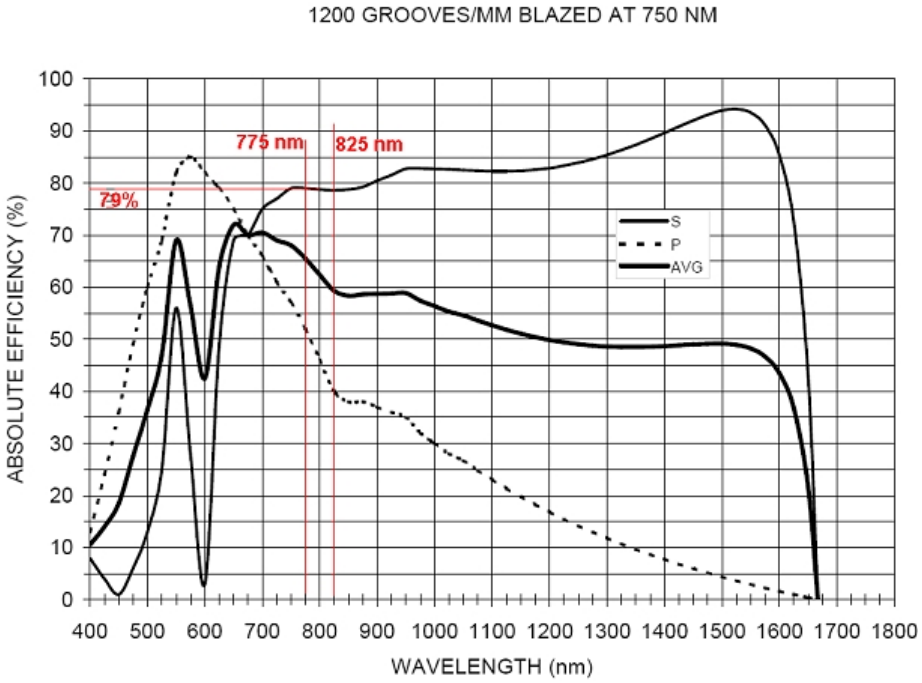



FIGURE 4.7: Donnée constructeur sous condition "Littrow" des réseaux utilisés pour le système de précompensation.

polarisation $s$ ce réseau présente une efficacité pratiquement constante à l'angle de Littrow

autour de 800 nm. La valeur de 79% annoncée pour le rendement à l'ordre 1 suggère une transmission de la puissance par le dispositif au maximum de 49 % pour le systeme complet (constitué de 2 réseaux en réflection). Nous avons procédé à une mesure de l'efficacité diffractionelle absolue pour l'ordre 0, 1, -1 (seuls ordres en présence) en fonction de l'angle d'incidence (voir figure 4.8). Les calculs conduisent pour ce réseau à $\theta_{inc} = -33.8°$pour

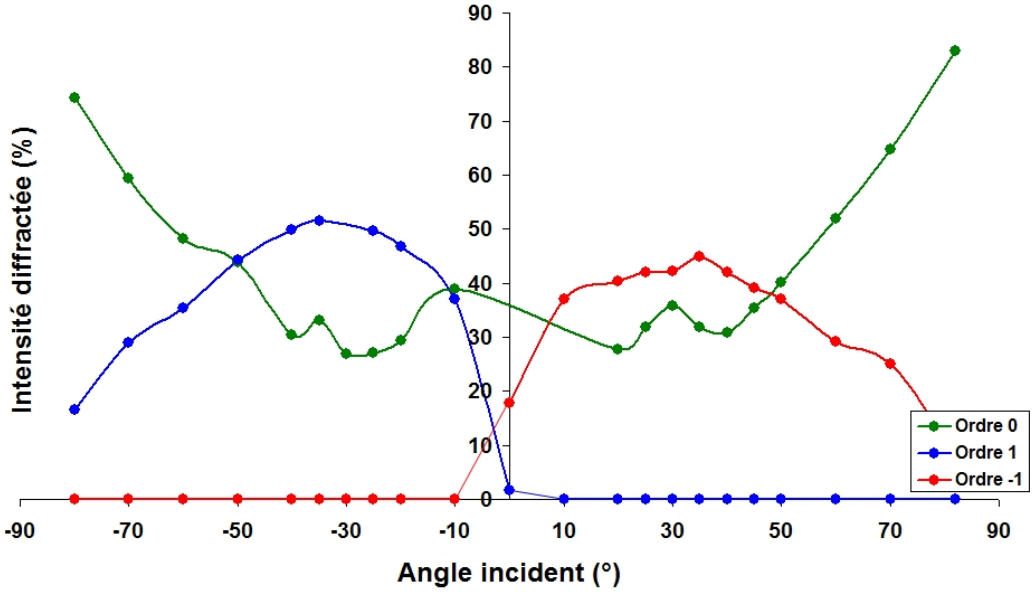



FIGURE 4.8: Mesure de l'efficacité diffractionelle des ordres diffractés en fonction de l'angle d'incidence, exprimé en pourcentage de l'intensité total.

la configuaration proche Littrow (10° de déviation). On observe bien sur la figure 4.8 que l'efficacité est la plus forte pour l'ordre +1 (avec 53 % de l'énergie d'illumination totale). Le défaut de puissance observée par rapport aux spécifications constructeur s'explique par notre mesure "proche" Littrow (et non pas sous les conditions "Littrow" exactes comme dans les spécifications constructeur). D'autre part, nous observons un manque de 20 % de l'énergie totale pour la somme de l'énergie des ordres diffractées (causé par absorption et diffusion lors de la réflection sur le réseau).

### 4.1.3 Fibrage de l'antenne

La dernière étape pour obtenir un bras de détection mobile est de focaliser le faisceau en sortie de fibre sur le photocommutateur. Pour réaliser le fibrage de l'antenne nous avons envisagé deux méthodes : la première solution (voir figure 4.9) consiste à utiliser un collimateur en sortie de fibre, suivi d'une lentille permettant de focaliser l'impulsion sur le gap du photocommutateur. La seconde consistera à amener directement le cœur de la fibre sur le détecteur, et de le coller sur le gap du détecteur (voir figure 4.10). La seconde méthode bien que plus pratique présente le risque de détruire une antenne coûteuse (et

aussi de figer une antenne à cette utilisation) c'est pourquoi nous n'avons pas réalisé cette solution et avons préféré la première.

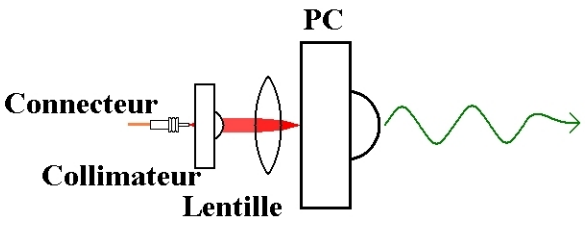



FIGURE 4.9: Fibrage de l'antenne par passage en espace libre.

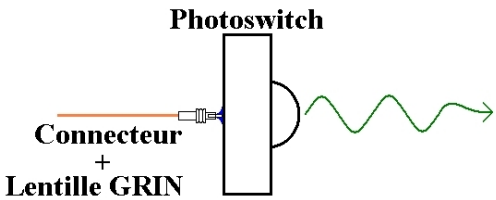



FIGURE 4.10: Fibrage de l'antenne en collant le cœur de la fibre sur le photoconducteur.

## 4.2 Validation du dispositif de pré-compensation

Nous avons monté notre dispositif de pré-compensation à base de réseau et couplé la puissance de sortie dans une fibre monomode de 1.5 m. Et nous avons ajusté la distance entre les réseaux $e$ afin de restaurer une impulsion optique la plus courte possible en sortie de fibre. L'impulsion en entrée de fibre est d'une durée de 75 fs et de 109 fs en sortie (voir figure 4.11) pour une distance de 8,7 cm entre les réseaux. Nous ne parvenons pas à complètement restaurer l'impulsion en sortie de fibre du fait des phénomènes non-linéaires qui introduisent des déphasages non linéaires avec la fréquence que nous ne pouvons compenser avec notre système (dispersion du troisième ordre à dépendance quadratique avec la fréquence). Mais la durée de 109 fs est largement suffisante pour nos travaux.

## 4.3 Caractérisation du spectrogoniomètre THz

Afin de mesurer la sélectivité angulaire de notre dispositif, nous avons mesuré les signaux THz en effectuant un rotation $\theta$ de la détection (voir figure 4.12). Nous obtenons dans le domaine temporel le résultat de la figure 4.13. On observe que plus l'angle de détection $\theta$ augmente plus l'amplitude du signal diminue. On constate aussi que le signal mesuré arrive de plus en plus tôt par rapport au cas $\theta = 0°$. Nous pouvons remarquer que ce décalage temporel est lié à la diminution de la distance entre émetteur et détecteur lors

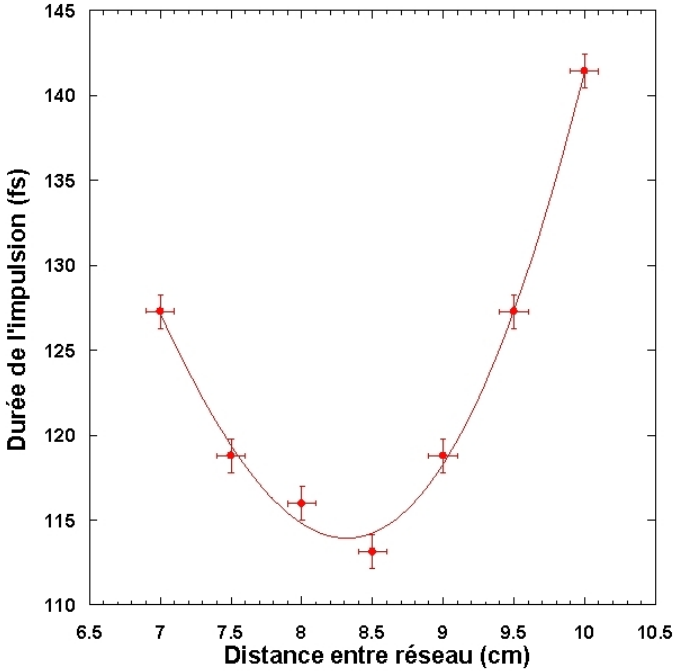



FIGURE 4.11: Variation de la durée de l'impulsion en sortie de la fibre de 1,5 m en fonction de la distance $e$ entre les réseaux.

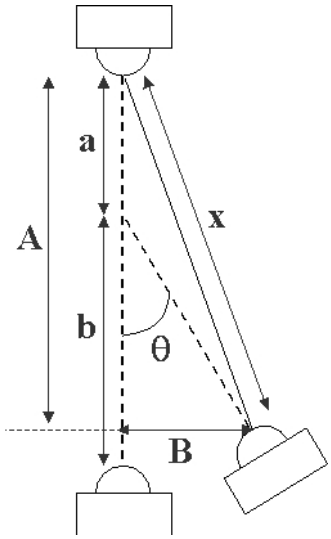



FIGURE 4.12: Principe de la mesure du signal reçu par l'antenne de détection lors de sa rotation.

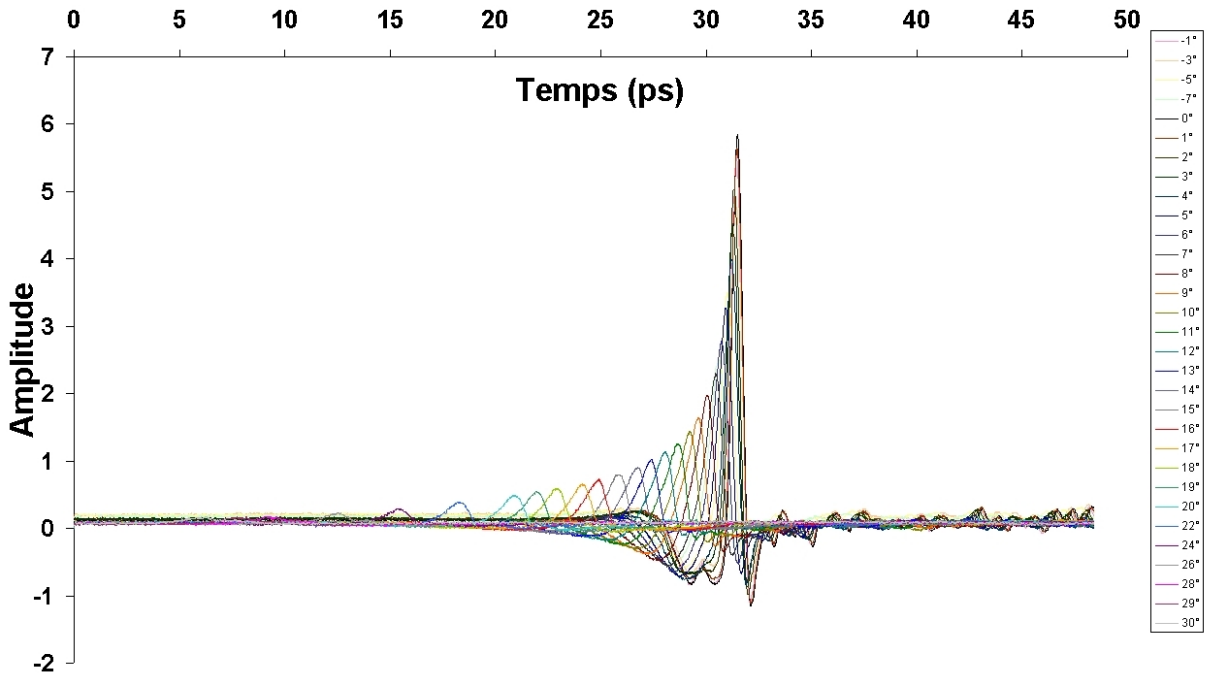



FIGURE 4.13: Signaux THz dans le domaine temporel mesurés en fonction de la rotation du détecteur.

de l'augmentation de $\theta$. En effet dans la configuration expérimentale de la figure 4.12 la distance émetteur-détecteur est donnée par :

$$x = \sqrt{a^2 + b^2 + 2ab\cos\theta}$$

Sur la figure 4.14 est représenté le décalage temporel calculé et mesuré (du pic de l'impulsion) par rapport au cas $\theta = 0$ en fonction de l'angle du détecteur. Nous observons que le décalage temporel observé correspond bien à la diminution de la distance émetteur-détecteur.

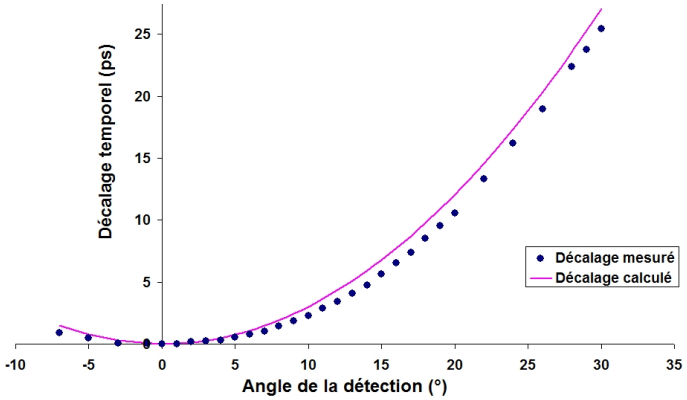



FIGURE 4.14: Décalage temporel expérimental par rapport au cas $\theta = 0$, et décalage calculé en fonction de la distance émetteur-déteteur.

### 4.3.1 Analyse et modélisation du faisceau

Afin de mesurer l'incidence de $\theta$ sur les spectres, nous effectuons la transformée de Fourier numérique des signaux ; le module des signaux est représenté en figure 4.15. On

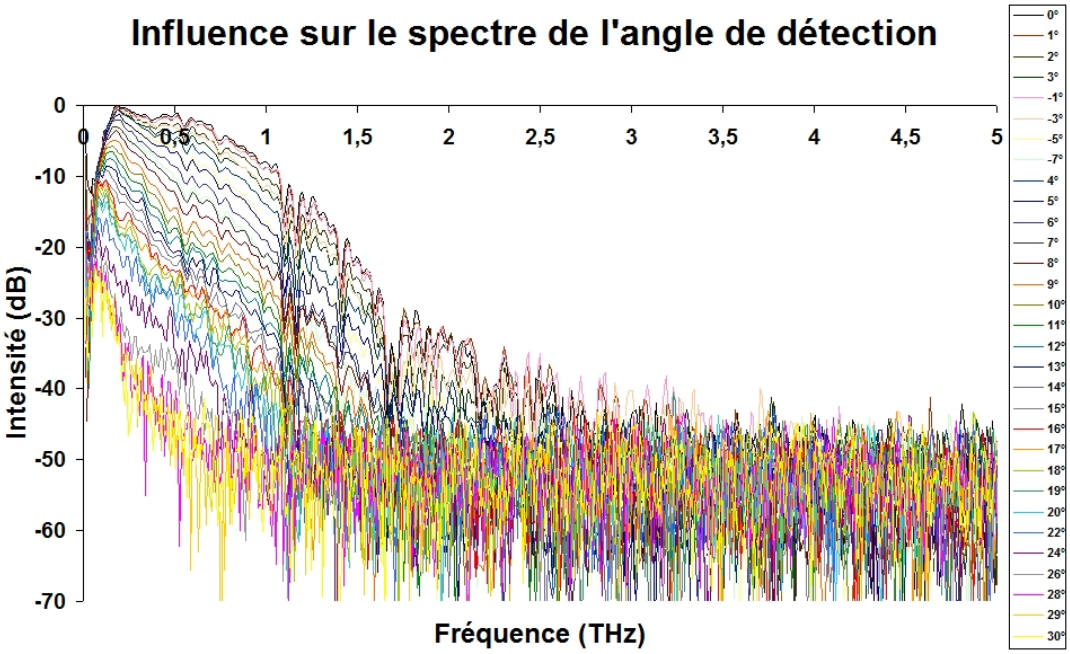



FIGURE 4.15: Spectre des signaux mesurés en fonction de la rotation du détecteur.

observe que le signal décroit lorsque l'angle de détection augmente, et que cette perte de signal affecte bien plus les hautes fréquences que les basses fréquences. Cela va dans le sens d'un résultat bien connu sur les faisceaux gaussiens, en effet, les hautes fréquences présentent une divergence moindre (pour un même "waist") que les basses fréquences, pouvant conduire à nos observations. Afin de mieux observer ce phénomène, nous représentons l'amplitude des spectres aux fréquences 200, 350, 500, 650, 800 et 1000 GHz en fonction de l'angle de rotation de la détection $\theta$ (voir figure 4.16). Pour valider le caractère gaussien du faisceau THz, nous appliquons le modèle des faisceaux gaussiens. L'amplitude du champ électrique de tels faisceaux est décrit par l'équation suivante :

$$E(x,z) \propto \frac{W_0}{W(z)} \exp \frac{-x^2}{W^2(z)}$$

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}$$

$$z_0 = \frac{\pi {W_0}^2}{\lambda}$$

Cette équation permet de calculer l'amplitude du champ électrique en fonction de l'angle de la détection (voir figure 4.17). Nous considérons que la valeur du "waist" $W_0$ ainsi que

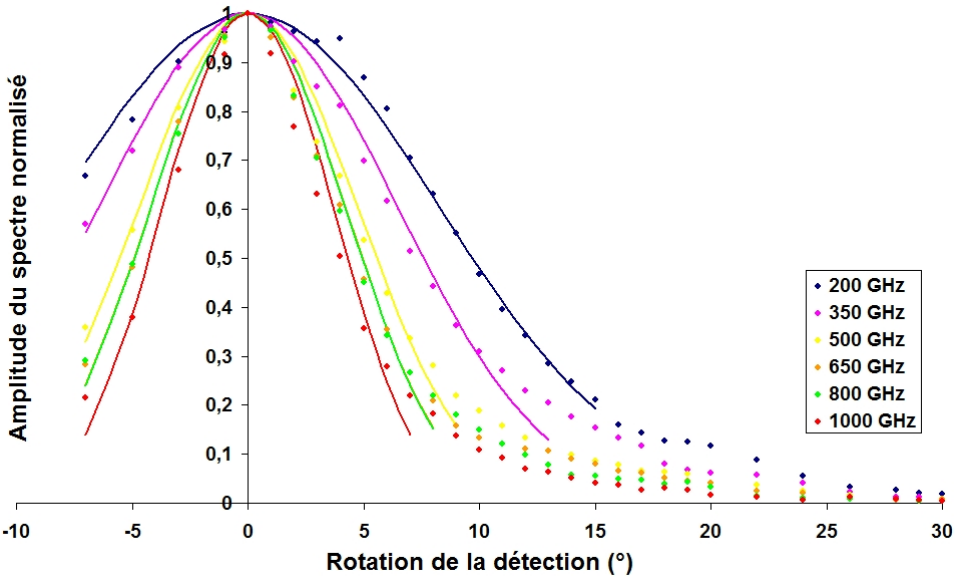



FIGURE 4.16: Amplitude du spectre pour 200, 350, 500, 650, 800 et 1000 GHz en fonction de $\theta$. Les points sont les données expérimentales, les lignes sont des ajustements possibles avec le modèle des faisceau gaussiens.

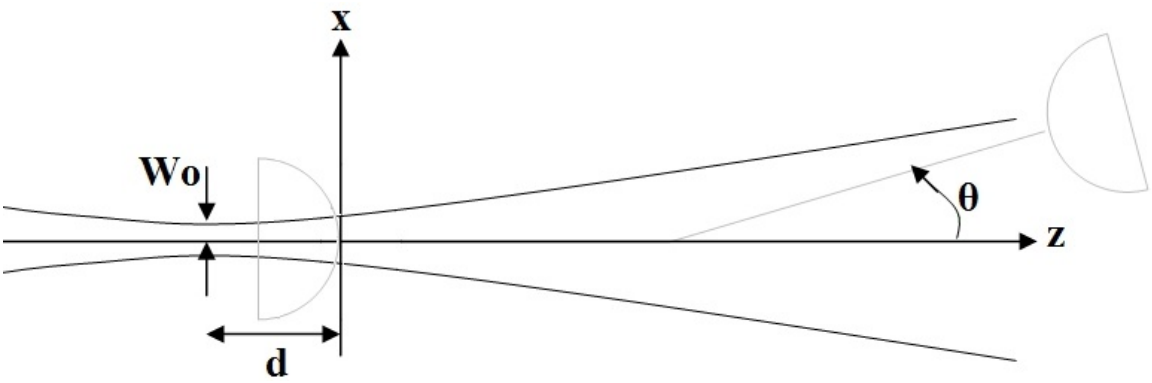



FIGURE 4.17: Présentation du modèle et de sa disposition géométrique par rapport à l'expérience.

sa position $d$ sont inconnues. Nous tenons compte de l'ouverture du détecteur en moyennant les valeurs théoriques contenues dans les 1,5 cm au niveau de la lentille de détection (en effet le détecteur étant composé d'une lentille de focalisation d'un diametre de 1,5 cm, on ne peut pas le considérer comme ponctuel). Nous avons réalisé une optimisation des paramètres (waist et position) par la méthode des moindres carrés uniquement sur les valeurs expérimentales présentant (après normalisation) une amplitude supérieure à 0,2. Cela se justifie par la présence de signaux aux grands angles qui ne peuvent pas être approximés par notre modèle, le faisceau expérimental n'étant pas parfaitement gaussien. Les deux seuls paramètres libre du modèle sont donc la position du "Waist" et son diamètre. Nous constatons qu'il est possible de trouver une relation entre taille et position du "Waist" permettant l'ajustement des données. La fonction d'erreur (au sens des moindres carrés) passe en effet par un même minimum pour différents couples de valeurs (diamètre, position) et non pas une solution unique. Ces différents couples de solutions sont données dans le tableau 4.1. La figure 4.16 représente les interpolations pour les couples de valeurs (choisi de manière arbitraire) en gras du tableau 4.1. Toutefois, bien que nous ne pouvons

| Distance $d$ [cm] | 200 GHz | 350 GHz | 500 GHz | 650 GHz | 800 GHz | 1000 GHz |
|---|---|---|---|---|---|---|
| **-60** | **1,67** | 1,24 | | | | |
| **-30** | 0,97 | **0,727** | 0,832 | 0,806 | 0,584 | 0,589 |
| **-15** | 0,703 | 0,527 | **0,562** | 0,518 | 0,41 | 0,431 |
| **-5** | 0,534 | 0,401 | 0,42 | **0,384** | 0,309 | 0,317 |
| **0** | 0,452 | 0,339 | 0,353 | 0,322 | **0,26** | 0,266 |
| **5** | 0,371 | 0,278 | 0,288 | 0,263 | 0,213 | **0,217** |
| **15** | 0,211 | 0,159 | 0,163 | 0,149 | 0,121 | 0,123 |

TABLE 4.1: Valeur du waist (en cm) en fonction de sa position nécessaire à l'optimisation de l'erreur entre modèle et données expérimentales pour 6 fréquences différentes.

pas lever l'indétermination sur ces couples de solution (une mesure à une autre distance du détecteur serait nécessaire), il est possible d'estimer la distance $d$. En effet, le point focale d'un dioptre sphérique est situé à $\frac{nR}{n-1}$ dans le semiconducteur. C'est aussi le point où est placé le dipôle rayonnant. Pour le silicium et l'arséniure de gallium $n_{THz} \approx 3,4$ et $R = 0,65$ cm pour la lentille utilisée. Donc la distance géométrique vaut environ 0,92 cm. La distance optique, égale à $d$, vaut $-3,1$ cm.

## 4.4 Etude d'échantillons diffusants

Afin de tester les possibilités de mesure de signaux diffusés avec notre spectrogoniometre THz, nous avons réalisé l'étude d'une gamme d'échantillons de type "tissu abrasif". La figure 4.18 représente les 4 échantillons de l'étude. Nous avons réalisé, pour la réfé-

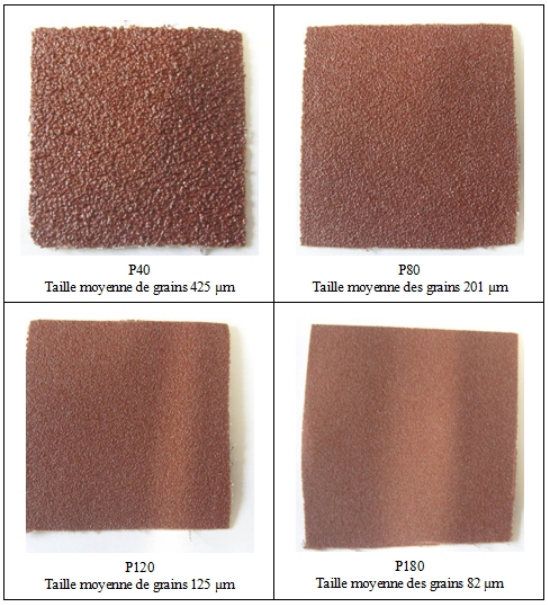



FIGURE 4.18: Echantillon de tissu abrasif étudié et valeur moyenne de la taille des grains.

rence et chacun des échantillons, une mesure du signal THz dans le domaine temporel pour différents angles de détection allant de 0° à 30° pour une incidence normale. Sur la figure 4.19, nous représentons la transmission des échantillons (pour $\theta = 0$) ainsi que la mesure de référence. On constate que plus l'échantillon a un grain fin, plus le signal transmis est important. Par ailleurs, on constate que les hautes fréquences sont plus atténuées que les basses fréquences. Il est difficile à ce niveau de dire si cette atténuation est attribuable au phénomène de diffusion. En effet, l'absorption présenterait le même type d'effet (si elle devait augmenter avec la taille des grains). La figure 4.20 permet de mieux observer la composante diffusive sur les signaux. Sur cette figure, nous représentons pour 6 fréquences différentes l'amplitude normalisée de l'onde en fonction de l'angle de détection, pour la référence et chacun de nos échantillons. On constate que pour les basses fréquences (200 GHz $\Leftrightarrow \lambda = 1,5$ mm) ; la répartition angulaire des faisceaux transmis est égale à celle du faisceau incident, quelque soit l'échantillon étudié. On peut déjà en conclure que la tailles des grains est plus petite que 1,5 mm, et donc le faisceau n'est pas diffusé par les échantillons. Plus on augmente la fréquence, plus le signal est diffusé. C'est particulièrement visible à $800 - 1000$ GHz, où du signal est encore détecté pour $\theta = 30°$. L'effet est plus marqué pour l'échantillon à gros grains P40. Les tendances observées sont

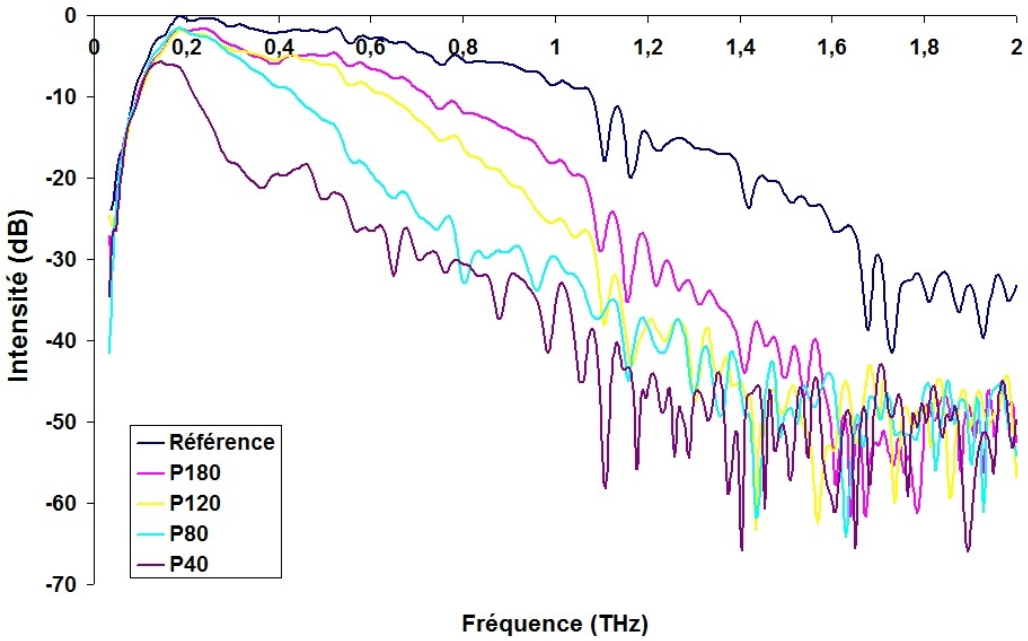



FIGURE 4.19: Signal transmis sans échantillon (référence) et en présence des 4 échantillons, pour une incidence normal et une détection à $\theta = 0°$.

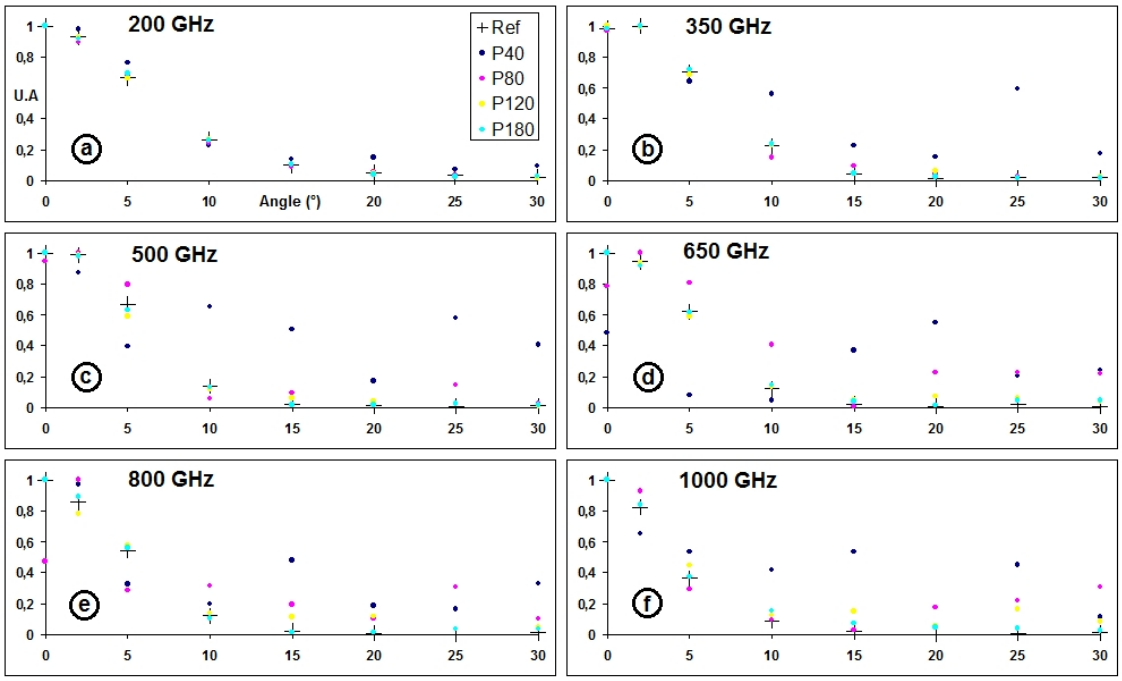



FIGURE 4.20: Signal transmis pour la référence et en présence des 4 échantillons, pour 6 fréquences différente à l'angle de détection $\theta = 0°$.

qualitativement :

- Diffusion d'autant plus forte que la fréquence est élevée (petite longueur d'onde)
- Diffusion d'autant plus forte que la taille moyenne des grains est grande

Afin d'aller plus loin dans l'interprétation des résultats, nous allons dans la partie suivante proposer une analyse des données qui permet d'identifier la partie purement diffusive des signaux. Cela nous permettra de déterminer la fréquence pour laquelle la diffusion devient significativement importante et ainsi conclure sur le mode de diffusion (Rayleigh/Mie) que nous détectons.

### 4.4.1 Mise en évidence du phénomène de diffusion.

Pour pleinement montrer le phénomène de diffusion, il faut rendre les données indépendantes de l'absorption de l'échantillon ainsi que du phénomène de divergence des faisceaux gaussiens. Pour ce faire, nous calculons pour chaque échantillon la fonction suivante :

$$T_i(f,\theta) = \frac{S_i(f,\theta)R(f,0)}{S_i(f,0)R(f,\theta)}$$

Avec $S_i(f,\theta)$ (respectivement $R(f,\theta)$) le spectre de l'amplitude de l'onde, pour un échantillon $i$ donnée (respectivement la référence), mesuré sous l'angle $\theta$.
La fonction $T_i(f,\theta)$ peut notamment s'interpréter comme le rapport entre $\frac{S_i(f,\theta)}{S_i(f,0)}$ et $\frac{R(f,\theta)}{R(f,0)}$. Et il est clair qu'en absence total de diffusion les fonctions $\frac{S_i(f,\theta)}{S_i(f,0)}$ et $\frac{R(f,\theta)}{R(f,0)}$ sont rigoureusement identique. En revanche, si l'échantillon $i$ présente de la diffusion alors la fonction $\frac{S_i(f,\theta)}{S_i(f,0)}$ aura tendance à être plus grande que dans le cas de la référence (notament pour les grands angles). Pour la référence, $\frac{R(f,\theta)}{R(f,0)}$ porte l'information uniquement sur le caractère gaussien de l'onde.
Nous avons appelé la fonction $T_i(f,\theta)$ "coefficient de diffusion", elle est représentée en figure 4.21 pour l'échantillon P120.
On observe sur la figure 4.21 une région (de 0 à 400 GHz) présentant une valeur de 1 pour notre coefficient. Cela implique que dans cette région la diffusion n'est pas observée. Au delà de cette région, on observe une augmentation du coefficient à partir d'une fréquence qui semble diminuer avec l'angle de détection.
Cette courbe est particulièrement bruitée, cela vient du fait que nous effectuons le rapport de 2 fonctions bruitées, dans une zone ou les signaux utiles sont très faibles. La courbe appellée "Moyenne" dans cette figure 4.21 correspond à la moyenne des données des cas 20°, 25° et 30° dans une fenêtre de 50 GHz. Elle nous servira de marqueur pour déterminer le type de diffusion à laquelle nous avons affaire ici. La figure 4.22 représente ce marqueur pour nos quatres échantillons. Sur cette même figure nous avons tracé des interpolations

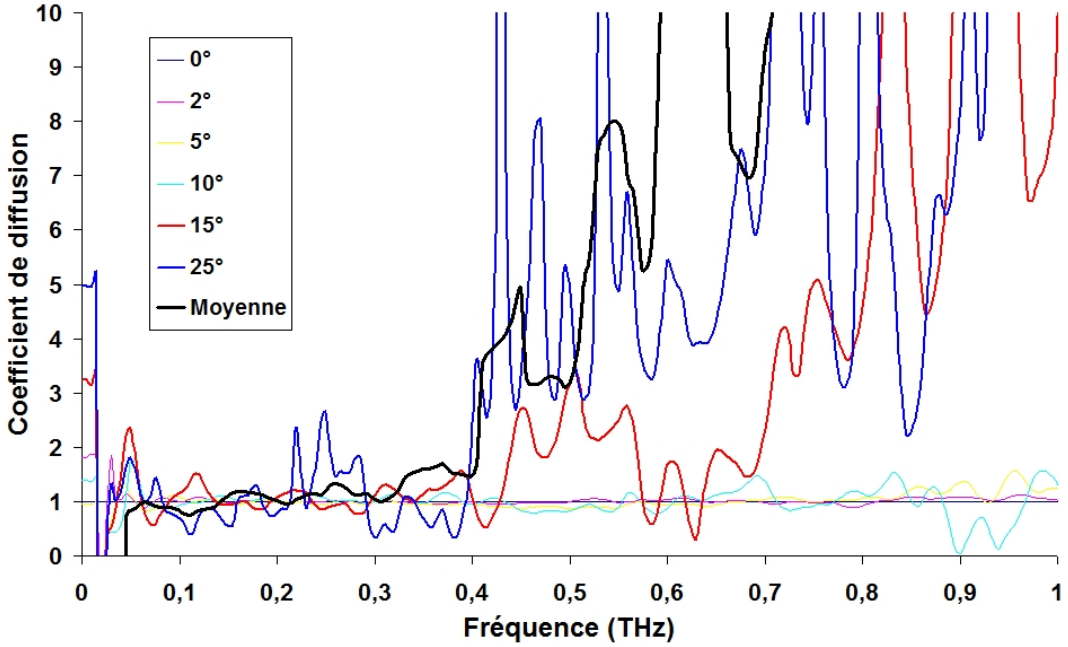



FIGURE 4.21: Coefficient de diffusion de l'échantillon P120, indépendant de l'absorption et de la divergence du faisceau THz.

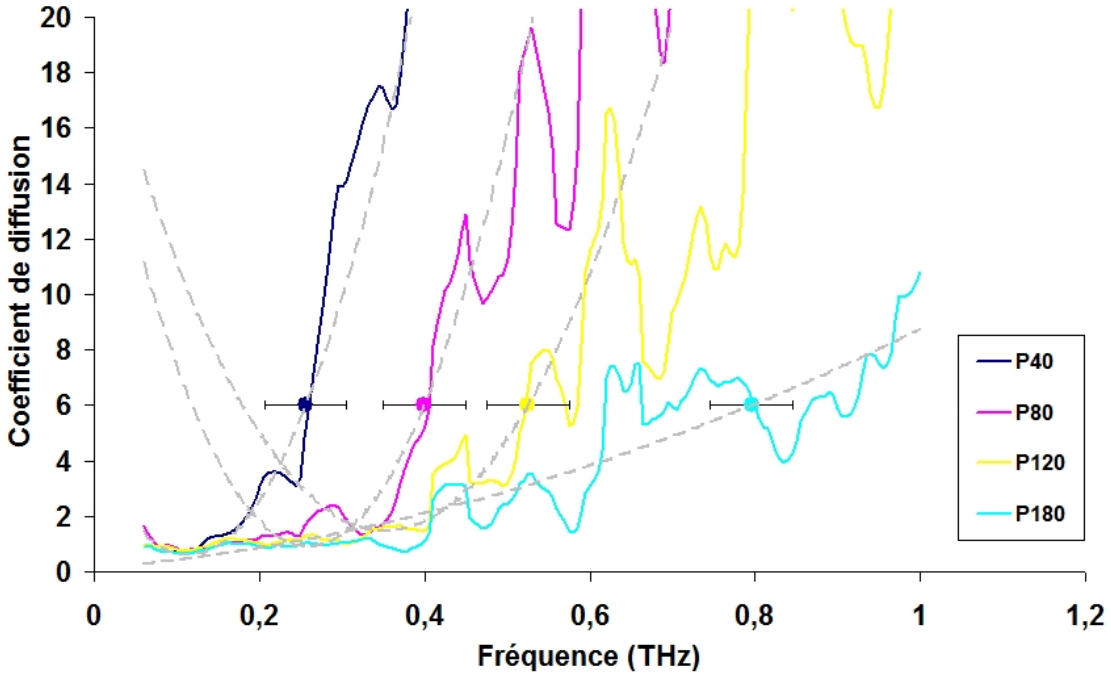



FIGURE 4.22: Coefficient de diffusion aux alentours de 25°, moyenné sur 50 GHz, pour nos 4 échantillons.

de type parabolique.A partir de ces interpolations au voisinage du changement brutal de tendance pour nos marqueurs, nous sommes en mesure de calculer la fréquence pour laquelle le signal est 6 fois plus fort que celui attendu pour un échantillon ne présentant pas de diffusion (voir les gros points sur la figure 4.22). Nous obtenons alors en fonction du diamètre du grain moyen donné par le constructeur, la longueur d'onde (maximale) d'apparition du phénomène de diffusion en figure 4.23. Nous rappelons que la diffusion

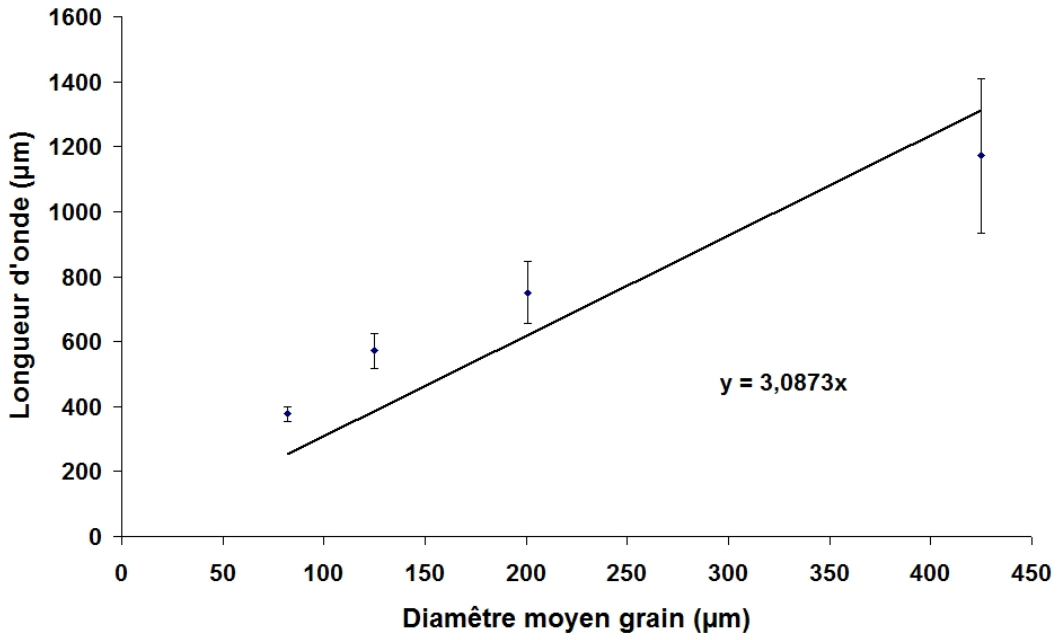



FIGURE 4.23: Valeur de la longueur d'onde pour laquelle la diffusion est constatée en fonction du diamètre moyen de grain des tissus abrasifs.

de Rayleigh pour des sphères diélectriques est valable pour $\lambda \geq 10\ \phi$ (avec $\phi$ le diamètre moyen des particules sphériques). Pour les longueurs d'ondes inférieures, c'est la théorie de Mie qui doit être employée (celle de Rayleigh en devenant une limite). Dans notre cas, la diffusion est observable pour $\lambda \leq 3\ \phi$, donc nous observons une diffusion de type Mie.

La publication [98] présente des résultats similaires aux nôtres. Ils ont été obtenus avec des échantillons de fabrication contrôlée. Les auteurs ont démontré un accord très satisfaisant avec la théorie des radars [99]. Cette théorie permet de modéliser, sous éclairement normal, la réflexion spéculaire ou la transmission d'une surface rugueuse. Le signal réfléchi par la surface est calculé en remplaçant les grains par une distribution aléatoire de facettes parallèles à l'échantillon. L'écart type $\sigma$ de cette distribution est donc évaluée de la manière suivante :

$$\sigma \propto \frac{1}{S}\sqrt{\int_S z(x,y)^2 dxdy}$$

Où $z$ représente la hauteur du point $(x, y)$ de la surface réelle par rapport à la hauteur moyenne. Ce paramètre de rugosité permet d'évaluer la transmission d'une surface rugueuse connaissant le spectre de la surface lisse :

$$T_{rugueux}(f_{THz}) = T_{lisse}(f_{THz}) * \exp -(\frac{4\pi\sigma_{\mu m} f_{THz}}{300})^2 \tag{4.1}$$

En choisissant cette valeur de $\sigma$ (par une interpolation au sens des moindres carrés), on obtient typiquement $\sigma \approx \frac{\phi}{4}$ (voir figure 4.24). Et le calcul de $\sigma$ pour une surface composée de demi-sphères de diamètre $\phi$ conduit à $\sigma \approx \frac{\phi}{3{,}8}$. Nous constatons donc sur cette figure une bonne interpolation de nos données par le modèle [98]. Pour le cas P180 le modèle s'écarte légèrement de la réalité. En effet, pour $T_{lisse}(f)$ nous avons utilisé le signal de référence (et non le signal d'un échantillon parfaitement lisse), ce qui ne permet pas de faire abstraction de l'absorption, notamment pour l'échantillon le moins rugueux P180 où l'absorption prédomine la forme du signal transmis.

Pour conclure, notre banc permet d'étudier des phénomènes de diffusion avec une grande

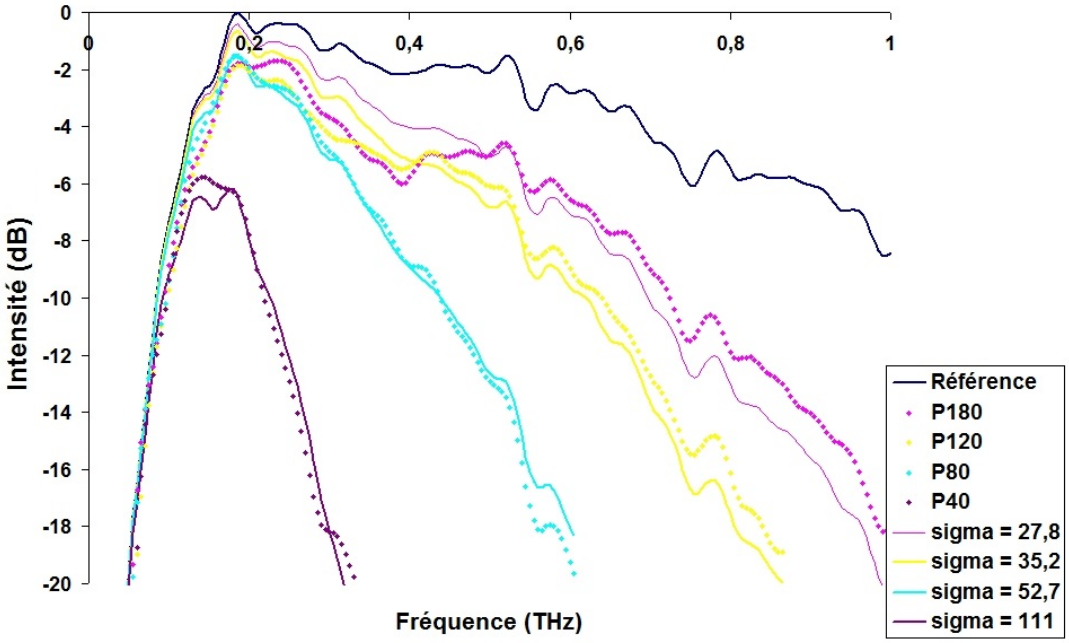



FIGURE 4.24: Transmission à 0°, et valeur de $\sigma$ en $\mu$m permettant la meilleur interpolation au sens des moindres carrés avec l'équation 4.1.

précision sur une large gamme spectrale. Les études que nous avons débutées méritent d'être poursuivies. En effet, pour nos échantillons la présence et la nature d'un substrat sur lequel les grains sont déposés, l'écart type du diamètre des grains et la nature du matériaux constituant ces grains restent inconnus. Toutefois, nous sommes capable de mettre en évidence le phénomène de diffusion, et cela en accord avec des résultats précédemment publiés par d'autres équipes.

Suivant les critères qui pourraient être choisis (ici valeur supérieur à 6 pour le coefficient de diffusion), d'autres valeurs seraient obtenues pour l'apparition de la diffusion. Toutefois, cela n'affecterait pas la conclusion, et le lecteur pourra constater que cette valeur de $\lambda \approx 3$ $\phi$ pour l'apparition du phénomène de diffusion est peu sensible avec la valeur du coefficient multiplicatif choisi (ici 6). Le coefficient de diffusion atteignant brutalement des valeurs très élevées en fonction de la fréquence, la valeur choisie ne modifie que peu les fréquences d'apparition du phénomène. Cette valeur de 6 est suffisamment élevée pour s'assurer que la diffusion devient non négligeable tout en restant assez proche en fréquence du plateau à basse fréquence.

# Troisième partie

# Utilisation de la THz-TDS pour la caractérisation de matériaux et dispositifs.

# Chapitre 5

# Spectroscopie de matériaux pour la sécurité dans le domaine THz.

Cette tâche du projet a pour but la caractérisation de matériaux solides en transmission dans le domaine THz. L'étude concerne la caractérisation de substances pyrotechniques, ainsi que des matériaux permettant leur dissimulation, afin de vérifier la faisabilité d'une détection dans le cadre d'une situation réelle.

## 5.1 Substances pyrotechniques

Le laboratoire n'étant pas doté des équipements nécessaires à la détection et à la manipulation d'explosifs, la caractérisation des matériaux pyrotechniques n'a pu être réalisée au sein du laboratoire. Ainsi, la campagne de mesure des matériaux explosifs a été réalisée à l'ETBS (Etablissement Technique de Bourges). Les mesures ont été réalisées avec un spectroscope transportable mis à disposition par la plateforme ALPHANOV. Le spectroscope THz permet la caractérisation par spectroscopie THz dans le domaine temporel de matériaux sur une bande de fréquences maximale de 100 GHz à 2,5 THz ; la dynamique maximale est de l'ordre de 60-65 dB (voir figure 5.1). Les échantillons caractérisés sont principalement constitués des substances pyrotechniques explosives suivantes : RDX, HMX, TNT et PETN. Seul le SEMTEX (échantillon n°7) est composé d'un mélange de 2 substances actives : PETN et RDX. Par ailleurs, des échantillons de substances pyrotechniques propulsives constitués de Propergol ont aussi été mesurés. Le tableau 5.1 reprends les caractéristiques essentielles de l'ensemble de ces 14 échantillons.

### 5.1.1 Matériaux à base de RDX

Le RDX (cyclotriméthylènetrinitramine) est un explosif militaire considéré comme l'un des plus puissants. Il entre dans la composition de nombreux explosifs composites

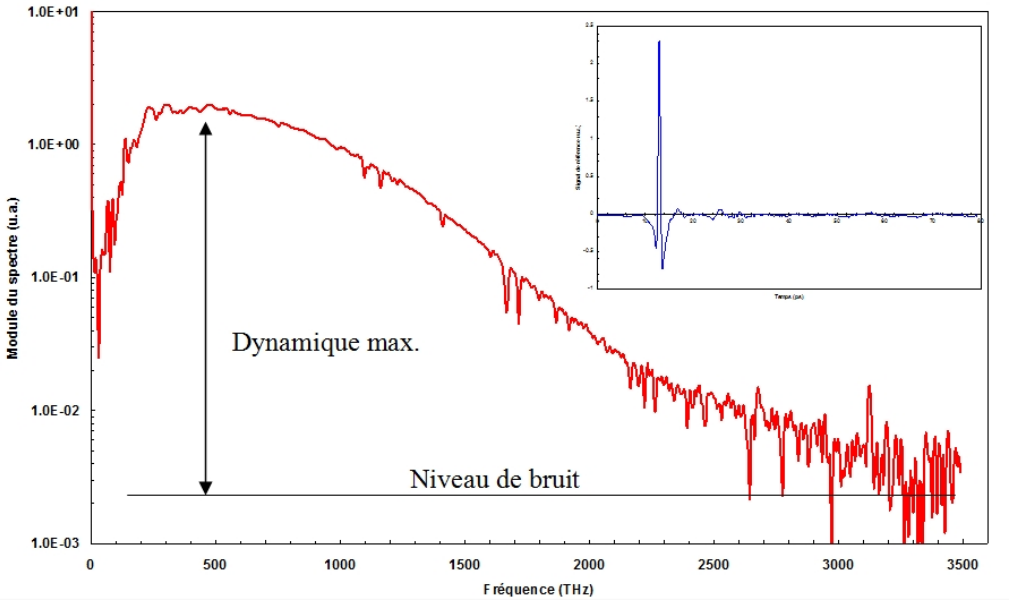



FIGURE 5.1: Spectre de référence du spectromètre THz, le signal temporel est donnée en encart.

| N° Echantillon | Nom de l'échantillon | Provenance | Substance active | Liant | Epaisseur (mm) |
|---|---|---|---|---|---|
| 1 | B2238 | France | RDX (85 %) | PBHT (15 %) | 0,37 |
| 2 | B2263 | France | RDX (88 %) | PBHT (12 %) | 0,26 |
| 3 | Formex F4 HG | France | PETN Pentrite (89 %) | Caoutchouc (11 %) | 0,26 |
| 4 | Octorane ORA-86A | France | HMX octogène (86 %) | Polyuréthane (14 %) | 0,27 |
| 5 | Propergol composite C1597-2 | France | Perchlorate d'aluminium 82 % Aluminium 4% | Polybutadiène (14 %) | 0,29 |
| 6 | Propergol epictète 1244-A | France | Nitroglycérine 45 % Nitrocellulose 45 % | Centralite (10 %) | 0,34 |
| 7 | Semtex | Europe de l'Est | PETN 41 % RDX 41 % | (18 %) = butadiène + huile paraffine | 0,65 |
| 8 | Plastite PLA-NP | France | PETN (87 %) | Huile 9,75% +gomme 3,27 % (13 %) | 0,6 |
| 9 | Formex F4 HG | France | PETN pentrite (89 %) | Caoutchouc (11 %) | 1,05 |
| 10 | Octorane ORA-86A | France | HMX octogène (86 %) | Polyruéthane (14 %) | 0,7 |
| 11 | Propergol composite C1597-2 | France | Perchlorate d'aluminium 82 % Aluminium 4% | Polybutadiène (14 %) | 0,55 |
| 12 | Propergol epictète 1244-A | France | Nitroglycérine 45 % Nitrocellulose 45 % | Centralite (10 %) | 0,6 |
| 13 | C4 | USA | RDX (91 %) | (9 %)=Polybutadiène +huile+di(2-ethylheryl)silicate | 1 |
| 14 | Tolite TNT | France | Tolite (100 %) | - | 0,5 |

TABLE 5.1: Caractéristique des matériaux pyrotechniques caractérisés. On note la présence de trous dans le matériau 5 par absence de certaines particules d'aluminium

(composition A, composition B, C-4, Semtex, H-6, Torpex...). Nous présentons ici les résultats des matériaux numérotés 1, 2 (origine française) et 13 (provenance des États-Unis). L'indice de réfraction et l'absorption de ces matériaux sont donnés en figures 5.2, 5.3 et 5.4.

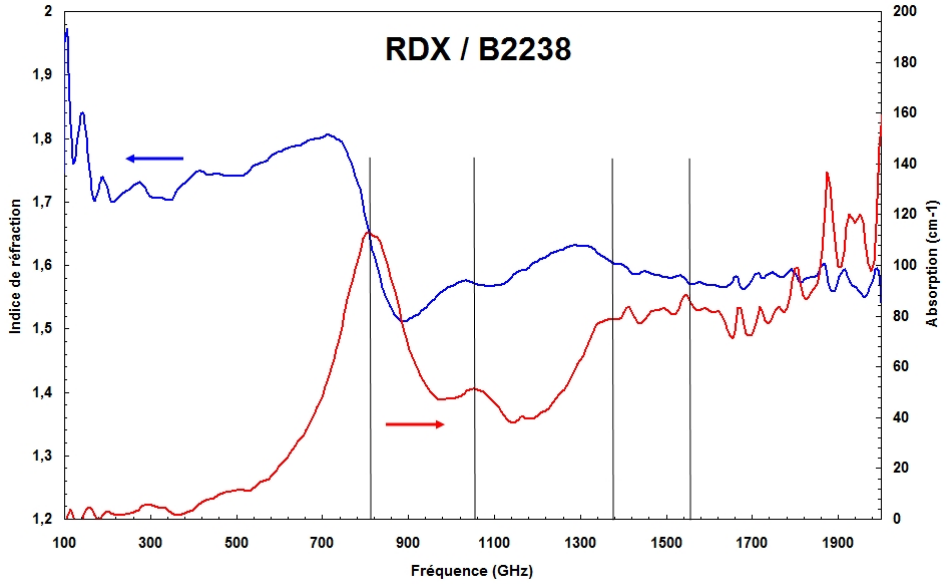



FIGURE 5.2: Indice et absorption de l'échantillon B2238 (85% de RDX + 15% de liant PBHT), échantillon 1.

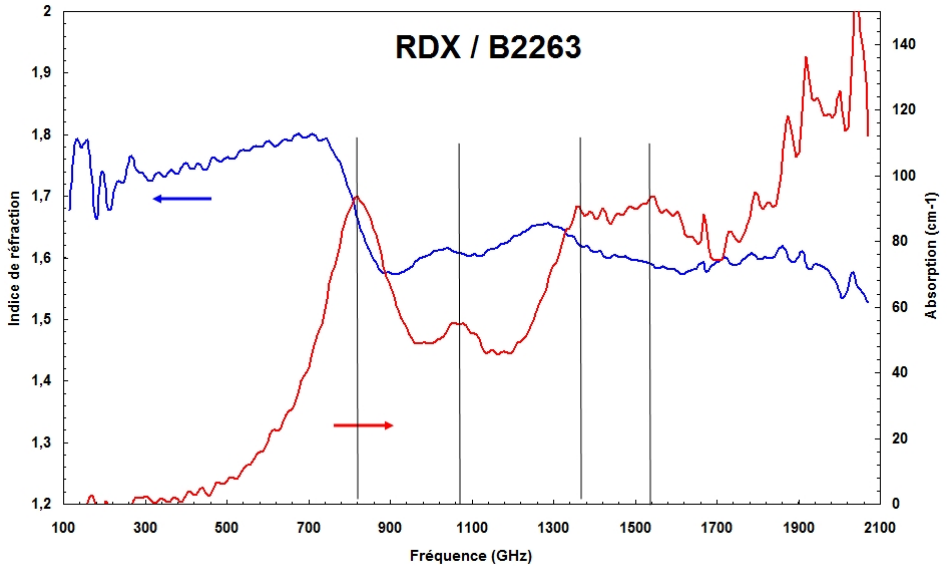



FIGURE 5.3: Indice et absorption de l'échantillon B2263 (88% de RDX + 12% de liant PBHT), échantillon 2.

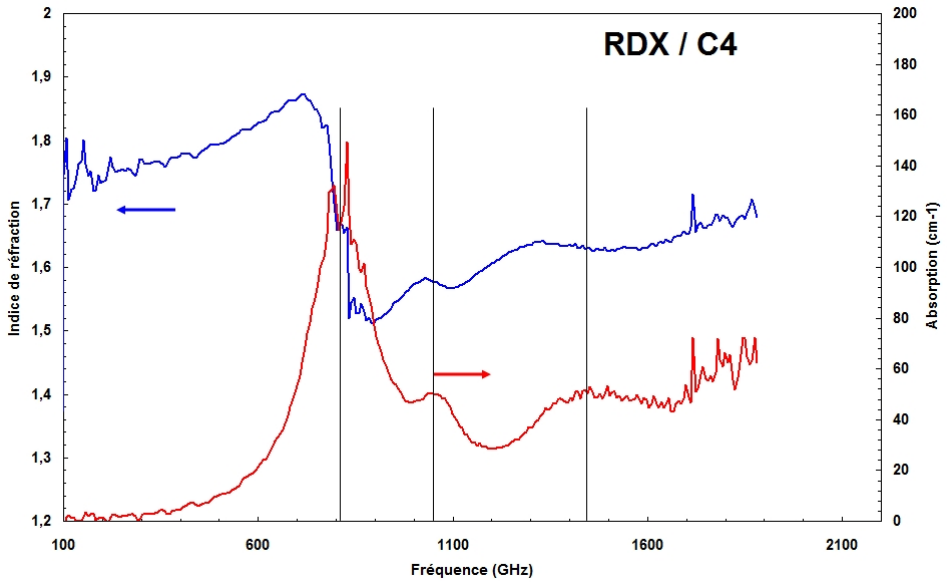



FIGURE 5.4: Indice et absorption de l'échantillon C4 (91% de RDX + 9% de liant Polybutadiène + huile + di(2-ethylheryl) silicate), échantillon 13.

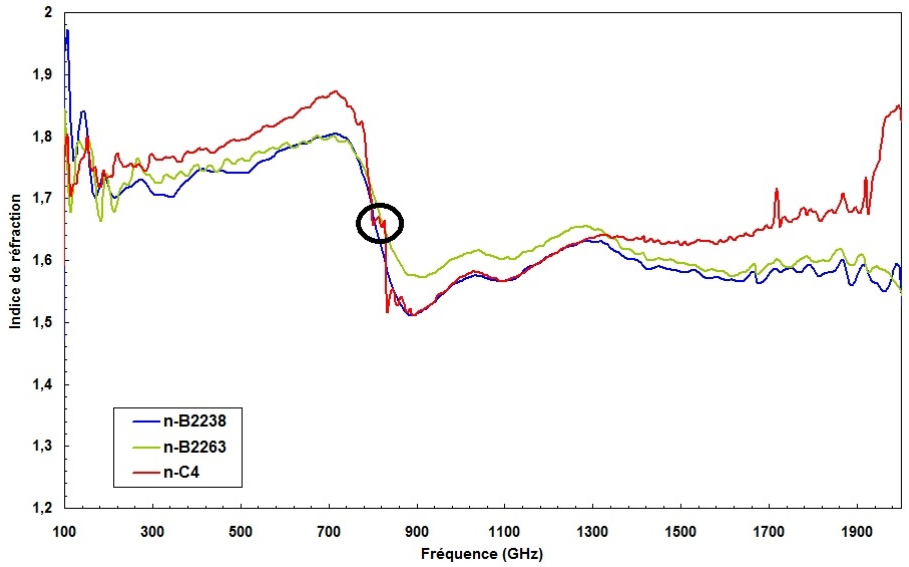



FIGURE 5.5: Comparaison de l'indice de réfraction des explosifs à base de RDX.

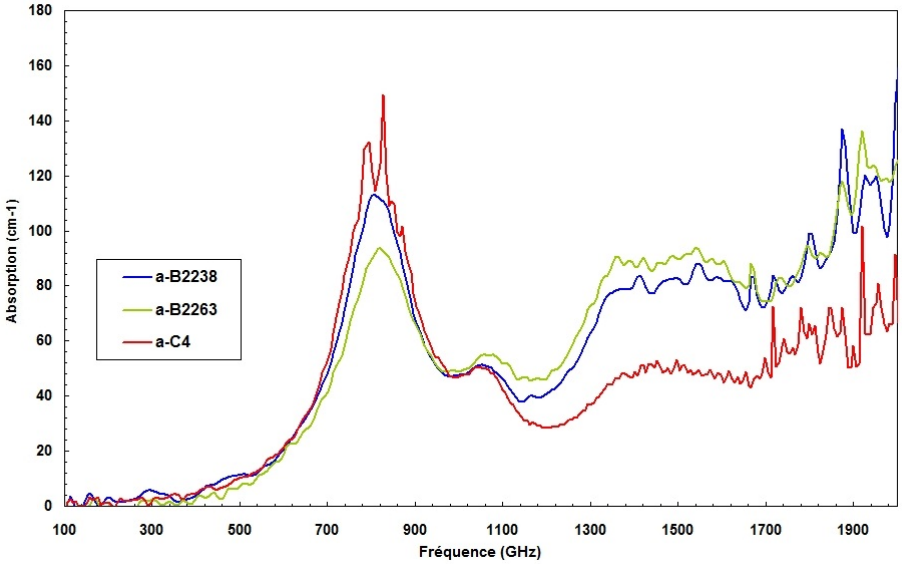



FIGURE 5.6: Comparaison de l'absorption des explosifs à base de RDX.

| **Echantillon** | F1 (THz) | F2 (THz) | F3 (THz) | F4 (THz) | F5 (THz) | F6 (THz) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| B2238 | 0,815 | 1,06 | 1,36 | 1,55 | ? >2 | ? >2 |
| B2263 | 0,821 | 1,07 | 1,36 | 1,55 | ? >2 | ? >2 |
| C4 | 0,815 | 1,06 | - | 1,44 ? | ? >2 | ? >2 |
| RDX [23] | 0,82 | 1,05 | - | 1,50 | 1,96 | 2,20 |
| RDX [22] | 0,82 | 1,05 | - | 1,45 | 1,98 | - |
| RDX [25] | 0,79 | 1,05 | 1,34 | 1,44 | 1,92 | - |

TABLE 5.2: Comparaison des premières raies d'absorption du RDX rapportées dans la littérature, et mesurées sur nos échantillons.

Nous remarquons que le RDX présente une absorption très forte (de l'ordre de plusieur $cm^{-1}$) et un indice de réfraction relativement faible (de 1,6 à 1,7). Sur la courbe 5.6 nous retrouvons les raies d'absorption déjà rapportées dans la littérature (à 0,8 THz, 1,06 THz, 1,36 THz et ≈1,5 THz). Aux fréquences des pics d'absorptions nous observons des variations de l'indice (voir figure 5.5) qui s'expliquent par le lien entre indice et absorption (relations de Kramer-Kronig). Les échantillons de provenance française suivent globalement les mêmes tendances, toutefois l'échantillon B2238 présente des raies bien plus prononcées que le B2263 ce qui est assez étonnant du fait de la teneur moindre en RDX du B2238. L'indice du C-4 présente une différence avec les autres échantillons de RDX (pour les fréquences inférieures à 800 GHz) de l'ordre de 5% sur l'indice qui peut s'expliquer par une erreur sur la mesure de l'épaisseur. En effet, ces échantillons sont mous rendant difficile la découpe de lame à faces parallèles et imprécise les mesures d'épaisseurs. On observe aussi sur l'indice du C-4 un plateau au milieu de la variation rapide à 800 GHz

(voir cercle dans la figure 5.5), ce plateau est un artefact provoqué par la perte du signal. En effet, cette échantillon étant épais il n'y a pas de signal transmis dans cette bande de fréquence, cela empèche la détermination précise de la phase (incertitude modulo-$2\pi$) qui se traduit par un décalage de la valeur d'indice. Un échantillon plus mince de C-4 serait nécessaire pour obtenir une caractérisation rigoureuse de l'indice aux fréquences supérieures à 800 GHz.
Ces caractérisations jusqu'a 2 THz permettent donc d'observer de nombreuses raies caractéristiques du RDX rendant sa détection possible. Notamment la raie à 800 GHz nous apparaît très intéressante pour l'identification du RDX, d'une part par sa forte amplitude, et d'autre part du fait d'une bonne transmission de l'atmosphère à cette fréquence.

### 5.1.2 Matériaux à base de Pentrite - PETN

Le PETN (tétranitrate de pentaérythritol) est un explosif qui compte parmi les plus puissants, il est principalement utilisée dans les cordons détonants et charge de démolition. Nous présentons les résultats obtenus pour des échantillons à base de PETN de provenance française, il s'agit des échantillons 3 et 8 du tableau 5.1 qui diffèrent uniquement par leur épaisseur.

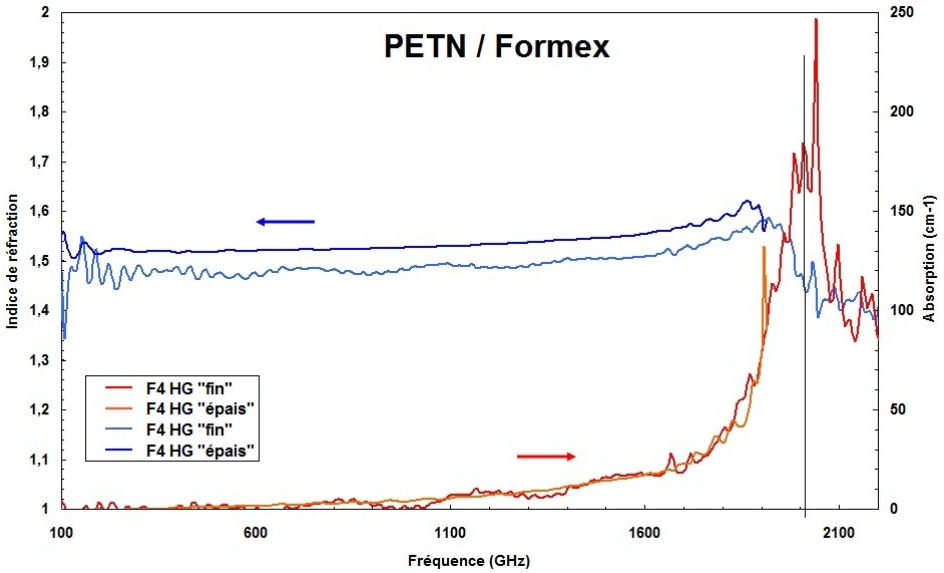



FIGURE 5.7: Indice et absorption des échantillons de Formex (89% de PETN + 11% de liant Caoutchouc) -mesures sur 2 échantillons d'épaisseurs différentes, échantillons 3 et 9.

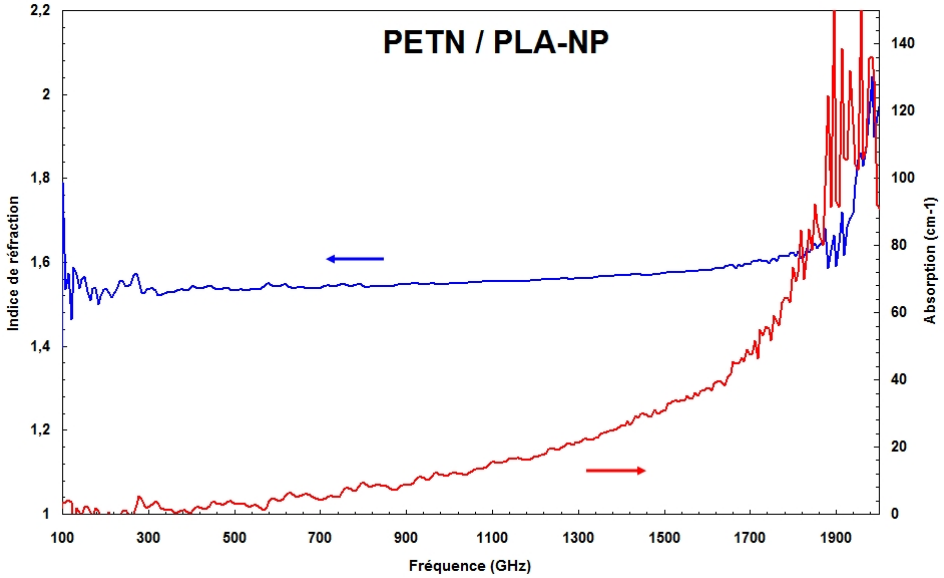



FIGURE 5.8: Indice et absorption de l'échantillon PLA-NP - Plastite (87% de PETN + 11% de liant - huile 9.75% + gomme 3.25%), échantillon 8.

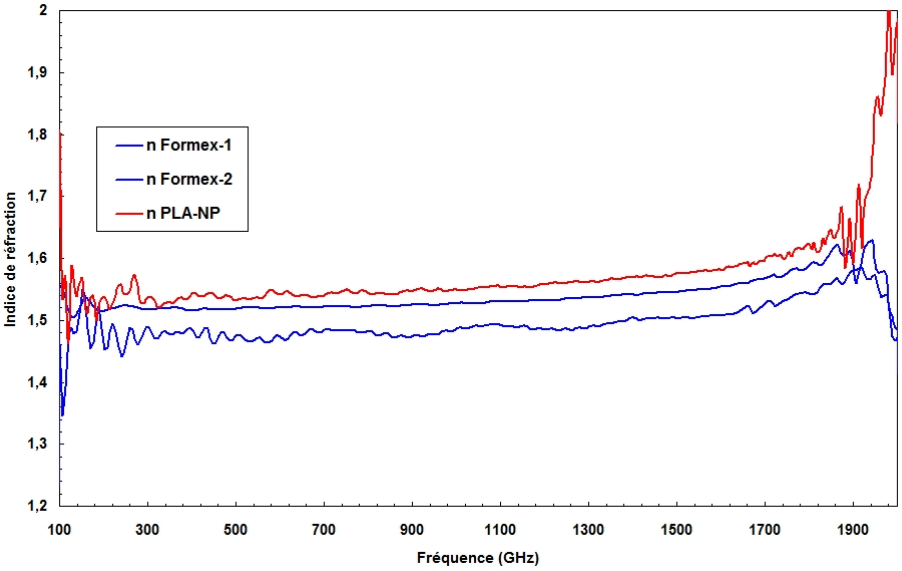



FIGURE 5.9: Comparaison de l'indice de réfraction des explosifs à base de PETN.

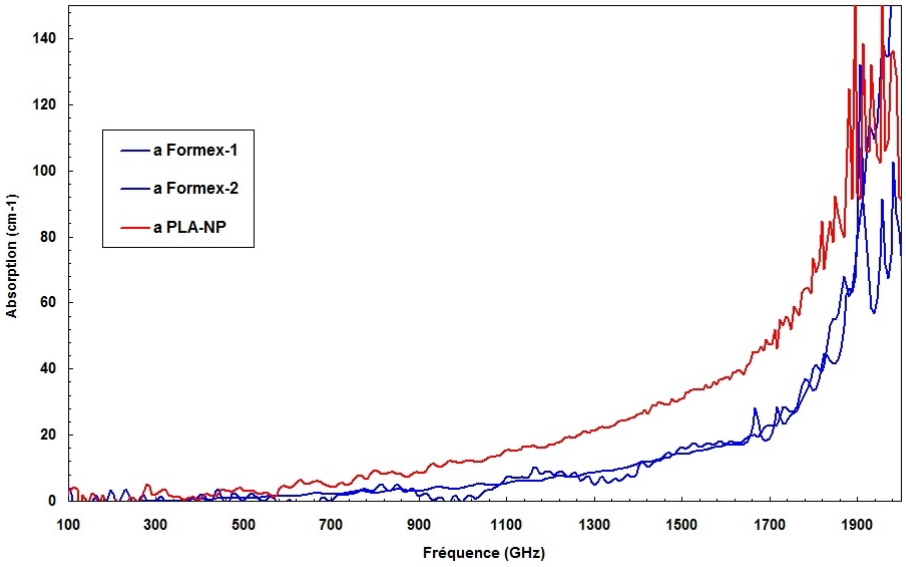



FIGURE 5.10: Comparaison de l'absorption des explosifs à base de PETN.

| **Echantillon** | F1 (THz) | F2 (THz) |
|---|---|---|
| Formex | 2,00 | ? >2 |
| PLA-NP | ? >2 | ? >2 |
| PETN [23] | 2,00 | 2,84 |
| PETN (matrice PTFE) [21] | 1,88 | 2,65 |
| PETN (matrice PE) [21] | 1,82 | 2,63 |

TABLE 5.3: Comparaison des premières raies d'absorption du PETN rapportées dans la littérature, et mesurées sur nos échantillons.

L'absorption du PETN (voir figure 5.10) est globalement faible aux fréquences inférieures à 1,5 THz et augmente brutalement vers 1,7 THz. L'indice de réfraction est constant (de l'ordre de 1,5) jusqu'à 1,7 THz. Nous n'observons pas de raies d'absorption sur la plage de fréquence 0,1-1,7 THz ce qui est en accords avec les données répertoriées dans la littérature. En effet, il est rapporté que la première raie d'absorption se situe à 1,85 THz pour le PETN. Cette forte augmentation de l'absorption que nous observons après 1,7 THz est attribuée à cette raie. Il faudrait obtenir les caractéristiques des échantillons jusqu'à au moins 2,2 THz pour observer complètement cette raie.
On observe de légères différences sur l'indices des échantillons (environ 7 %) (voir figure 5.9) qui ne sont pas significatives au regard des incertitudes sur l'épaisseur. En revanche, pour l'absorption on observe une différence très nette (de l'ordre de 50 %) entre PLA-NP et le Formex qui s'explique par la présence d'un liant différent. La détection du PETN nécessite de travailler au-delà de 2 THz.

### 5.1.3 Semtex

Le Semtex est un explosif composite constitué de RDX et de PETN en provenance d'Europe de l'Est. Nous avons caractérisé un Semtex-H (proportion identique de RDX et de PETN). Les résultats de cette caractérisation sont données en figure 5.11. On observe sur l'absorption la raie à 800 GHz du RDX. Nous avons vue que le PETN ne présentait pas de raies d'absorption (voir figure 5.10) et que la valeur du coefficient d'absorption était très faible pour les fréquences inférieures à 1,5 THz. La signature spectrale du SEMTEX devrait donc être largement dominée par l'allure du spectre du RDX dans cette région (le SEMTEX étant un matériau composé, pour la partie active de 41% de RDX et de 41% de PETN, et de 18% de liant). Cependant nous n'observons qu'une seule raie du RDX sur l'échantillon de SEMTEX.

Afin de mieux comprendre ce phénomène, nous utilisons un modèle de milieu effectif afin de remonter au comportement de ce matériau composite. Pour ce faire, nous avons utilisé le modèle de Maxwell-Garnett : dans ce modèle on considère un composant "noyé" dans une matrice hôte. Les caractéristiques du RDX et du PETN purs n'ayant pu être déterminées (mélange substance active + liant) nous utiliserons les caractéristiques mesurées pour l'échantillon B2238 pour le RDX et l'échantillon Formex pour le PETN. Le modèle du SEMTEX proposé se compose donc d'un mélange de 50 % de ces deux échantillons. Le résultat de ce modèle est aussi affiché sur la figure 5.11. On peut noter que la valeur

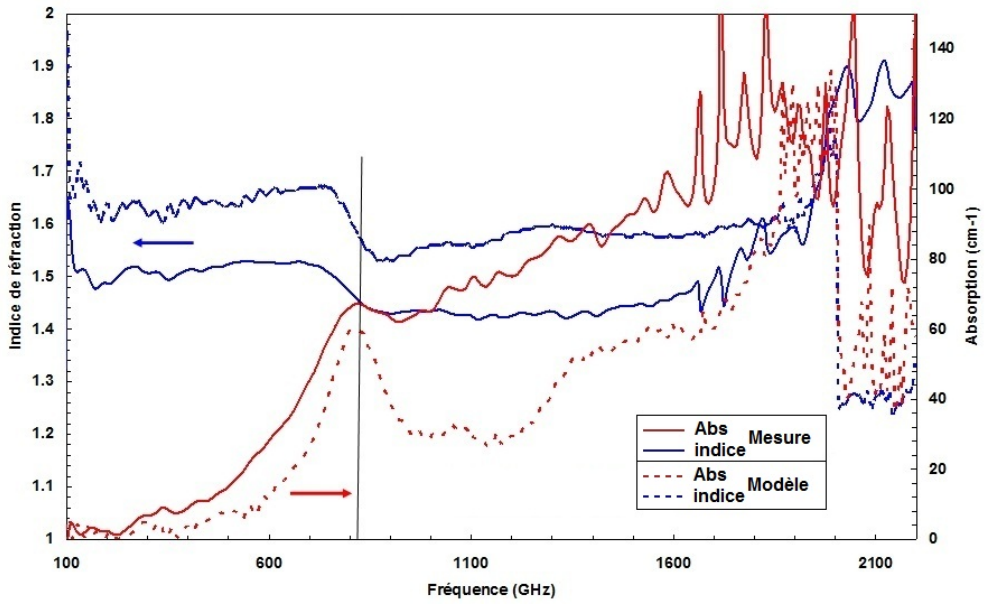



FIGURE 5.11: Comparaison de la mesure du SEMTEX avec le résultat du modèle de Maxwell-Garnett obtenue en considérant 50 % de l'échantillon B2238 et 50 % de l'échantillon Formex.

moyenne mesurée de l'indice de réfraction est inférieure à celle prévue par le modèle. Cette

différence pouvant être due aux différents matériaux liants mis en jeu. En effet, l'échantillon de SEMTEX réel est composé à 18 % de liant, qui n'est pas pris en compte dans le modèle (ces caractéristiques étant inconnues). Seule une mesure sur les matériaux liants et actifs purs pourrait permettre d'expliquer ce phénomène. Une différence du même type peut être observée sur l'absorption (qui est sous-estimée par le modèle) pouvant trouver son explication dans la présence de ces 18 % de liant.
Les résultats du modèle de Maxwell-Garnett pour le SEMTEX présente les mêmes raies d'absorption que le RDX pur (simplement atténuées dû fait de la densité de RDX moindre), les raies 1,36 THz et à 1,55 THz du RDX en deviennent difficilement observable dans le modèle (ainsi que pour l'échantillon réel). Toutefois la raie à 1,06 THz reste tout à fait visible sur le modèle alors que nous n'observons rien de marquant pour l'échantillon de SEMTEX. Le modèle de type Maxwell-Garnett ne permet donc pas d'expliquer complètement la réponse de l'échantillon de SEMTEX. La présence du liant peut définitivement obérer les raies du RDX au-delà de celle à 800 GHz, notamment si l'absorption de ce liant augmente fortement avec la fréquence. Il est aussi possible que les modes de rotation-vibration propres du RDX soient perturbées une fois mélangé avec le PETN, rendant une modélisation de type Maxwell-Garnett non adaptée à ce type de cas. Une étude plus précise du liant et des constituants actifs du SEMTEX (voir de leur provenance) s'avère nécessaire pour aller plus loin dans l'interprétation de ces résultats.

### 5.1.4 Matériaux à base d'Octogène - HMX

Le HMX (cyclotétraméthylène-tétranitramine ou octogène) est un explosif a usage principalement militaire (missiles ou bombes), il est aussi utilisé comme propulseur solide et plus marginalement pour confectionner des cordons de détonation performants. Nous présentons des caractérisations de 2 échantillons (4 et 10) ne différant que par leur épaisseur (voir figure 5.12). Nous n'observons pas de raies d'absorption pour les fréquences

| **Echantillon** | F1 (THz) | F2 (THz) | F3 (THz) |
|---|---|---|---|
| ORA-86A | 1,80 | ? >2 | ? >2 |
| HMX [23] | 1,78 | 2,51 | 2,82 |
| HMX [22] | 1,80 | 2,48 | - |

TABLE 5.4: Comparaison des premières raies d'absorption du HMX rapportées dans la littérature, et mesures de nos échantillons.

inférieures à 1,8 THz. L'indice est donc globalement constant et l'absorption augmente continuellement sur cette plage de fréquence. Nous observons une différence notable des

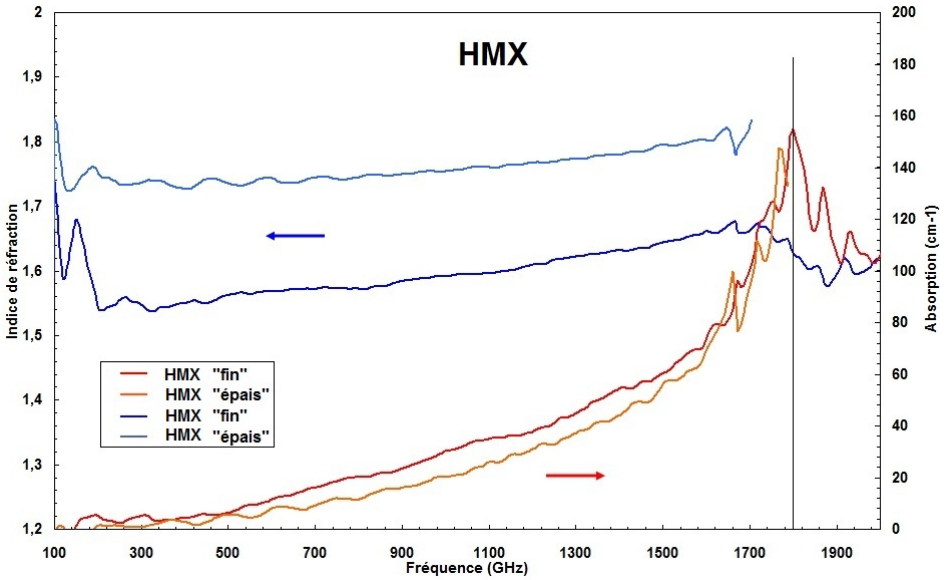



FIGURE 5.12: Indice et absorption des échantillons d'octorane ORA 86-A - (86% de HMX + 14% de liant Polyuréthane) -mesures sur 2 échantillons d'épaisseurs différentes, échantillons 4 et 10.

paramètres optiques des 2 échantillons de ORA-86A. Cette différence (de 13 % pour l'indice) n'est pas sensible au regard des difficultés expérimentales. Nous rappelons que les mesures ont été effectuées sur un site extérieur, qu'il nous est impossible de manipuler les échantillons afin d'en vérifier les épaisseurs, et que leur découpe est délicate. Il serait nécessaire de pouvoir contrôler de nouveau les échantillons afin de vérifier si ces différences sont pertinentes.

### 5.1.5 Matériaux à base de tolite - TNT

Le TNT (trinitrotoluène) est un explosif qui n'est plus beaucoup utilisé dans les usages militaires, il est moins puissant que d'autres explosifs et difficile à faire exploser. Lors de la première guerre mondiale ces propriétés lui permettait de surpasser certain explosif plus puissant en terme de pouvoir destructeur pour les torpilles (il explosait après l'impact).

| **Echantillon** | F1 (THz) | F2 (THz) | F3 (THz) |
|---|---|---|---|
| TNT | 0,916 | $\approx$ 1,62 | $\approx$ 2,20 |
| TNT [23] | - | 1,66 | 2,20 |
| TNT (liant PTFE) [21] | - | 1,61 | 2,17 |
| TNT (liant PE) [21] | - | 1,66 | 2,19 |

TABLE 5.5: Comparaison des premières raies d'absorption du TNT rapportées dans la littérature, et mesures de notre échantillon.

L'absorption du TNT est assez faible, et l'indice globalement égale à 1,64 de 0,1 à 2 THz.

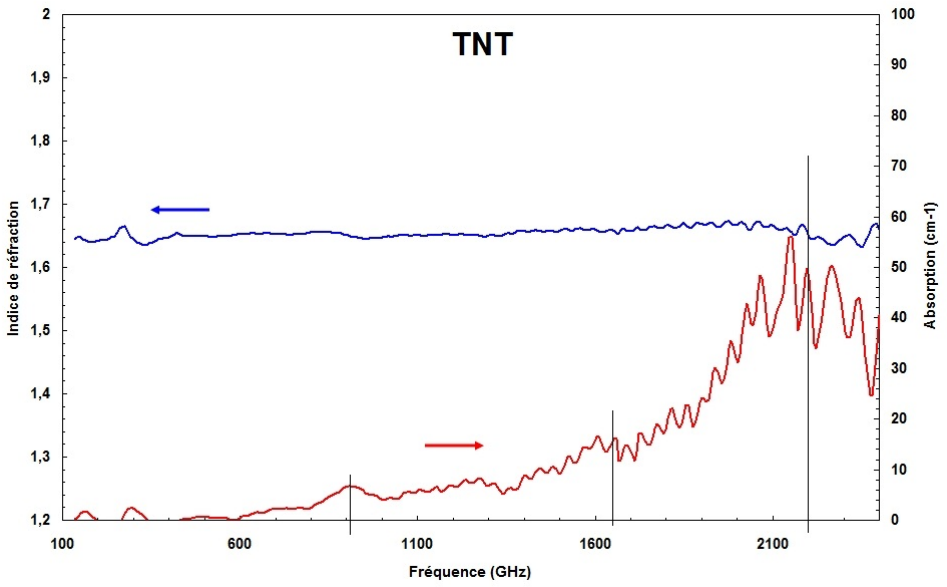



FIGURE 5.13: Indice et absorption des échantillons de tolite - TNT - (100 % de TNT), échantillon 14.

Nous observons bien les raies déjà présentées par d'autres équipes à 1,62 et 2,2 THz. Nous observons en revanche une raie à 916 GHz dont peu d'études en font le constat pour le TNT. L'étude M. R. Leahy-Hoppa *et al.* [28] (voir figure 1.3).b montre l'existence de 2 raies rapprochées (l'une à environ 800 GHz et l'autre à 1100 GHz). Ces deux raies étant de faible amplitude il se peut que nous ne soyons pas en mesure de discriminer précisement ces deux raies. La présence d'une ou de deux raies d'absorption (largement absentes de la plupart des autres études), exigerait pour être validé des mesures avec des échantillons parfaitement contrôlés et d'épaisseur supérieurs afin d'augmenter la sensibilité pour ces fréquences.

### 5.1.6 Matériaux à base de Propergol

Les propergols font parties du groupe des matériaux énergétiques, l'énergie est libérée par réaction d'oxydo-réduction entre les molécules de comburant (oxydant) et le combustible (réducteur). Les propergols composites sont les plus utilisés pour l'entretien du mouvement d'engin autopropulsé (missile), notamment grâce au processus de fabrication par moulage (et non par extrusion à la presse) permettant d'obtenir des cylindres de toutes formes et dimensions, directement adaptés à la tuyère de l'engin à propulser. Ils sont notamment composés de :

- Une charge oxydante à 60-70 %, le plus souvent du perchlorate d'ammonium, qui fournira l'oxygène nécessaire à la combustion
- Un liant polymérique qui assurera les propriétés mécaniques du bloc de propergol

- Un réticulant (permet la formation de chaînes de molécules, en vue d'obtenir un solide)
- Un combustible à 15-20 % (généralement l'aluminium)

Les propergols epictètes sont des propergols intégrant des catalyseurs permettant d'obtenir une vitesse de combustion et un coefficient de température peu dépendants de la pression et de la température extérieure. Nous avons pu caractériser un propergol composite et un propergol epictète. Les résultats obtenus sur ces échantillons sont présentés en figure 5.14 et 5.15. Les mesures effectuées sur les 2 échantillons de propergol composite C1597

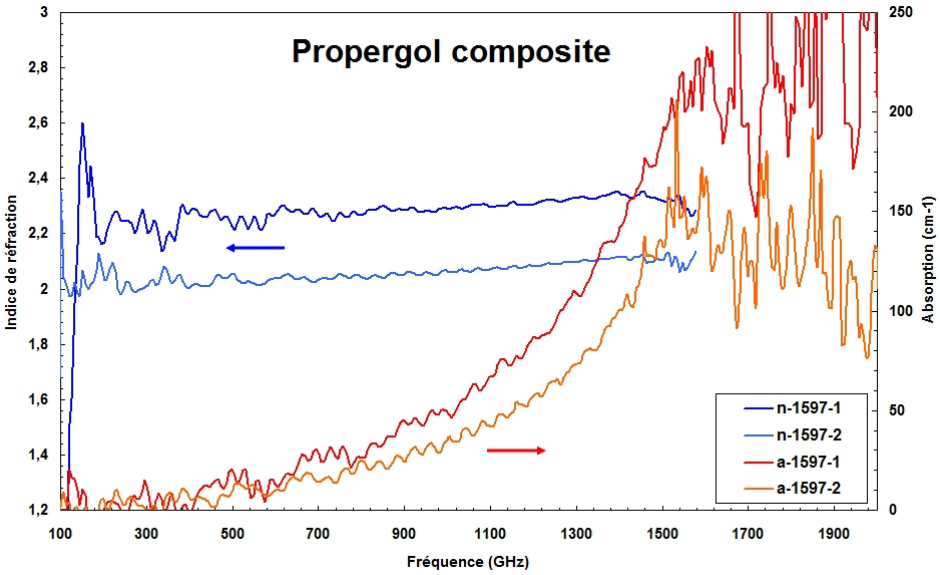



FIGURE 5.14: Indice et absorption des échantillons de propergol composite C1597-2 - (Perchlorate d'ammonium 82 %, Aluminium 4% + 14% de liant Polybutadiène) -mesures sur 2 échantillons d'épaisseurs différentes, échantillons 5 (foncé) et 11 (clair).

(voir figure 5.14) présentent une différence notable de leurs paramètres optiques. Une constitution différente ou une erreur d'évaluation de l'épaisseur de l'un des échantillons peuvent être à l'origine d'une telle différence. Il s'avère par ailleurs que, du fait de la constitution granulaire du matériau, l'échantillon le plus fin (échantillon n°5) présentait des absences de matière (essentiellement une absence de certaines particules d'aluminium). Ce manque d'aluminium ne peut expliquer les différences observées puisque nous devrions alors noter une diminution de l'indice de réfraction et de l'absorption, effet contraire à celui observé. Toutefois l'intégrité de l'échantillon n'étant pas assurée les mesures sur l'échantillon 5 présentent une incertitude plus grande.

Le comportement des 2 types de propergols présentent des différences notables à la fois sur l'indice de réfraction 5.16 et sur le coefficient d'absorption 5.17. Les valeurs plus fortes d'indice et d'absorption du C1597 sont probablement dues à la présence de particules

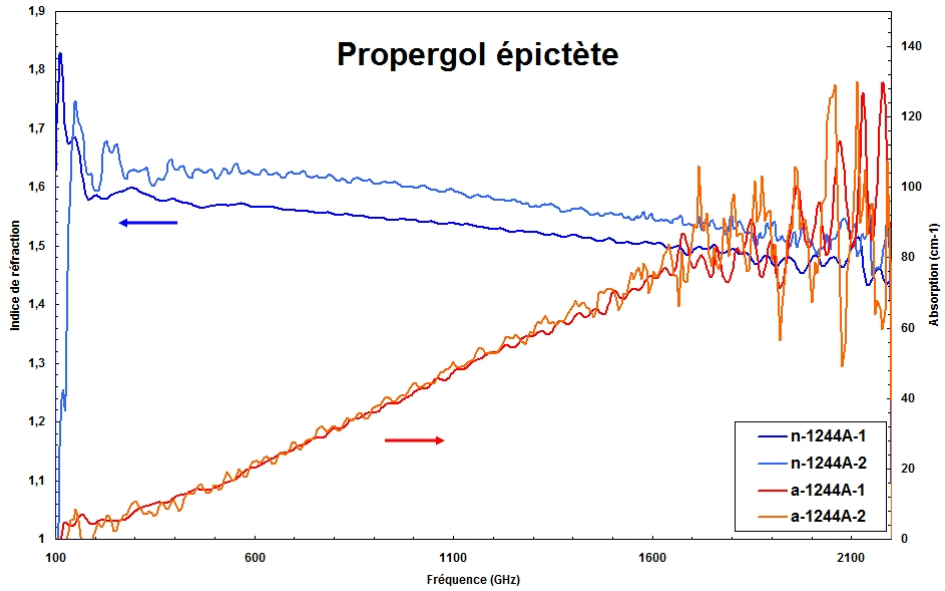



FIGURE 5.15: Indice et absorption des échantillons de propergol epictète 1244-A - (nitroglycérine 45% Nitrocellulose 45% + 10% de liant centralite) -mesures sur 2 échantillons d'épaisseurs différentes, échantillons 6 (foncé) et 12 (clair).

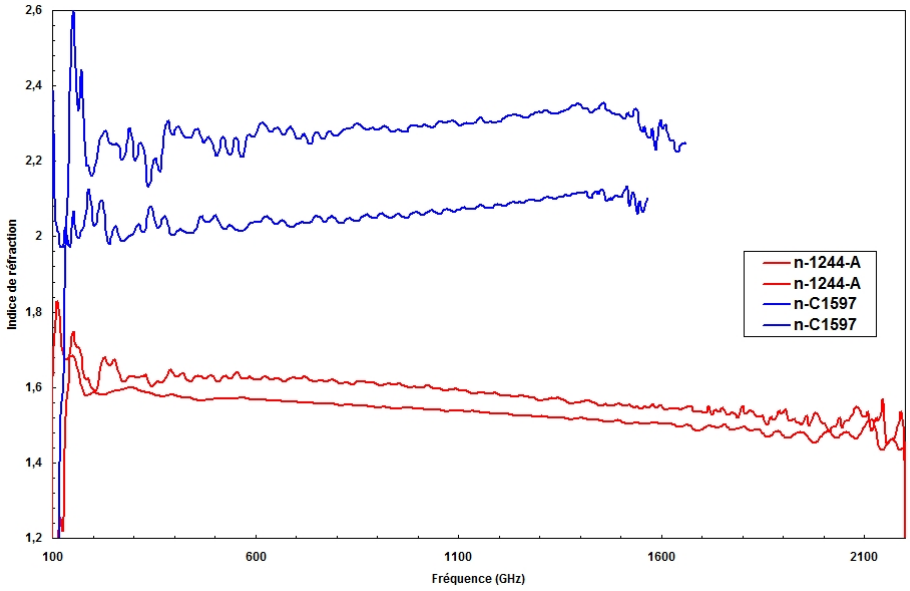



FIGURE 5.16: Comparaison de l'indice de réfraction des propergols.

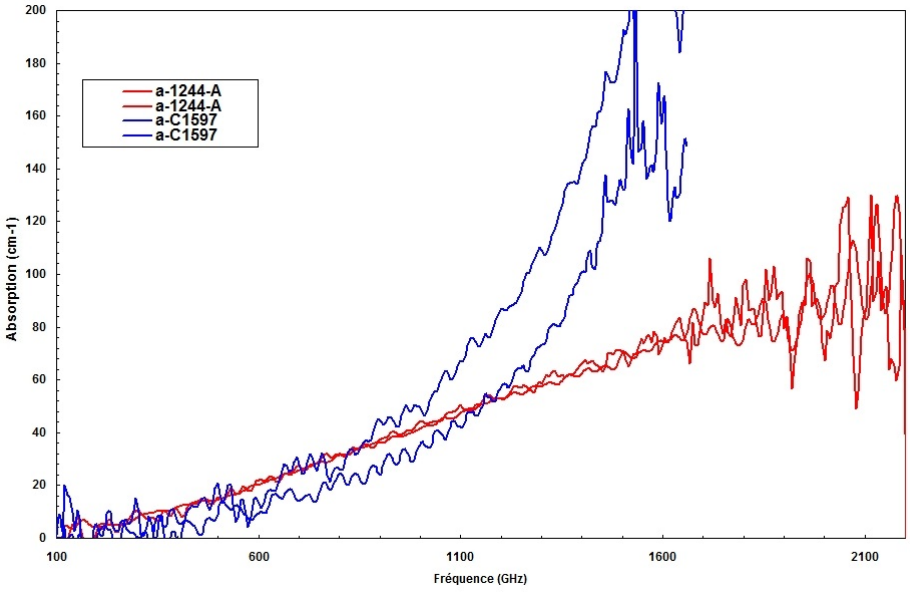



FIGURE 5.17: Comparaison de l'absorption des propergols.

d'aluminium dans sa composition.

### 5.1.7 Perspectives

La bande passante du spectromètre THz étant limitée à environ 2 THz en présence d'échantillon, il nous est donc impossible d'observer de nombreuses raies caractéristiques des matériaux mesurés. De ce fait, des études plus poussées avec un spectromètre plus performant seraient intéressantes, plus particulièrement pour les échantillons de PETN, de TNT et de HMX qui nécessitent une bande passante d'au moins 3 THz pour observer plusieures autres de leurs raies d'absorption. Une telle bande passante permettrait aussi à terme d'identifier le type d'explosif en présence.

Ces études complémentaires pourraient aussi s'intéresser aux échantillons et/ou matériaux présentant des incohérences ou des problèmes de reproductibilité sur les résultats (problèmes liés vraisemblablement à l'échantillon : homogénéité de constitution, d'épaisseur, liant, difficulté de la découpe, provenance des liants et des matériaux actifs ...). L'étude des différents matériaux à base de RDX pourrait-être prolongée par une étude plus spécifique en fonction de la provenance du matériau afin d'évaluer plus précisément l'incidence de ce paramètre dans la signature du matériau et de son liant.

Une mesure plus précise du TNT permettrait aussi de valider définitivement l'existence de raies d'absorption autour de 0,916 THz, qui sont bien souvent absentes des caractérisations réalisées par d'autres équipes. Cependant cette raie est faiblement marquée et semble difficilement utilisable pour la détection de ce matériaux en configuration réelle.

Finalement, l'étude de l'influence de mélange comme le SEMTEX (RDX+PETN) et de

sa modélisation par les modèles de milieux effectifs (type Maxwell-Garnett) nécessite une étude plus fine des composants de base des matériaux composites. Ainsi la signature propre des matériaux "purs" (matériaux énergétiques et liant) semble indispensable pour mieux cerner les possibilités de ces modèles à prévoir les signatures des matériaux composites.

## 5.2 Matériaux de dissimulation

Dans mon travail de thèse je me suis intéressé aux matériaux pouvant être utilisés pour l'emballage et/ou la dissimulation des substances sensibles devant être détectées. La gamme de ces matériaux étant très vaste, nous cherchons donc des tendances, en effectuant des mesures sur quelques échantillons typiques et en extrapolant aux matériaux voisins. Nous avons étudié différents matériaux que nous avons classés dans quatre catégories différentes. Les matériaux à base de bois, englobent des bois bruts, des bois agglomérés et contre-plaqués. Les papiers et cartons constituent le second groupe. Le troisième groupe, regroupe des matériaux de construction (roche calcaire, ciment, brique, et plâtre). Enfin le dernier groupe rassemble les textiles (laine, coton et cuir).

### 5.2.1 Remarques sur les données présentées

Tous les échantillons de matériaux mesurés sont répertoriés dans le tableau 5.6. Les graphiques présentés sont obtenus en moyennant 6 mesures. Il est important de prendre en compte l'erreur due à l'incertitude sur la détermination de l'épaisseur $e$ de l'échantillon, qui au premier ordre est donnée par $\frac{\Delta e}{e} = \frac{\Delta n}{n-1} = \frac{\Delta \alpha}{\alpha}$. Notons que nous prendrons pour $\Delta e = \pm 1$ écart type sur l'épaisseur. Dans la zone centrale des spectres mesurés, cette incertitude sur l'épaisseur est prépondérante et correspond pratiquement à l'incertitude totale sur la détermination de l'indice et de l'absorption. A basses fréquences (100 $\sim$ 200 GHz) ou à hautes fréquences, le signal THz diminue : l'indice et l'absorption sont donc déterminés avec une précision moindre. Pour les matériaux inhomogènes, la mesure en deux endroits de l'échantillon conduit souvent à une dispersion des résultats qu'il ne faut pas confondre avec l'incertitude de mesure. Dans l'annexe D, les résultats des caractérisations sont donnés avec l'incertitude correspondant à l'erreur sur l'épaisseur.

### 5.2.2 Matériaux à base de bois

Nous présentons ici les mesures sur les matériaux à base de bois. Il s'agit de différents types de bois bruts (résineux 5.18 et feuillus 5.19), d'agglomérés et de contre-plaqués 5.20. Les figures 5.18, 5.19, et 5.20 montrent des absorptions qui augmentent avec la fréquence

| Echantillon | référence | épaisseur (mm) | écart type épaisseur (mm) | remarques |
|---|---|---|---|---|
| Bois résineux | B1 | 2.608 | 0.074 | pin ou sapin |
| Bois résineux | B2 | 3.682 | 0.181 | pin ou sapin |
| Bois résineux | B3 | 2.218 | 0.085 | pin ou sapin |
| Bois résineux | B4 | 2.848 | 0.094 | pin ou sapin |
| Essence de hêtre | B5 | 0.565 | 0.0138 | |
| Essence de chêne | B6 | 0.653 | 0.0216 | |
| Essence d'Acajou 1 | B7 | 0.727 | 0.0202 | |
| Essence d'Acajou 2 | B8 | 0.548 | 0.0232 | |
| Aggloméré | A1 | 1.858 | 0.063 | agrégat très fin, grande homogénéité |
| Aggloméré | A2 | 1.578 | 0.06 | agrégat très gros, haute homogénéité |
| Contre Plaqué | CP1 | 14.32 | 0.07 | extraction impossible |
| Contre Plaqué | CP2 | 11.7 | 0.02 | basse fréquence |
| Contre Plaqué | CP3 | 7.71 | 0.05 | extraction impossible |
| Carton | C1 | 2.324 | 0.039 | carton alvéolé,période 5.75mm |
| Carton | C2 | 3.452 | 0.099 | carton alvéolé, période 7.6mm |
| Papier | P80 | 0.101 | 0.002 | 80 $g/m^2$ papier blanc |
| Papier | P100 | 0.119 | 0.001 | 100 $g/m^2$ papier blanc |
| Papier | P160 | 0.185 | 0.003 | 160 $g/m^2$ papier blanc |
| Papier | P200 | 0.195 | 0.001 | 200 $g/m^2$ papier blanc |
| Papier | P240 | 0.222 | 0.0057 | 240 $g/m^2$ papier canson blanc |
| Pâte de ciment | PC | 1.091 | 0.012 | |
| Roche marquise | RM | 0.835 | 0.001 | roche calcaire |
| Plâtre | Pl | 2.32 | 0.05 | |
| Brique | Br | 4.083 | 0.07 | |
| Tissus | Lai1 | 4 | 1 | Laine |
| Tissus | Lai2 | 4.5 | 1 | Laine |
| Tissus | Cot1 | 0.65 | 0.1 | Coton |
| Tissus | Cot2 | 0.7 | 0.2 | Coton |
| Cuir | Cr1 | 2.04 | 0.1 | |
| Cuir | Cr2 | 2.73 | 0.2 | |

TABLE 5.6: Matériaux de dissimulation caractérisés

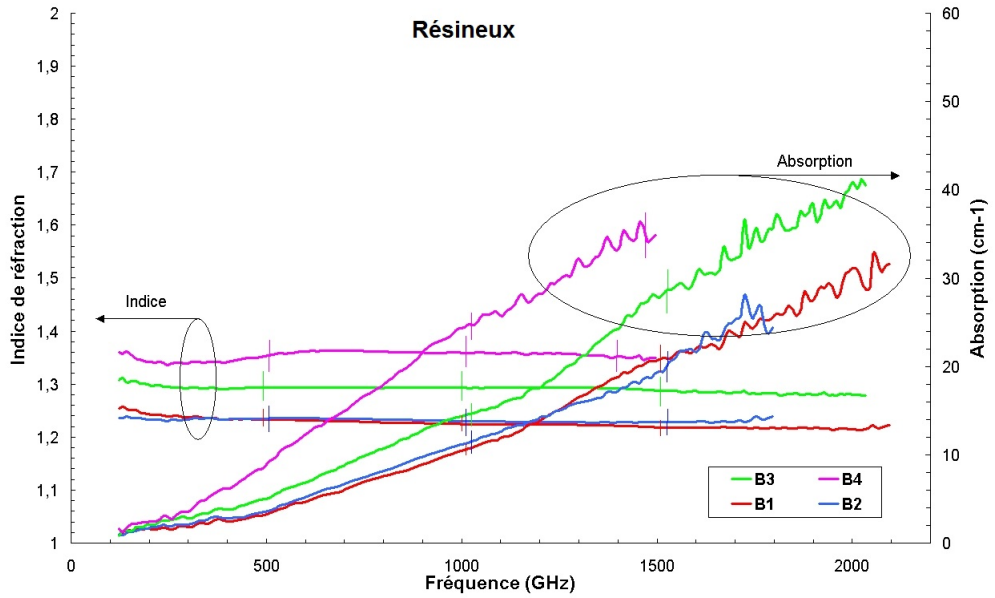



FIGURE 5.18: Absorption et indice pour des bois de type résineux (B1-B2-B3-B4).

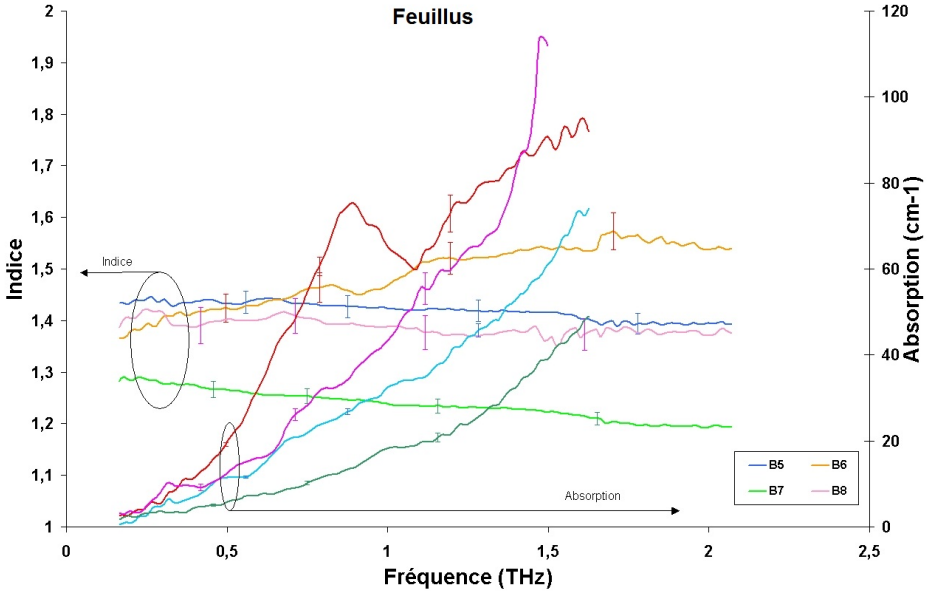



FIGURE 5.19: Absorption et indice pour 4 essences de bois (hêtre B5, chêne B6, Acajou B7 et B8).

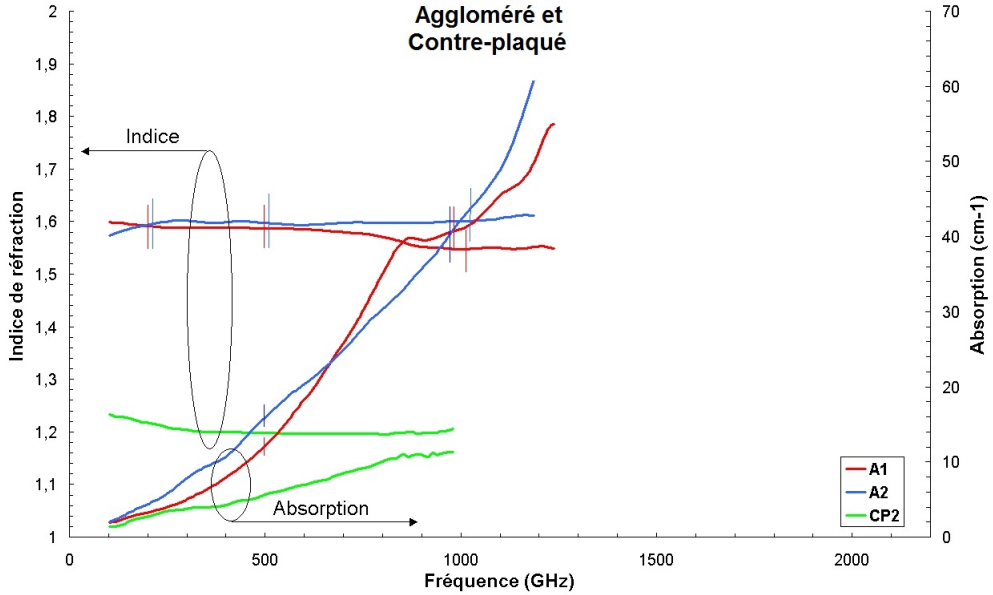



FIGURE 5.20: Absorption et indice pour des bois agglomérés (A1, A2) et du contre-plaqué (CP2).

et qui atteignent rapidement la dizaine voire quelques dizaines de $cm^{-1}$. Pour les bois nous constatons que les résineux (type sapin, pin) présentent une absorption plus faible que les feuillus (être, chêne, acajou), cela s'interprète facilement dans la mesure ou la densité des feuillus est en général supérieure à celle des résineux. Les résineux présentent une absorption de $\approx$ 15 $cm^{-1}$ à 1 THz alors qu'elle est déjà d'environ 40-50 $cm^{-1}$ pour les feuillus. Pour la même raison l'indice des feuillus ($\approx$1,38 à 1 THz) est supérieur à celui des résineux ($\approx$1,28 à 1 THz). Par ailleurs les échantillons de bois naturels présentent une anisotropie structurelle (ensemble de fibre longiforme) qui conduisent à une anisotropie des caractéristiques optiques. Les mesures présentées précedemment correspondent au cas d'un champ électrique incident parallèle aux fibres. La figure 5.21 présente les variations sur l'indice et l'absorption de 3 échantillons de bois résineux. On observe une anisotropie notable de l'ordre de 0,1 sur l'indice. Par exemple, M. Reid *et al.* ont utilisé cette biréfringence naturelle pour réaliser une lame quart et demi onde dans le domaine THz [100]. Le contre-plaqué présente une absorption proche des résineux à 1 THz. La caractérisation

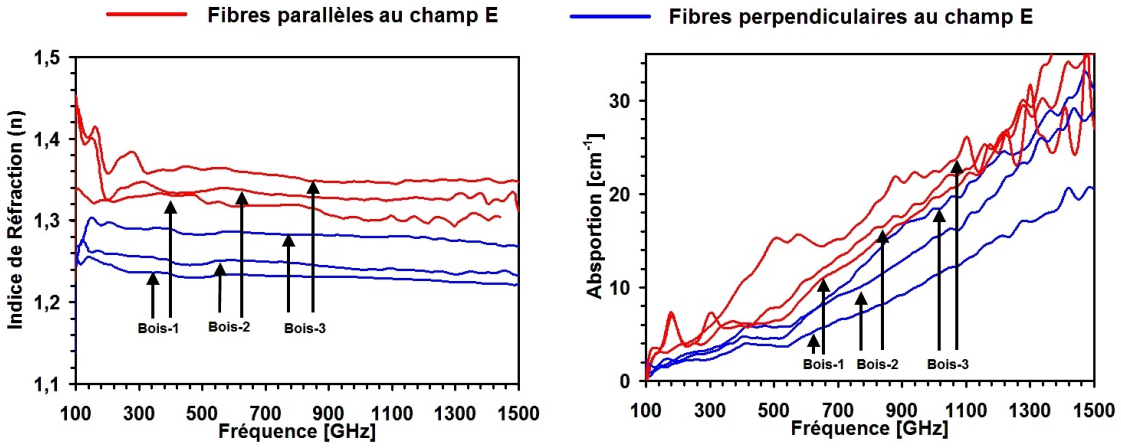



FIGURE 5.21: Indice et absorption pour différentes directions de polarisation du champ électrique par rapport aux fibres des bois.

de CP2, seul échantillon de contre-plaqué dont les mesures furent exploitables (les autres étant trop épais), présente une bande spectrale réduite (1 THz au maximum). Ce type d'échantillon ne peut pas être aminci du fait de la structure multicouche du matériau, les résultats ne pourront donc pas être améliorés en terme de bande passante. Il est toutefois intéressant de constater que le contre-plaqué et les bois ont un comportement très proche. Les bois agglomérés sont en général fabriqués à partir de résineux mais présentent néanmoins un indice bien plus élevé que ces derniers. Cette différence de comportement peut s'expliquer par la présence de colle en quantité notable pour lier les agrégats de bois entre eux. Par ailleurs cette différence n'est pas observée sur le bois contre-plaqué dans lequel la quantité de colle est bien moins importante. On observe aussi dans les bois agglomérés

une absorption bien supérieure à celle des résineux (de l'ordre du double, environ 40 $cm^{-1}$ à 1 THz) ; la présence de colle mais surtout la diffusion du signal par les agrégats peuvent expliquer cette différence.
Les courbes suggèrent la possibilité de distinguer différentes essences de bois, mais l'incertitude sur l'épaisseur, ainsi que l'inhomogénéité de structure ou de nature (veines, nœuds dans le bois, agrégat grossier dans aggloméré ...) dans la zone sondée par le faisceau THz rendent hasardeuse cette identification. Les mesures d'humidité faites sur les échantillons (B5-B6-B7-B8) présente une humidité mesurée à 10 % (mesure à l'aide d'un humidimètre à bois) elle correspond à l'humidité des bois considérés comme secs en intérieur.
En conclusion on peut considérer que les matériaux à base de bois ne sont pas transparent au rayonnement THz aux épaisseurs usuelles, rendant toute mesure au travers impossible.

### 5.2.3 Papiers et cartons

La figure 5.22 présente les résultats obtenus sur des papiers blancs de différentes épaisseurs, la figure 5.23 concerne deux échantillons de carton alvéolé. Le papier présente une

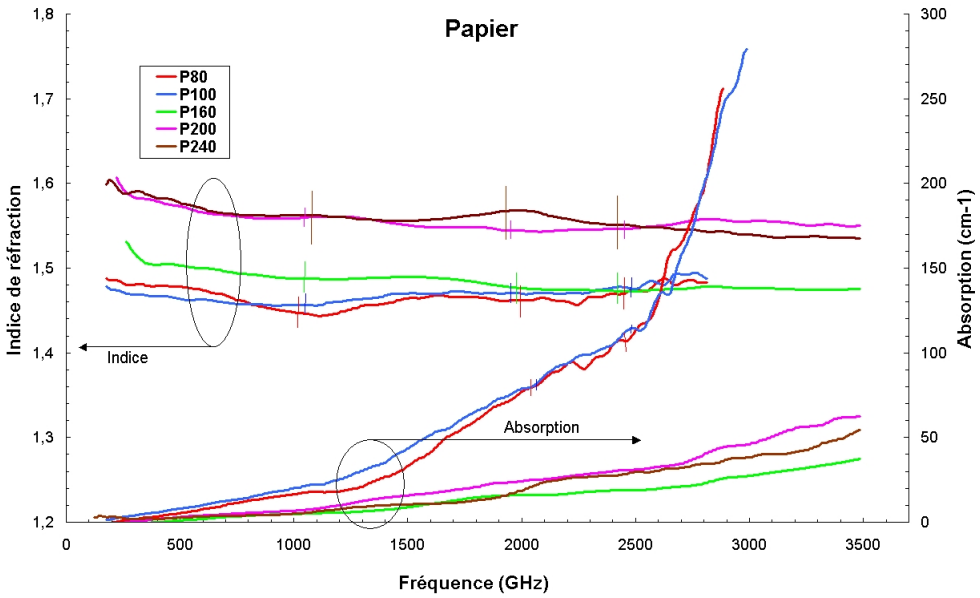



FIGURE 5.22: Absorption et indice pour différents papier (P80, P100, P160, P200, P240 pour respectivement 80g, 100g, 160g, 200g, et 240g au mètre carré).

absorption de 15 $cm^{-1}$ à 1 THz, par ailleurs très proche de celle des bois (40 % à 50 % de cellulose dans le bois), mais de par son épaisseur très faible, il n'atténue que peu le signal, permettant une caractérisation à haute fréquence (jusqu'a 3,5 THz). Pour certains papiers, notamment P160 et P200, la précision des mesures est limitée par la faible épaisseur des échantillons. L'interaction matériau-champ THz est donc faible et limite la sensibilité de l'expérience. Lorsque la modification du signal de référence par la présence

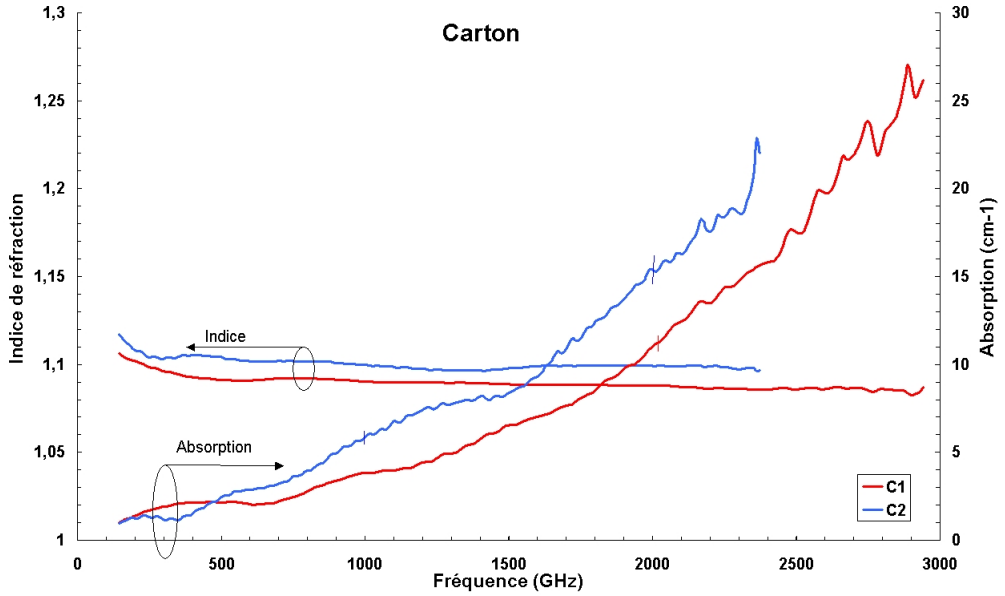



FIGURE 5.23: Absorption et indice pour du carton alvéolé (C1, C2).

d'un échantillon est égale (voire inférieure) à la sensibilité de l'expérience, la précision avec laquelle sont déterminés les paramètres optiques et notamment le coefficient d'absorption chute drastiquement, notamment à basses fréquences où seule une valeur maximum de ce paramètre peut être évaluée.

Pour les différents papiers mesurés on observe que les valeurs de l'indice et de l'absorption ne sont pas liées : un fort indice n'est pas systématiquement associé à une forte absorption. En examinant les résultats sur l'indice de réfraction, nous sommes capables de relier nos observations à la densité du papier (voir figure 5.24). L'indice de réfraction est donc

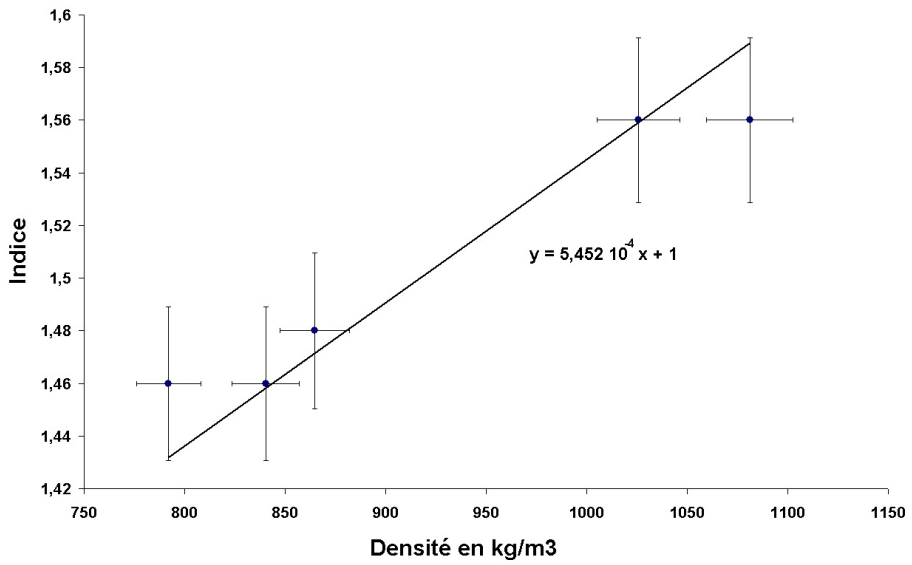



FIGURE 5.24: Indice de réfraction des papiers en fonction de leur densité à 1 THz.

proportionnel à la densité du papier. Pour l'absorption, un autre phénomène physique est impliqué. En effet, l'amplitude du signal transmis ne varie pas linéairement avec la densité. Une explication possible est l'humidité en surface du papier qui est d'autant plus visible que l'échantillon est fin. Une autre piste est la présence de charges minérales dans les papiers (afin de contrôler le blanchissage, glassage, gonflant...) qui varient en nature (dioxyde de titane, carbonate de calcium, ou encore kaolin ...) et en proportion pouvant jouer un rôle significatif dans la dispersion de nos résultats (notamment sur l'absorption). Ces paramètres n'étant pas évaluables a posteriori sur nos échantillons, seule une étude complémentaire permettrait de trouver l'origine de ces différences.

Par ailleurs, le carton alvéolé présente une absorption assez basse (5 $cm^{-1}$), essentiellement du fait de la grande portion d'air dans la structure, (ce qui explique la large bande de caractérisation jusqu'à 2.5-3 THz). Les résultat présentés concernent des mesures faites avec une direction de polarisation parrallèle aux alvéoles des cartons. En effet, en raison de leur anisotropie structurelle les échantillons de carton alvéolaire peuvent présenter une anisotropie dans le domaine THz. La figure 5.25 présente les résultats obtenus sur 2 échantillons de carton ondulé (large et fine alvéoles) sur laquelle on observe pour le carton à larges alvéoles ($\approx$ 4 mm d'épaisseur) une anisotropie de l'ordre de $510^{-2}$ sur l'indice notamment. Ce phénomène n'est pas observé sur le carton le moins épais pour lequel les alvéoles ont des dimensions de l'ordre du millimètre.

Compte-tenu des épaisseurs usuelles de ces matériaux comme pour les emballages pos-

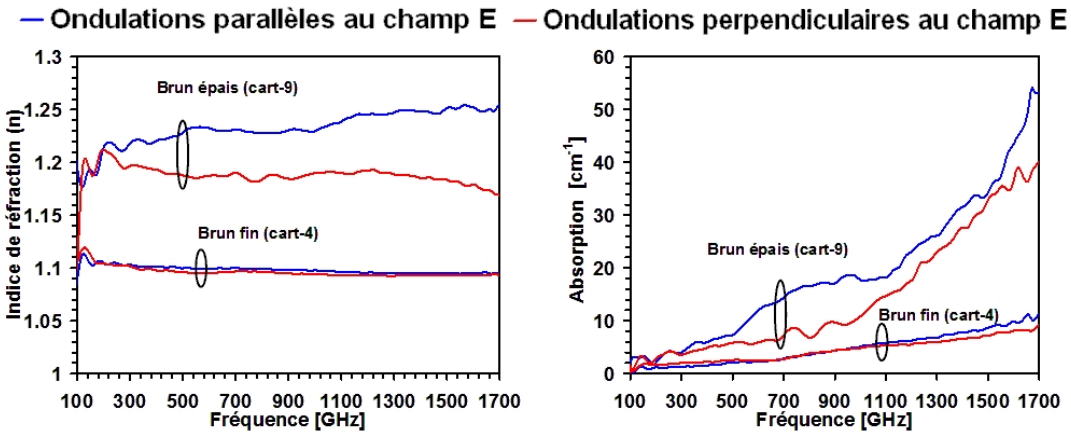



FIGURE 5.25: Indice de réfraction et absorption de types de carton en fonction de l'orientation de la polarisation.

taux, il est clair qu'ils sont suffisamment transparents pour permettre une identification THz des matériaux emballés. Cela a d'ailleurs été démontré par Kohji Yamamoto *et al.* et Yuichi Owagat *et al.* pour la détection au travers d'une enveloppe postale de C4 [7] et de métamphétamine [8]. Un centre postal japonais a ainsi été équipé à titre expérimental

d'un système de tri intégrant la technologie THz [101].

### 5.2.4 Matériaux de construction

Nous avons caractérisé plusieurs matériaux entrant dans la composition du béton : de la pâte de ciment et de la pierre blanche de Marquise (roche calcaire souvent incorporée au ciment) ainsi que des échantillons de brique et de plâtre. Les résultats sont donnés en figure 5.26. Du fait de l'absorption intrinsèque relativement importante de ces matériaux (pâte

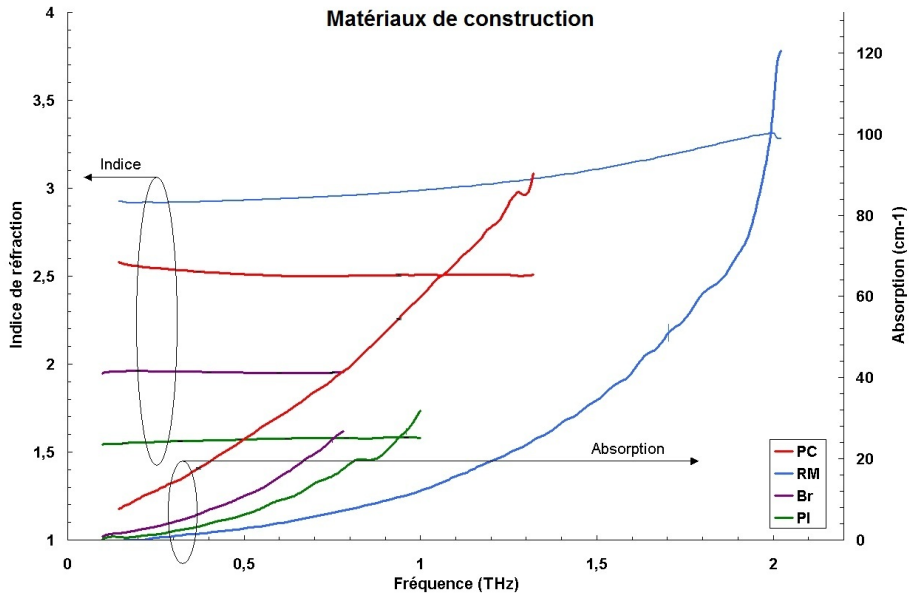



FIGURE 5.26: Absorption et indice pour de la pâte de ciment (PC), de la roche marquise (RM), de la brique (Br) et du plâtre (Pl).

de ciment 60 $cm^{-1}$ et roche marquise 12 $cm^{-1}$ à 1 THz), ceux-ci sont opaques aussitôt que l'épaisseur atteint quelques millimètres. C'est pourquoi nous avons dû amincir les échantillons jusqu'a moins de 1 mm d'épaisseur pour obtenir des résultats jusqu'à plus de 1 THz voire 2 THz pour la roche marquise. Etant donné les épaisseurs usuelles de ces matériaux (plusieurs centimètre au moins) il parait impossible de traverser ces matériaux dans le domaine THz. L'imagerie aux travers de bâtiment, notamment au travers du béton semble donc limitée aux ondes centimétriques. En effet, les constituants principaux du béton présentent des absorptions importantes auxquelles s'ajoutera un phénomène de diffusion du fait de sa structure.

### 5.2.5 Tissus

Nous avons effectué des mesures sur des tissus : deux échantillons de coton, de laine, et de cuir. Les deux échantillons de laine présentent de très grosses mailles carrées(environ 5 mm), les échantillons de coton des mailles fine. Les résultats obtenus sont présentés en figure 5.27, 5.28 et 5.29. Notons que l'épaisseur de certains de ces échantillons ne peut être évaluée précisément du fait de la nature du matériau.

Les caractéristiques observées pour la laine sont intéressantes : on constate que l'indice

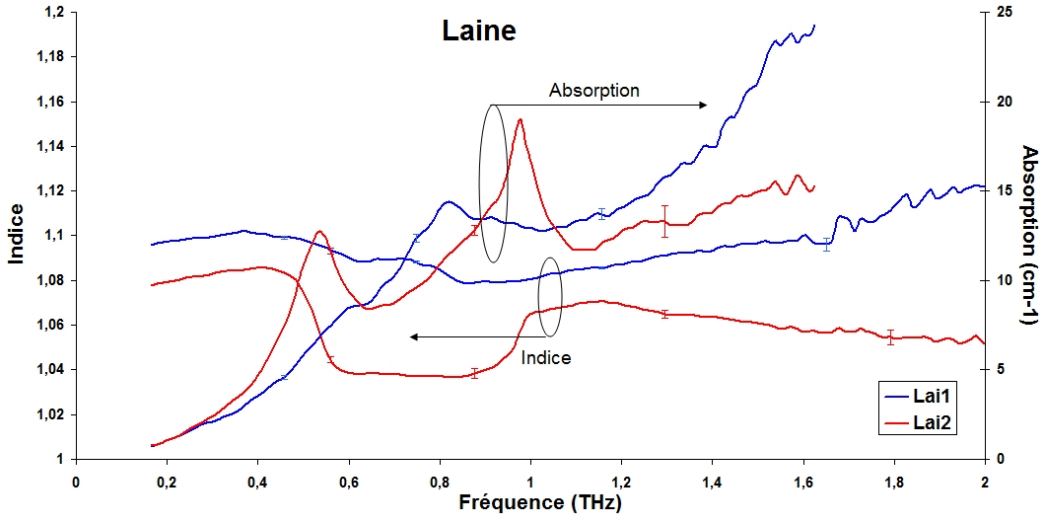



FIGURE 5.27: Absorption et indice pour différents échantillons de laines (Lai1 et Lai2).

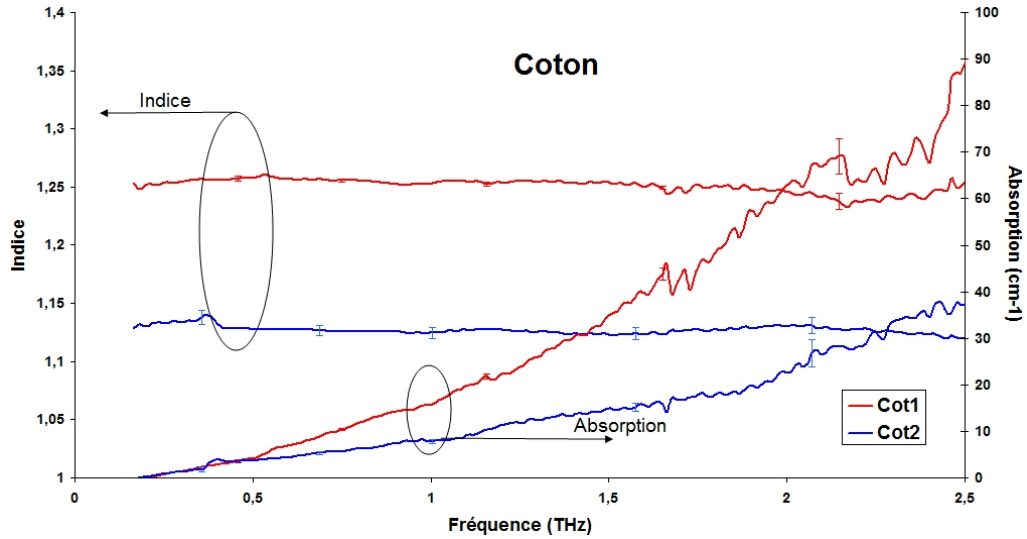



FIGURE 5.28: Absorption et indice pour différents échantillons de cotons (Cot1 et Cot2).

est très proche de 1 ce qui montre la grande quantité d'air et la faible densité de la laine "grosse maille". De plus pour l'échantillon de laine "Lai2" on observe des pics d'absorption. Compte-tenu de la structure du matériau (structure pseudo périodique à 2 dimensions

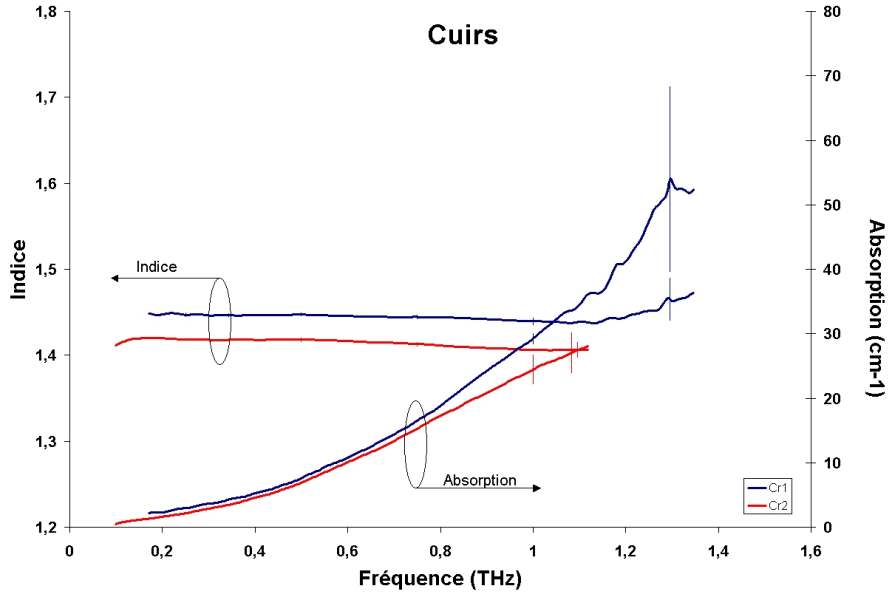



FIGURE 5.29: Absorption et indice pour différents échantillons de cuirs (Cr1 et Cr2).

constituée de laine "brute" et d'air) la réponse peut être attribuée à un phénomène de diffraction.

Pour les deux échantillons de coton nous sommes parvenu à extraire les caractéristiques sur une large bande fréquentielle. L'échantillon de coton Cot2 est bien moins dense que l'échantillon Cot1 ce qui explique les décalages entre les deux courbes.

Concernant les échantillons de cuirs nous observons une valeurs d'indice stable à 1,4 et 1,45 pour un absorption de l'ordre de 29 $cm^{-1}$ à 1 THz. Le cuir constitue une barrière aux ondes THz plus difficile à pénétrer que les tissus de type laine et coton. Aux épaisseurs usuelles cela ne nous parait pas rédhibitoire pour les applications d'imagerie ou de spectroscopie THz.

### 5.2.6 Conclusion sur les matériaux de dissimulation

Dans le tableau 5.7 nous résumons les résultats obtenus pour nos échantillons à 1 THz, en insistant sur la transparence des échantillons. L'épaisseur $L_{max}$ est l'épaisseur pour laquelle le signal à 1 THz est atténué de -40 dB. La colonne transparence, indique la capacité de mesure aux travers des matériaux aux épaisseurs usuellement rencontrée. Dans le cas où plusieurs échantillons d'une même famille sont disponibles c'est la valeur moyenne qui est donnée. Les matériaux de construction, ainsi que les bois (cagette, palette) se présentent sous des épaisseurs telles qu'il est difficilement envisageable de sonder au travers (que ce soit en réflexion ou en transmission) à des fréquences supérieures à quelques centaines de GHz. En revanche, les papiers et cartons sont facilement traversés par les ondes THz comme l'atteste l'existence d'un prototype pour la surveillance automatique des transits postaux (lettres et petits colis) au Japon [101]. Les vêtements présentent eux aussi une bonne perméabilité aux ondes THz, en revanche, le contrôle des personnes nécessite des technologies de spectroscopie en réflexion (le corps étant opaque), les signaux diffusés étant de faible intensité cela conduit à de faibles dynamiques qui nécessite de se tourner vers les détecteurs non cohérents pour les bonnes sensibilité qu'ils présentent.

| Echantillon | n @1 THz | $\alpha$ @1 THz [cm$^{-1}$] | $L_{-40dB}$ [mm] | Epaisseur usuelle | Transparence |
|---|---|---|---|---|---|
| résineux | 1,28 | 15,1 | 3,05 | | ☹ |
| feuillus | 1,38 | 39,9 | 1,15 | | ☹ |
| aggloméré | 1,57 | 41,7 | 1,10 | | ☹ |
| contre-plaqué | 1,21 | 11,0 | 4,19 | $>$ qq cm | ☹ |
| brique [1] | ≈1,96 | ≈40 | 1,15 | | ☹ |
| plâtre | 1,58 | 31,9 | 1,44 | | ☹ |
| ciment | 2,51 | 59,9 | 0,77 | | ☹ |
| rôche marquise | 2,99 | 12,2 | 3,77 | | ☹ |
| cuir | 1,42 | 28,8 | 1,60 | | ☺ |
| laine | 1,07 | 14,6 | 3,15 | ≈ mm | ☺ |
| coton | 1,19 | 11,8 | 3,90 | | ☺ |
| carton alvéolé | 1,09 | 4,8 | 9,59 | | ☺ |
| papier | 1,50 | 10,6 | 4,34 | $<$ qq 100 $\mu$m | ☺ |

TABLE 5.7: Bilan sur les matériaux de dissimulation.

1. Les données pour l'échantillon de brique sont extrapolés en fonction des résultats basses fréquences (<800 GHz).

# Chapitre 6

# Plasmonique THz

La plasmonique THz s'intéresse à l'étude des plasmons de surface (SP) dans le régime THz. Ce type d'onde électromagnétique se propage à l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu conducteur. En régime THz, les pertes ohmiques des métaux sont très faibles ce qui permet (en théorie) une propagation des SP sur de longues distances. La longueur de propagation (tout comme l'extension transverse) effectivement mesurée est en grand désaccord avec la théorie [102], et ce sujet n'a pas encore trouvé de réponse claire. Toutefois, des longueurs de propagation (décroissance à $\frac{1}{e}$) de l'ordre de quelques dizaines de centimètres pour une extension transverse de quelques millimètres sont obtenues [103], [104], [105]. Ces valeurs sont suffisantes pour nombre d'applications.
Dans ce chapitre, nous débuterons par une partie théorique visant à présenter le caractère électromagnétique et géométrique des SP, ainsi que la méthode de couplage-découplage choisie. Nous présenterons ensuite les résultats pour trois dispositifs, avant de conclure cette partie par les pistes et développements futurs que nous envisageons. Ce fort confinement transverse ainsi que la grande longueur de propagation donne lieu à une interaction plasmon-matériau en couche mince importante. Des caractérisations de film mince (quelques dizaines à centaines de micromètres) dans le domaine THz semble possibles, motivant cette étude.

## 6.1 Présentation théorique du phénomène

### 6.1.1 Onde de surface à l'interface métal-diélectrique

Dans ce paragraphe, je décris les caractéristiques géométriques des SP en fonction de l'interface diélectrique-métal en présence (dioptre entre deux milieux de permitivité différente, voir figure 6.1). La géométrie du problème présente une invariance selon l'axe $z$ ; cela permet de séparer le problème en deux états de polarisation distincts et complémen-

taires. Les deux équations de Maxwell introduisent un couplage entre champ électrique et

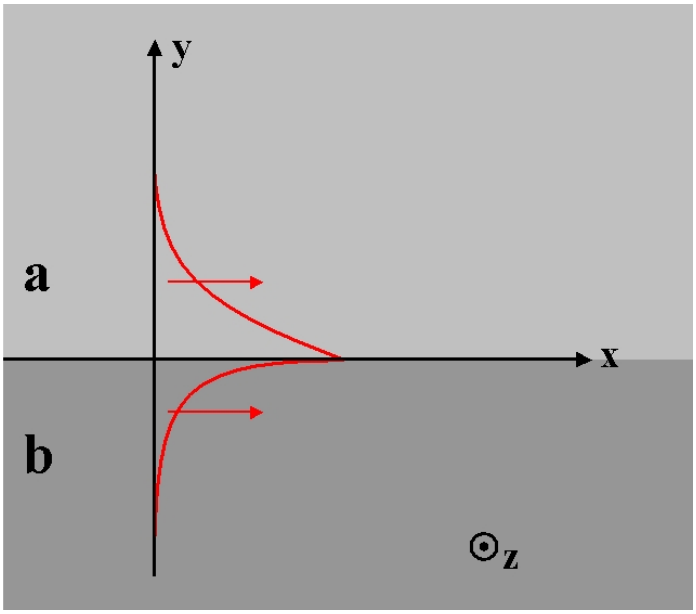



FIGURE 6.1: Positionnement du problème, le milieu $a$ sera par la suite le diélectrique et le milieu $b$ le métal.

magnétique (matériau sans charge ni courant) :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$
$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

On peut montrer que dans le cas de permittivités électrique et magnétique scalaires, et après avoir simplifié par les dérivées spatiales en $z$, que le problème se réduit à un système de six équations composées de deux sous-systèmes indépendants. Cela nous permet de séparer mathématiquement les solutions pour $(H_x, H_y, E_z)$ et $(E_x, E_y, H_z)$.
Le premier sous-système pour le mode transverse électrique (cas TE) est :

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_z}{\partial y} &= -\mu_0\mu_i \frac{\partial H_x}{\partial t} \\ -\frac{\partial E_z}{\partial x} &= -\mu_0\mu_i \frac{\partial H_y}{\partial t} \\ \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} &= \epsilon_0\epsilon_i \frac{\partial E_z}{\partial t} \end{aligned} \tag{6.1}$$

Le second sous-système pour le mode transverse magnétique (cas TM) s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_z}{\partial y} &= \epsilon_0\epsilon_i \frac{\partial E_x}{\partial t} \\ -\frac{\partial H_z}{\partial x} &= \epsilon_0\epsilon_i \frac{\partial E_y}{\partial t} \\ \frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} &= -\mu_0\mu_i \frac{\partial H_z}{\partial t} \end{aligned} \tag{6.2}$$

Ainsi toute solution générale au problème peut s'exprimer comme combinaison linéaire des 2 cas TE et TM, avec pour équation de propagation respectivement :

**Cas TE** : $E_x = E_y = H_z = 0$

$$\nabla^2 E_z + k_i^2 E_z = 0 \tag{6.3}$$

**Cas TM** : $H_x = H_y = E_z = 0$

$$\nabla^2 H_z + k_i^2 H_z = 0 \tag{6.4}$$

Avec $k_i^2 = \frac{w^2 \epsilon_i}{c^2}$, la permittivité $\epsilon_i$ prendra respectivement les valeurs $\epsilon_a$ dans le milieu $a$ et $\epsilon_b$ dans le milieu $b$.

#### 6.1.1.1 Relation de dispersion

La forme des solutions $E_z(x, y)$ et $H_z(x, y)$ des équations 6.3 et 6.4 sont les mêmes. Recherchant une solution se propageant selon l'axe $x$ et à décroissance exponentielle selon l'axe $y$ nous avons :

**Cas TE** :

$$E_{z_a}(x, y) = E_{z_a} \exp\left(j\alpha_a x - \beta_a y\right) \text{ pour } y \geq 0$$

$$E_{z_b}(x, y) = E_{z_b} \exp\left(j\alpha_b x + \beta_b y\right) \text{ pour } y \leq 0$$

**Cas TM** :

$$H_{z_a}(x, y) = H_{z_a} \exp\left(j\alpha_a x - \beta_a y\right) \text{ pour } y \geq 0$$

$$H_{z_b}(x, y) = H_{z_b} \exp\left(j\alpha_b x + \beta_b y\right) \text{ pour } y \leq 0$$

Nous considérons qu'aucune absorption (pas de pertes ohmiques) n'a lieu durant la propagation (cela reste une bonne approximation dans le cas THz compte tenu de la fréquence plasma très supérieure aux fréquences THz) cela implique que $\alpha_i$ est un réel. A noter (cela sera important par la suite) que les constante $\alpha_a$, $\alpha_b$, $\beta_a$, $\beta_b$ sont définies strictement réelles positives. De plus les dérivées temporelles ont été effectuées pour obtenir les équations de propagation, les termes en $\exp\left(-j\omega t\right)$ ont été simplifiés. En injectant cette forme pour la solution aux équations de propagation respective nous obtenons la relation de dispersion suivante :

$$\beta_i^2 - \alpha_i^2 + k_i^2 = 0 \tag{6.5}$$

Remarque : Une première constatation très importante apparaît ici, en effet, $\alpha_i$ le vecteur de propagation du SP est strictement supérieur au vecteur de propagation d'une onde plane $k_i$ oscillant à la même fréquence. Cela traduit le caractère d'onde guidée du SP et rend impossible l'excitation des SP simplement à l'aide d'une onde plane et nous oblige à utiliser des dispositifs afin de les exciter.

#### 6.1.1.2 Cas TE

La continuité des composantes tangentielles à l'interface impose d'avoir en $y = 0$ :

$$E_{az}(x, 0) = E_{bz}(x, 0) \tag{6.6}$$

$$H_{ax}(x, 0) = H_{bx}(x, 0) \tag{6.7}$$

L'équation 6.6 impose directement $E_a = E_b$ et $\alpha_a = \alpha_b$ que nous nommerons $\alpha_{SP}$. L'expression de la composante suivant $x$ du champ magnétique se déduit facilement de l'équation 6.1 ce qui conduit pour la continuité du champ magnétique tangentiel 6.7 à :

$$\frac{\beta_a}{\beta_b} = -\frac{\mu_a}{\mu_b} \tag{6.8}$$

Ceci est impossible car $\beta_a$ et $\beta_b$ sont définis positif, le cas TE ne peut pas exister à l'interface de milieu naturel car la perméabilité magnétique est nécessairement positive, en opposition à certains milieux artificiels qui peuvent présenter une perméabilité magnétique négative (métamatériaux).

#### 6.1.1.3 Cas TM

Pour le cas TM, en $y = 0$ l'équation de continuité des composantes tangentielle nous conduit à :

$$H_{az}(x, 0) = H_{bz}(x, 0) \tag{6.9}$$

$$E_{ax}(x, 0) = E_{bx}(x, 0) \tag{6.10}$$

L'équation 6.9 impose directement $H_a = H_b$ et $\alpha_a = \alpha_b = \alpha_{SP}$. L'équation 6.2 nous fournit les expressions de $E_{ax}(x, 0)$ et $E_{ax}(x, 0)$ qui donne une fois injecté dans l'équation de conservation 6.10 :

$$\frac{\beta_a}{\beta_b} = -\frac{\epsilon_a}{\epsilon_b} \tag{6.11}$$

Comme $\beta_a$ et $\beta_b$ sont positives, il faut nécessairement que $\epsilon_a \epsilon_b \leq 0$. Pour que les SP puissent exister, il faut que l'un des matériaux (et uniquement un) présente une permittivité négative. C'est notamment le cas des métaux quand la fréquence de l'onde incidente est inférieure à la fréquence plasma du métal. Nous considérons maintenant que le milieu b est métallique.

Remarque : Pour qu'un SP puisse exister, il faut une interface entre deux matériaux de permittivité positive (généralement diélectrique) et négative (un métal), que le SP soit polarisé en mode TM (ce qui imposera cette polarisation pour l'onde excitatrice) de fréquence inférieure à

la fréquence plasma du métal, et bien évidemment trouver le moyen de l'exciter par une onde plane.

Pour déterminer la valeur exacte de la composante de propagation du SP, nous injectons les expressions obtenues en 6.5 pour $\beta_i$ dans l'équation 6.11, cela nous amène à :

$$\alpha_{SP} = \frac{w}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_a \epsilon_b}{\epsilon_a + \epsilon_b}} \tag{6.12}$$

Il est possible d'obtenir ainsi l'expression des $\beta_i$ à partir des 6.12 et 6.5 :

$$\beta_i = |\epsilon_i|\frac{\omega}{c}\sqrt{-\frac{1}{\epsilon_a + \epsilon_b}}$$

Nous pouvons à présent calculer la profondeur de pénétration du SP respectivement dans les milieu a et b. Ces dernières correspondent classiquement à l'épaisseur pour laquelle l'intensité décroît à $\frac{1}{e^2}$ (ou en $\frac{1}{e}$ pour le champ). D'où :

$$d_i = \frac{1}{\beta_i} = \frac{c\sqrt{-(\epsilon_a + \epsilon_b)}}{\omega|\epsilon_i|} \tag{6.13}$$

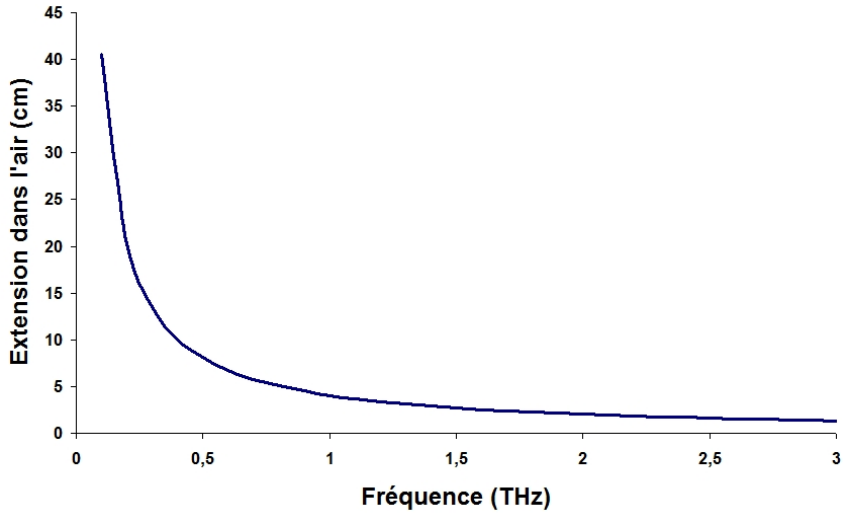



FIGURE 6.2: Extension dans l'air en fonction de la fréquence pour une interface air-or.

### 6.1.2 Méthode de couplage-découplage des SP

Nous avons précédemment vu que la composante de propagation du plasmon est strictement supérieure à celle d'une onde plane de même fréquence. La solution pour coupler un SP à la surface d'un métal est donc d'ajouter une composante de propagation à l'onde plane incidente, ce que permet de faire un réseau de diffraction. En effet, un réseau présentant une périodicité dans une direction $d$ ajoute une composante longitudinale $mk_{res}$

avec $m \in \mathbb{N}$ (ordre de diffraction) et $k_{res} = \frac{2\pi}{d}$ au vecteur d'onde de l'onde incidente. Pour une onde incidente $k_{inc}$ de vecteur d'onde projecté sur le réseau $k_{inc_{//}}$, nous obtenons un vecteur d'onde diffracté dont la projection sur le réseau $k_m$ satisfait l'équation $k_m = k_{inc_{//}} + mk_{res}$. Il y aura couplage du SP à la seule condition où $k_m = \alpha_{SP}$. Cela conduit à l'expression de la condition de couplage suivante, $\theta$ étant l'angle d'incidence et $\lambda$ la longueur d'onde :

$$\sqrt{\epsilon_a}\sin(\theta) + m\frac{\lambda}{d} = \sqrt{\frac{\epsilon_a\epsilon_b}{\epsilon_a + \epsilon_b}}$$

Il est intéressant de constater que la valeur de la permittivité équivalente du SP $\epsilon_{SP} = \frac{\epsilon_a\epsilon_b}{\epsilon_a+\epsilon_b}$ peut se simplifier en régime THz du fait de $|\epsilon_b| \gg |\epsilon_a|$ ce qui conduit au premier ordre à $\epsilon_{SP} \approx \epsilon_a$. En considérant de plus que le diélectrique est l'air $\epsilon_a = 1$ nous obtenons pour la condition de couplage :

$$\sin(\theta) + m\frac{\lambda}{d} = 1 \tag{6.14}$$

## 6.2 Dispositif à bande interdite

Il est connu que les SP peuvent présenter des bandes photoniques interdites sur des interfaces présentant un profil modulé périodiquement. En 1977, Mills [106] propose déjà une étude théorique sur le couplage de SP par diffraction conique sur un réseau unidimensionnel. L'un des principaux résultats de cette étude est le calcul (par l'approche des modes couplés) de la largeur de la bande interdite. Ici nous présentons un dispositif permettant l'observation expérimentale d'une bande interdite plasmonique en régime THz.

### 6.2.1 Principe de l'expérience

Le dispositif est constitué d'un réseau qui, lors de son éclairement par une impulsion THz (large spectre), va provoquer le couplage de certaines fréquences aux ondes de surface (voir équation 6.14). En mesurant la distribution spectrale de l'énergie de l'onde réfléchie (ou diffractée) par le réseau, on observe des "m-lines" aux fréquences satisfaisant la condition de couplage. Après une propagation de quelques centimètres, un second réseau identique au premier sert de réseau de découplage afin de diffracter le SP dans l'espace libre (voir figure 6.3). Ainsi, les SP se propageant en direction du réseau de découplage (il existe des solutions "co et contra" propagatives) vont être découplée, et la mesure du spectre révélera alors des pics d'énergie aux fréquences correspondantes. Le dispositif, ainsi que les 2 possibilités de mesure, sont présentés en figure 6.3.

La génération et la détection THz sont assurées par des antennes photoconductrices dans

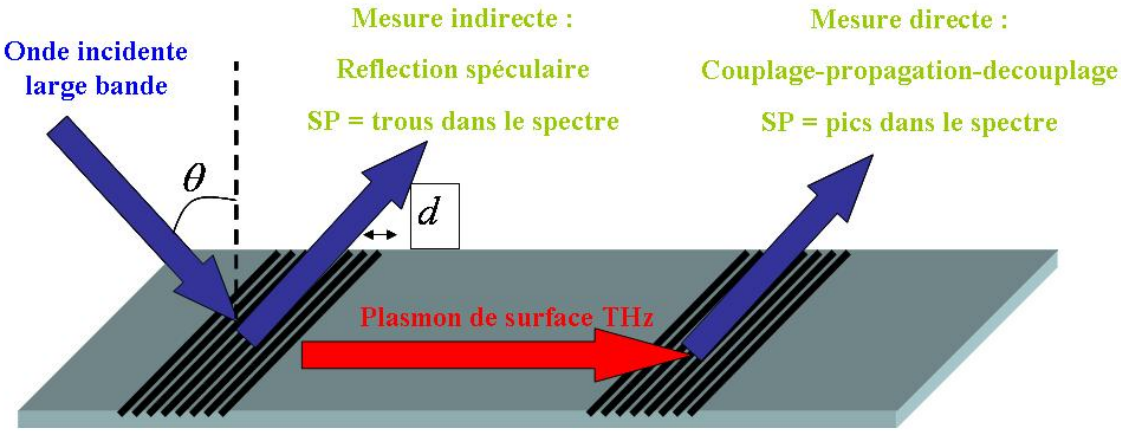



FIGURE 6.3: Dispositif étudié.

une expérience classique de spectroscopie THz-TDS. Un dispositif (voir figure 6.4) entre émetteur et détecteur nous permet de mesurer le comportement de notre dispositif sous diverses incidences [107]. Il est ainsi possible de réaliser les 2 types de mesures des SP. La

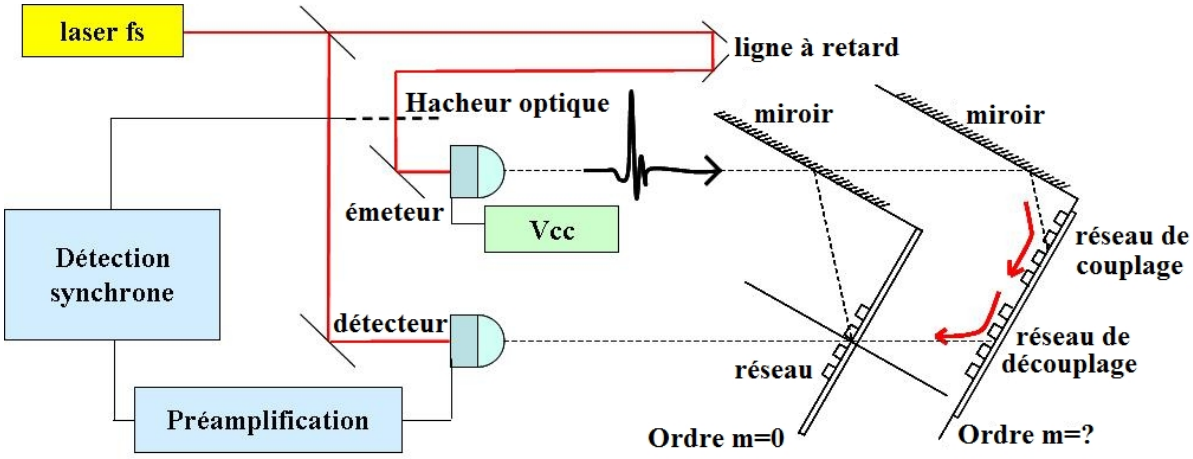



FIGURE 6.4: Schéma de principe de l'expérience réalisée, position gauche du dispositif pour la mesure "indirecte" et droite pour la mesure "directe".

mesure que nous appelons "mesure indirecte", visant à mesurer la réflexion à l'ordre 0 sur le réseau de couplage. Par opposition la "mesure directe" consiste à mesurer les composantes spectrales diffractées par un second réseau. La figure 6.5 présente un exemple des résultats obtenus pour ces deux types de mesure dans le cas d'un réseau triangulaire de 300 $\mu$m de période [105].

Sur la figure 6.5 on observe bien l'apparition de pics d'absorption dans le cas avec réseau, une absence de signal (cas *e)*) pour certaine fréquence dans le cas de la mesure "indirecte", ou des pics de d'énergie (cas *f)*) pour la mesure directe.

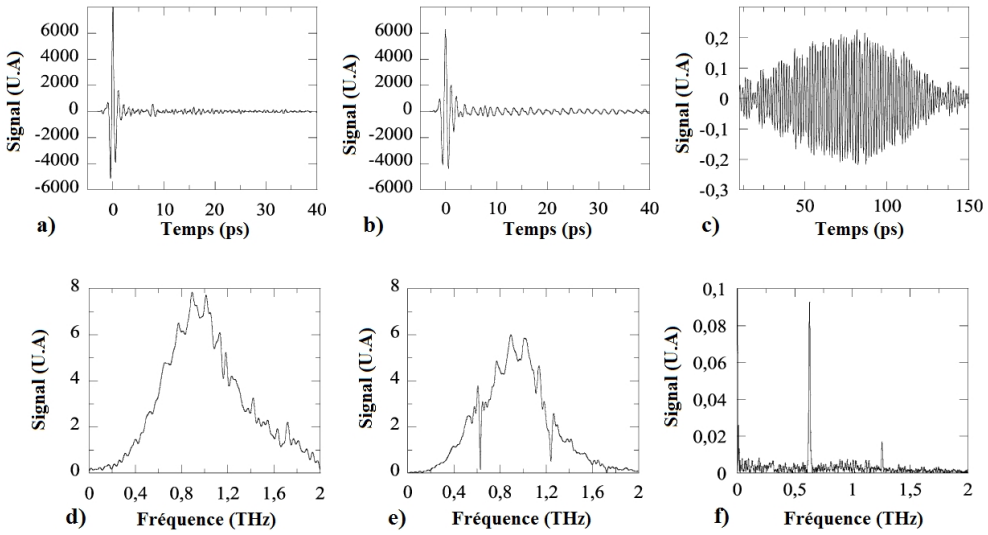



FIGURE 6.5: Mesure du signal temporel (et respectivement fréquentiel) réfléchi par une surface plane d'aluminium *a)* (respectivement *d)*), par "mesure indirecte" *b)* (respectivement *e)*), et par "mesure directe" *c)* (respectivement *f)*).

### 6.2.2 Description du dispositif

Maintenant que nous avons expliqué les méthodes de couplage et de mesure des SP, nous allons décrire le dispositif étudié. L'idée mise en œuvre est de concevoir un réseau de couplage qui sous les mêmes conditions d'éclairement permet de satisfaire l'équation de couplage simultanément pour un plasmon co-propagatif et contra-propagatif pour la même composante spectrale de l'onde incidente. Cela se traduit par le système ci-dessous :

$$\sin(\theta) + m\frac{\lambda}{d} = 1$$
$$\sin(\theta) + p\frac{\lambda}{d} = -1$$

Avec le type de profil choisi pour nos réseaux (créneau de rapport cyclique $\frac{1}{2}$), seuls les ordres de diffraction impairs présentent une efficacité différente de zéro. Nous choisissons pour l'ordre co-propagatif $m = +1$ et pour l'ordre contra-propagatif $p = -3$, ce choix est celui qui offre pour une incidence non-normale le maximum d'énergie couplée dans les modes co et contra-propagatif. Cela impose alors la valeur de l'incidence $\theta = 30°$.
La fréquence de travail est choisie à 500 GHz car elle correspond à la fréquence pour laquelle l'expérience de THz-TDS présente une dynamique maximum. Cela nous permet d'en déduire la période des réseaux, nous obtenons 1200 $\mu$m.
La figure 6.6 présente les courbes de dispersion d'un réseau de 1200 $\mu$m de périodicité. La profondeur des sillons (paramètre jouant un rôle très important dans l'efficacité de diffraction du réseau) est optimisée à l'aide du programme de D. Maystre. Ce programme nous permet de simuler la réponse d'un réseau (éventuellement multicouche) par une ap-

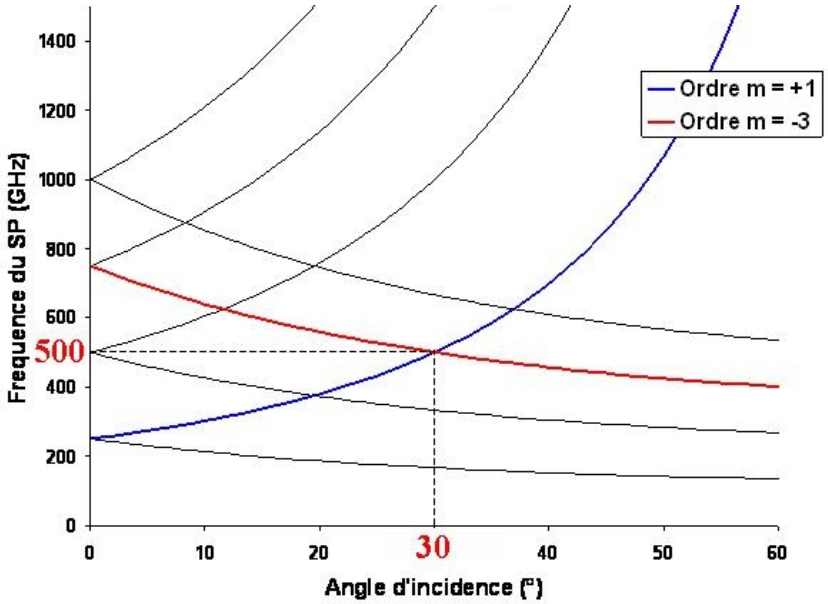



FIGURE 6.6: Relation de dispersion pour un réseau de 1200 $\mu$m de période.

proche dite intégrale [108]. Ce programme a été très largement utilisé dans nos simulations de réseaux, et rend compte avec une très grande fiabilité du comportement expérimental observé. Une étude de l'efficacité de couplage du SP à l'ordre +1 en fonction de l'épaisseur $h$ des sillons conduit critère à $h \approx \frac{\lambda}{10}$ (voir figure 6.11) a été réalisée. La profondeur des sillons optimale obtenue par simulation est environ de 60 $\mu$m. Le dispositif est réalisé par micro-usinage, il consiste donc en 2 réseaux créneau de profondeur de sillons 60 $\mu$m espacé de 2 cm.

### 6.2.3 Résultats

La courbe 6.7 est obtenue en mesurant la fréquence des m-lines (ou des pics dans le cas de mesure "directe") dans le spectre en fonction de l'angle d'incidence sur le réseau de couplage. Cela nous permet de reconstruire la relation de dispersion des plasmons au voisinage de l'angle permettant la coexistence des plasmons. On retrouve l'allure de la figure 6.6, toutefois lors de la superposition des courbes pour l'ordre +1 et -3 (pour $\theta = 30°$), le phénomène de Bragg intervient provoquant la "répulsion" de ces courbes par apparition d'un mode de type onde stationnaire dans la structure. Les courbes en pointillées de la figure 6.7 sont les interpolations paraboliques des fréquences présentent au dessous et au dessus de la bande interdite. Nous trouvons un "gap" de fréquence (bande interdite) de $15,62$ GHz à 30°.

Des études comparables ont déjà été présentées en régime optique, Weeber *et al.* [109] démontre (à 800 nm) que l'efficacité du processus (de miroir de Bragg) dépend du nombre de sillon éclairés. Krenn [110] (à 750 nm) ont proposé des miroirs (plan et parabolique) et

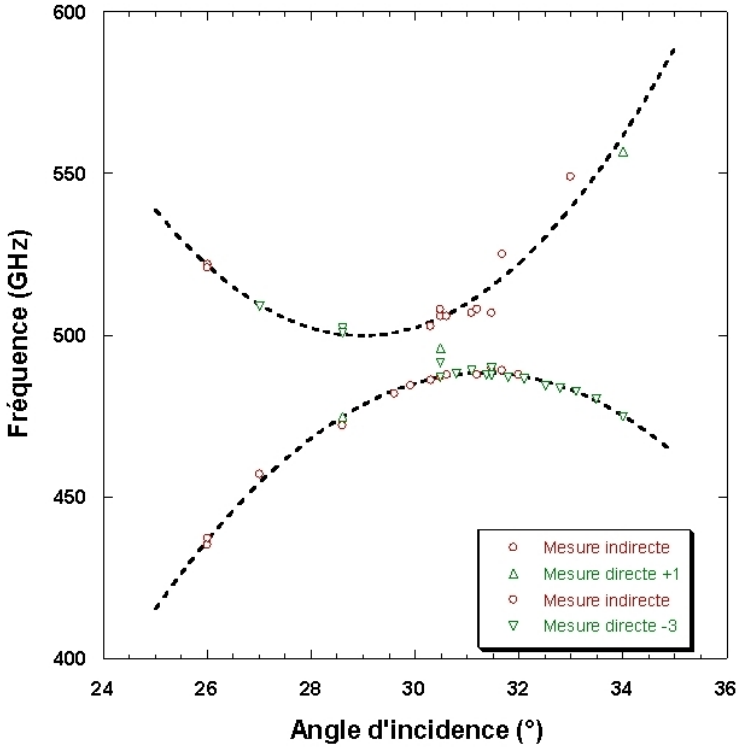



FIGURE 6.7: Relation de dispersion des plasmons d'ordre +1 et -3.

des séparatrices, utilisant ce principe. Ce type de dispositif s'avérera très utile en régime THz du fait de la grande longueur de propagation des SP permettant d'imaginer des systèmes 2D complexes.

## 6.3 Dispositif de couplage 2D pour la focalisation de SP

Nous nous proposons d'étudier un réseau possédant des sillons ellipsoïdaux comme coupleur des SP [111], [112]. Nous verrons que cette géométrie de réseau permet de coupler mais aussi de focaliser les SP sur une tâche proche de la limite de diffraction. Des études de Nahata *et. al.* portant sur un unique sillon circulaire éclairé à incidence normal [113], [114], ont démontré la possibilité de focaliser ainsi les SP. Nahata *et al.* ont étudié aussi l'incidence du nombre de sillons circulaires centrés sur un trou pour exalter la transmission extraordinaire [115]. Pour un ensemble de sillons circulaires concentriques, il est possible d'obtenir une exaltation du couplage pour certaines fréquences. La monochromaticité et l'efficacité de couplage est clairement fonction du nombre de sillons éclairés. Cependant, nous verrons dans notre partie théorique que le cas du sillon circulaire n'est valable qu'en incidence normale, pour coupler un SP sous une incidence quelconque une géométrie elliptique des sillons est nécessaire. Nous nous proposons d'étudier un dispositif résonnant

de couplage et de focalisation de SP en incidence non normale par un ensemble de sillons elliptiques confocaux.

### 6.3.1 Description théorique du dispositif

Tout d'abord, nous souhaitons rappeler les équations de la diffraction conique. Le réseau est périodique selon la direction x. Projetons le vecteur d'onde incident $\overrightarrow{k_{inc}}$ sur le plan du réseau : $\overrightarrow{k_{inc_{//}}} = \overrightarrow{k_x} + \overrightarrow{k_y}$, avec $k_{inc_{//}} = k_{inc} \sin\theta$. On obtient donc en projetant $k_{inc_{//}}$ sur le direction $x$ : $k_x = k_{inc} \sin\theta \cos\alpha$.
Où $\alpha$ est l'angle entre le plan d'incidence et l'axe du réseau. La conservation du vecteur d'onde projeté sur l'axe $x$ conduit à :

$$k_x + m.k_{res} = \alpha_{SP}$$

En divisant par $\frac{wn}{c}$, et en posant que $n_{eff} \approx 1$ (cas d'une interface entre un conducteur parfait et le vide), on a :

$$\sin\theta \cos\alpha + m\frac{\lambda}{d} = 1 \tag{6.15}$$

Nous souhaitons une structure qui focalise un SP à même fréquence pour toute les directions $\alpha$ ; la période du réseau $d$ doit donc être une fonction de l'angle conique. Cette équation $d(\alpha)$ permet de retrouver l'équations de la forme des sillons :

$$d(\alpha) = \frac{m\lambda}{1 - \sin\theta \cos\alpha}$$

Soit $d_o$ la période du réseau pour laquelle $\alpha = 0$, on a :

$$d_o = \frac{m\lambda}{1 - \sin\theta}$$

D'où,

$$\frac{d(\alpha)}{d_o} = \frac{1 - \sin\theta}{1 - \sin\theta \cos\alpha}$$

Cette équation nous donne la périodicité nécessaire des sillons qui sous une direction oblique $\alpha$ couple un plasmon (sous cette même direction) à une fréquence constante. En gravant des sillons selon l'équation polaire $nd(\alpha)$, avec $n$ un nombre entier représentant le n$^{\text{ième}}$ sillon, nous obtenons un dispositif présentant une périodicité $d(\alpha)$ dans la direction $\alpha$. Le motif obtenu est un ensemble d'ellipses confocales, comme nous allons maintenant le montrer.
En projetant sur des directions X et Y perpendiculaires, l'équation de $\frac{d(\alpha)}{do}$ devient :

$$X(\alpha) = \frac{(1 - \sin\theta)\cos\alpha}{1 - \sin\theta \cos\alpha}$$

$$Y(\alpha) = \frac{(1-\sin\theta)\sin\alpha}{1-\sin\theta\cos\alpha}$$

Nous allons exprimer cette équation sous la forme $Y = f(X)$ :

$$X(\alpha) = \frac{A\cos\alpha}{1-B\cos\alpha}$$

$$Y(\alpha) = \frac{A\sin\alpha}{1-B\cos\alpha}$$

Avec $A = 1-\sin\theta$ et $B = \sin\theta$. De plus,

$$\frac{Y}{X} = tan(\alpha)$$

$$(\frac{Y}{X})^2 = (tan(\alpha))^2 = \frac{1-(\cos\alpha)^2}{(\cos\alpha)^2}$$

$$(\frac{1}{\cos\alpha})^2 = 1 + \frac{Y^2}{X^2}$$

or $X(\alpha)$ s'écrit :

$$X(\alpha) = \frac{A}{\frac{1}{\cos\alpha} - B}$$

d'où :

$$X(\alpha) = \frac{A}{\sqrt{1+\frac{Y^2}{X^2}} - B}$$

et :

$$Y^2 + (1-B^2)X^2 - 2ABX - A^2 = 0$$

Cette courbe représente la forme du premier sillon du réseau (une fois multipliée par $do$). Pour retrouver l'expression connue d'une ellipse, on effectue le changement de variable suivant :$X \rightarrow x' + x_o$ et $Y \rightarrow y' + y_o$ avec ($x_o$,$y_o$) le centre du nouveau repère. On aboutit à :

$$\frac{y'^2}{\frac{A^2}{1-B^2}} + \frac{x'^2}{\frac{A^2}{(1-B^2)^2}} = 1$$

Avec :

$$xo = \frac{A.B}{1-B^2}$$

$$yo = 0$$

Dans ce nouveau repère, le foyer de l'ellipse est en $\frac{A.B}{1-B^2}$. Comme c'est aussi l'expression de la translation entre ancien et nouveau repère, l'équation $d(\alpha)$ représente une ellipse dont le foyer est le centre du repère. La structure est donc un ensemble d'ellipses confocales. La figure 6.8 donne 4 exemples de réseau de couplage focalisant pour diverses incidences. On constate que le cas de l'incidence normale conduit à un ensemble de cercles concentriques ; plus l'angle d'incidence est oblique, plus l'excentricité des ellipses augmente. Un second

réseau symétrique au premier sera utilisé pour diffracter le champ en espace libre (voir figure 6.9).

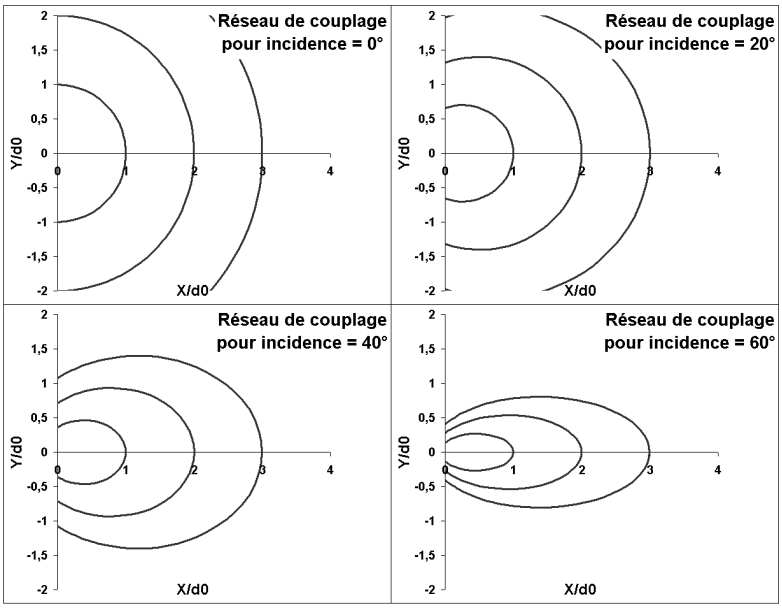



FIGURE 6.8: Exemples de dispositifs de focalisation pour les incidences respectives 0°, 20°, 40°, 60°.

### 6.3.2 Etude expérimentale du dispositif de couplage 2D

La figure 6.9 représente notre dispositif expérimental. Pour le concevoir nous avons choisi un SP à 500 GHz (pour les mêmes raison de dynamique de l'expérience que précédemment). La période centrale $d_o$ est déterminée pour avoir sous une incidence de 25° uniquement un seul SP co-propagatif. La période centrale $d_o$ est choisie à 1040 $\mu$m (voir figure 6.10). La profondeur de gravure est choisie à 60 $\mu$m, grâce à une étude théorique de l'influence de ce paramètre sur le couplage d'un ordre +1 (voir figure 6.11).

La première mesure effectuée sur ce dispositif est la mesure "directe" (après couplage, propagation, et découplage en espace libre) et a donné le résultat présenté en figure 6.12. La mesure temporelle est effectuée sur 55 ps ce qui limite la résolution spectrale de l'expérience à 18 GHz. Nous observons le SP à 527 GHz (attendu à 500 GHz), cette différence de fréquence peut s'expliquer par une légère erreur sur l'angle d'incidence, puisque cela correspond à une incidence de 26,9°.

#### 6.3.2.1 Mise en évidence du caractère focalisant du dispositif

Le pouvoir focalisant de notre dispositif est démontré en effectuant une mesure de la taille du SP au niveau du réseau de couplage (pour connaître la taille du faisceau

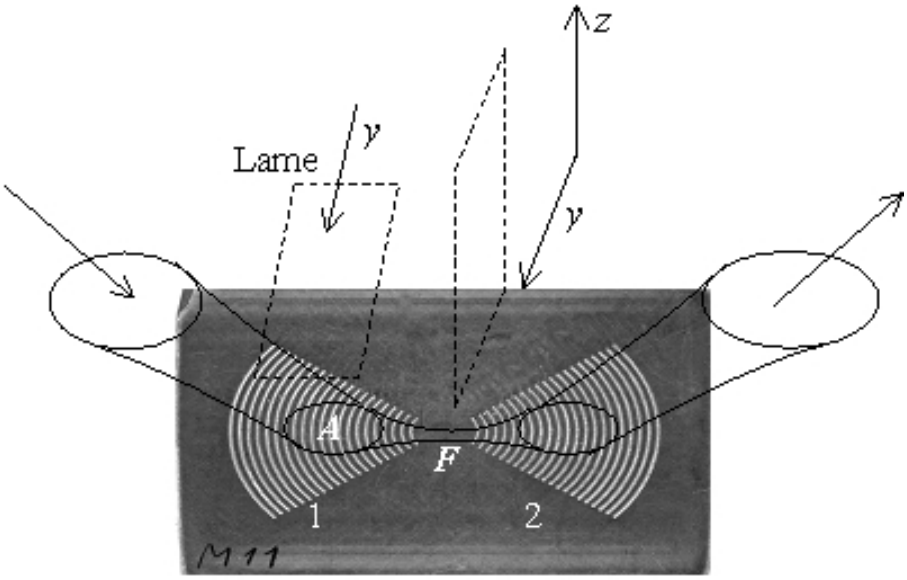



FIGURE 6.9: Dispositif permettant le couplage d'un plasmon à 500 GHz se focalisant pour une incidence de 25°.

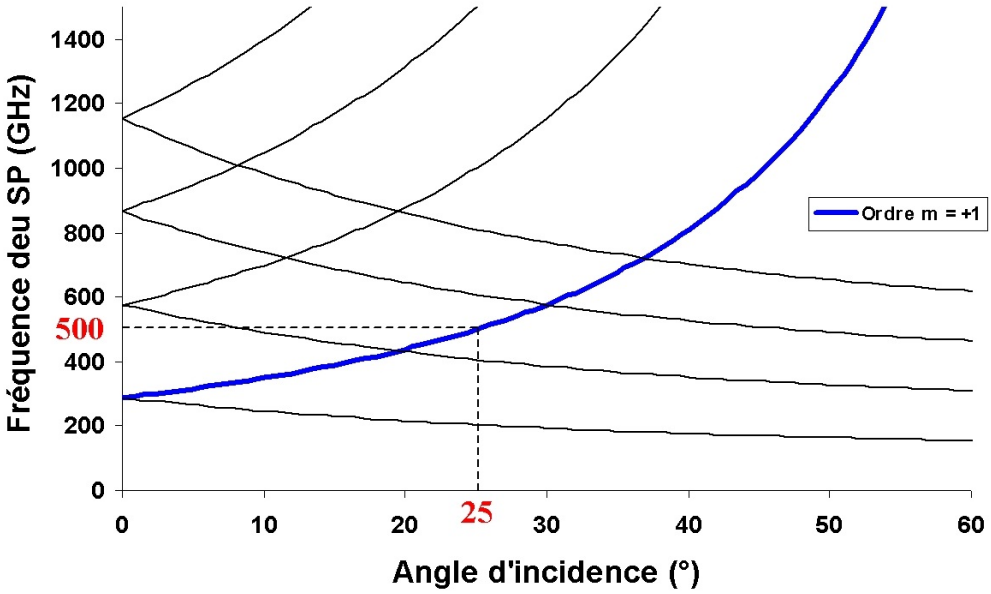



FIGURE 6.10: Relation de dispersion des SP pour un réseau de 1040 $\mu$m.

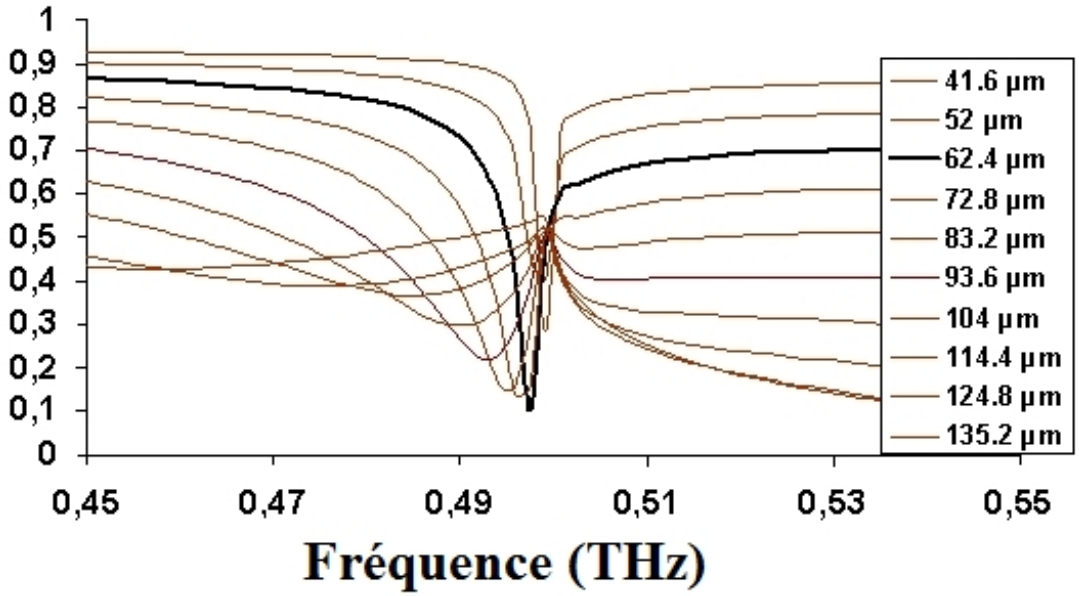



FIGURE 6.11: Efficacité théorique du couplage plasmonique de l'ordre +1 pour une incidence de 25° sur un réseau de période 1040 $\mu$m.

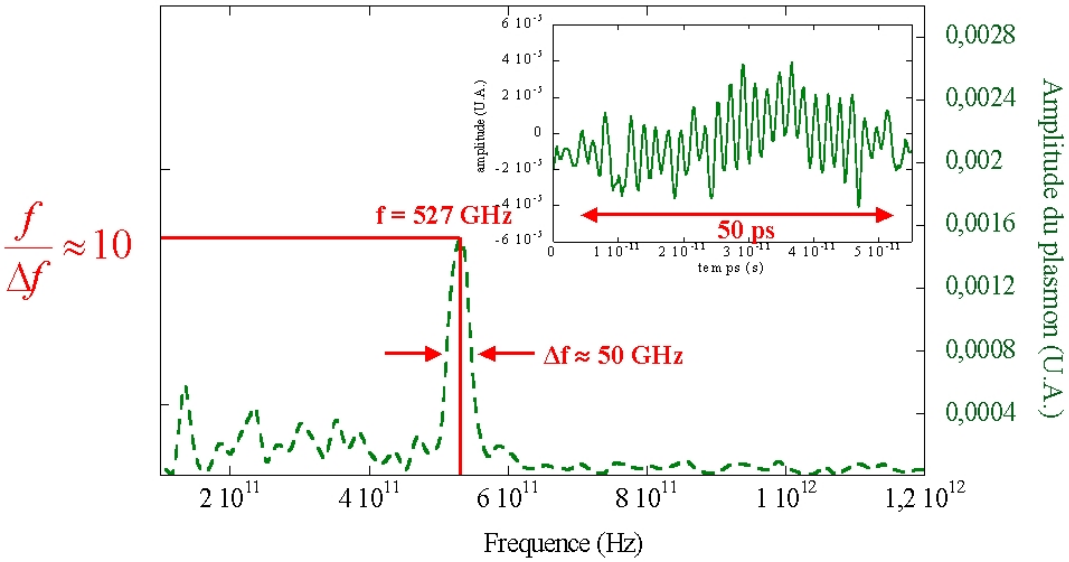



FIGURE 6.12: Mesure directe du SP de notre dispositif pour une incidence de 500 GHz.

incident) et au niveau de la focale du dispositif. Ces mesures sont effectuées à l'aide de la méthode du couteau (mieux connue sous la dénomination "Knife edge method"). Cette méthode permet la mesure du waist pour n'importe quel type de profil et a l'avantage d'être simple à mettre en oeuvre. La figure 6.9 montre les deux positions de la lame, le faisceau est progressivement libéré en modifiant la position $y$ de la lame. Les résultats de cette expérience sont présentés en figure 6.13. On voit clairement sur la figure 6.13 qu'une

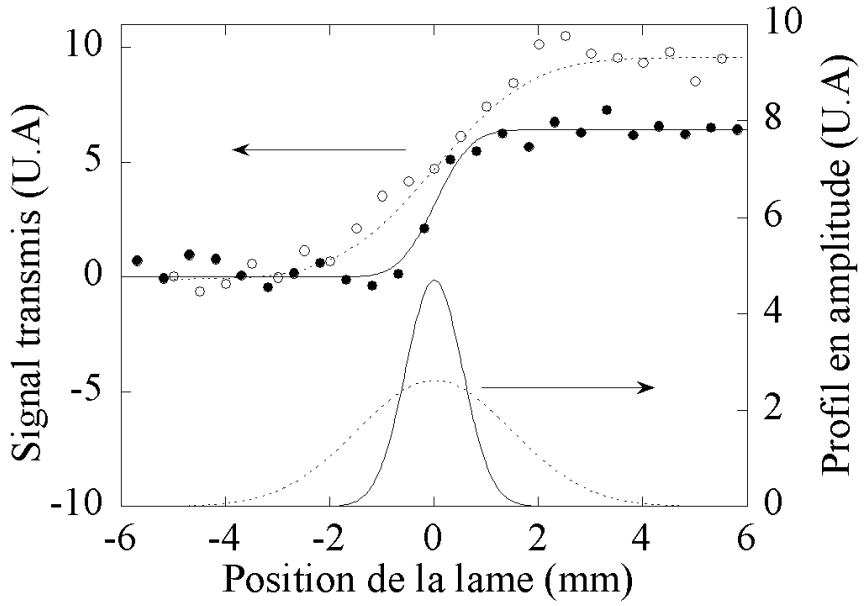



FIGURE 6.13: Résultats de mesures de la tailles du faisceau au niveau du réseau de couplage (ronds blancs) et au niveau de la focale (les ronds noirs). Les courbes du dessus sont les extrapolation des données expérimentales (par des sigmoïdes au sens des moindres carrés), et les courbes du bas sont les allures des profils du champs en amplitude.

tendance de type "fonction d'erreur" permet de rendre compte des mesures effectués. Cela suggère un profil gaussien pour le champ THz, dont l'équation s'obtient en dérivant les expressions (de type fonction d'erreur) interpolées sur les données. Cela conduit pour les "Waist" à $W_{0_{inc}} = 4.17 \pm 0,1$ mm pour le champ incident et $W_{0_F} = 1,02 \pm 0,1$ mm au niveau de la focale. En appliquant la formule de la limite de diffraction suivante :

$$\frac{2W_{0_{inc}}}{f} = 1,22\frac{\lambda}{2W_{0_F}}$$

nous pouvons déterminer la distance focale équivalente à 2,5 cm. Cette valeur est proche de la distance focale effective du dispositif dans notre condition d'éclairement (environ 2 cm). Cela indique que le pouvoir focalisant de notre structure peut être prédit avec les équations des faisceaux gaussiens en propagation libre.

#### 6.3.2.2 Résolution spectrale du dispositif

Maintenant nous allons considéré la largeur à mi hauteur de la résonance plasmonique. Sur la figure 6.12, nous observons une largeur spectrale à mi-hauteur du SP $\Delta f$ d'environ 50 GHz. Cela conduit à une résolution spectrale de $\frac{f_{SP}}{\Delta f} = 10,5$. De plus, le pouvoir de résolution théorique $R$ d'un réseau est tel que : $R = mN$ avec $m$ l'ordre de diffraction considéré et N le nombres de traits illuminés. Le "waist" du faisceau au niveau du réseau étant de 4,2 mm cela donne pour l'ordre de diffraction +1 un pouvoir de séparation de 8,1. Ainsi nous avons $\frac{f_{SP}}{\Delta f} \approx mN$. Nous pouvons en déduire que la largeur de la résonance plasmonique est essentiellement déterminé par le nombre de traits éclairés du réseau.

#### 6.3.2.3 Extension dans l'air

Finalement, une dernière mesure est effectuée avec le dispositif. Il s'agit cette fois de la mesure de l'extension dans l'air du SP. Avec la technique du couteau, nous pouvons mesurer la distribution dans la direction normale au réseau (axe $z$) au niveau du point focal (voir figure 6.9). Nous retrouvons une équation de type exponentielle décroissante qui nous montre bien le caractère évanescent des SP dans la direction normale à l'interface air-métal (voir figure 6.14). Sur cette figure 6.14, les cercles sont les données expérimentales, la ligne pointillée l'interpolation des données par une équation de type $1 - \exp(-\alpha z)$, et la ligne pleine le profil de la distribution $\exp(-\alpha z)$ du champ dans la direction $z$. La

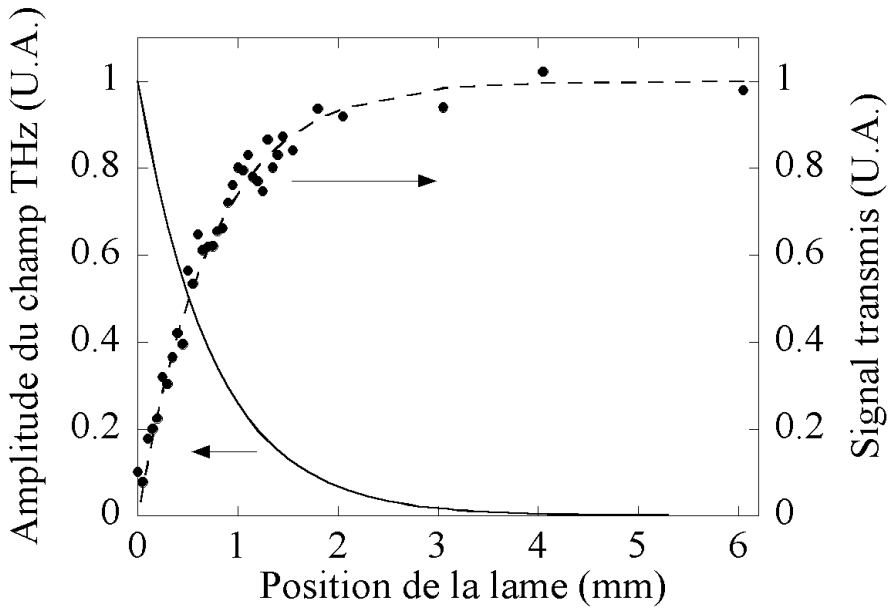



FIGURE 6.14: Amplitude transmise en fonction de la position de la lame dans la direction $z$.

distance pour laquelle le champ décroît à $\frac{1}{e}$ est de $z_{SP} = 0,74$ mm, cette distance est

fortement inférieure à celle que l'on pourrait attendre théoriquement. En effet, l'extension transverse du plasmon dans l'air donnée par l'équation 6.13 conduit pour l'aluminium ($\epsilon_{Alu} \approx 1.6 \times 10^6$ à 500 GHz [116]) à une extension dans l'air de 12,1 cm. Notre valeur, drastiquement inférieure à la théorie d'un facteur 200, a déjà été reportée dans la littérature [111], [105], [116], [104]. Ce problème de désaccord entre théorie et expérience reste encore non élucidé. Plusieurs pistes sont aujourd'hui envisagées. D. Grischkowsky démontre qu'une très faible couche diélectrique de l'ordre de $\frac{\lambda}{20}$ (n = 1,5) fait chuter de manière identique l'extension dans l'air. Cependant une contamination ou une oxydation de notre surface (qui pourrait expliquer la présence d'une couche diélectrique sur le métal) ne peut expliquer nos résultats.
Récemment Hendry *et al.* ont démontré que l'extension transverse des SP chute dans le même ordre de grandeur que dans notre cas sur les surfaces à motifs périodiques [117]. Cela rejoint l'explication de Grischkowsky car on peut démontrer qu'une structuration périodique sub-longueur d'onde du métal se comporte pour les SP comme une structure composée d'un substrat métallique et d'un dépot diélectrique. Les caractéristiques de cette couche diélectrique équivalente sont [118] :

- Epaisseur de la couche égale à la profondeur de modulation dans le métal,
- Permitivité électrique $\epsilon_e q = d/a$, où $a$ est la largeur de la gravure et $d$ la périodicité.

Cette vision métamatériaux des réseaux n'est malheureusement vraie que pour des valeurs de profondeur, de largeur, et de périodicité inférieures à la longueur d'onde.

## 6.4 Structure métallique discontinue

La structure est composée d'une grille d'or d'une période de 100 $\mu$m, l'épaisseur des barreaux d'or est de 50 $\mu$m (rapport cyclique $\frac{1}{2}$), et leur épaisseur est de 320 nm. Le dispositif est obtenue par évaporation sur un substrat de silicium haute résistivité (8-14 k$\Omega$.cm) pour la tenue mécanique. Après dépot, le "wafer" de silicium est aminci mécaniquement jusqu'à une épaisseur de 143 $\mu$m (voir figure 6.15).
Nous démontrons un couplage entre onde incidente et mode de propagation hybride entre plasmon et mode guidé [119], [120], [121].

### 6.4.1 Principe de l'expérience

Nous avons réalisé des mesures en fonction de l'angle d'incidence (0°, 5°, 10°, 15°, 20°, 25°) en polarisation $p$ (mode TM) et $s$ (mode TE) (voir figure 6.17). Les simulations sont effectuées à l'aide de la méthode intégrale [108] et de la méthode modale de Yanko Todorov [122] qui a conduit à l'étude théorique du dispositif. Nous pouvons remarquer

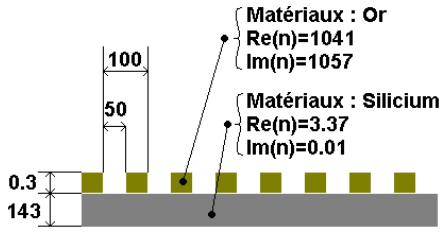



FIGURE 6.15: Dispositif étudié (dimension en $\mu$m).

que ces 2 simulations donnent un accord théorie-expérience remarquable (voir figure 6.16). L'expérience de spectroscopie THz-TDS est déjà décrite dans la publication [123].

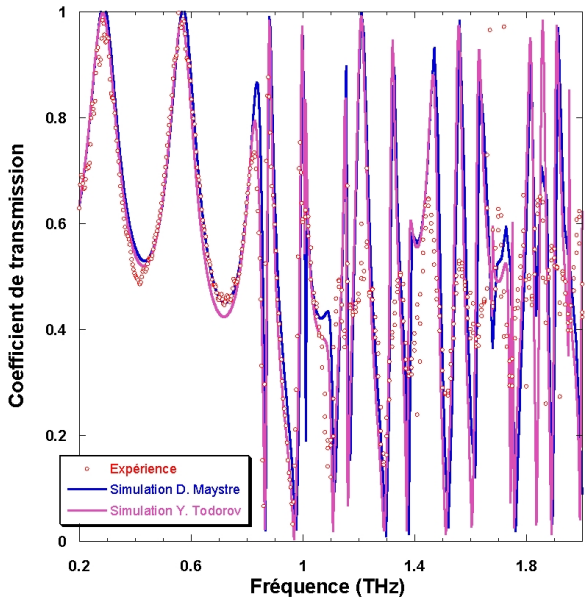



FIGURE 6.16: Exemple de spectre de coefficient de transmission pour une polarisation $s$ avec angle d'incidence 15°. Les ronds rouges pour les données expérimentales, la courbes bleu pour la simulation avec le model intégral [108], et violet pour la méthode modale [122]

### 6.4.2 Résultats

On observe de 0 à 0.8 THz sur les résultats de la courbe 6.16 de fortes oscillations qui correspondent aux résonances Fabry-Pérot dans le substrat. Au delà de 0.8 THz, le spectre est fortement perturbé par l'apparition de modes guidés dans la structure ("m-line" dans le spectre). Nous distinguons 2 types de modes guidés, les plasmons de surface qui sont fortement localisés au niveau de la grille d'or, et les modes présents dans le diélectrique correspondant aux modes du substrat. Par exemple, nous représentons en figure 6.18 la localisation du champ (obtenue par la méthode modale) pour 2 modes guidés différents (le dispositif est éclairé par une onde plane de polarisation $p$ sous incidence 25°). Les "m-lines" observées dans le spectre sont donc attribuées soit :

- aux modes guidés dans le substrat (cas de droite de la figure 6.18, équation 6.16).

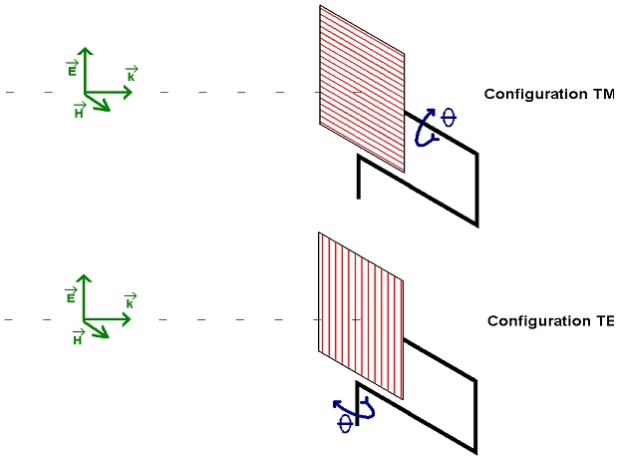



FIGURE 6.17: Disposition géométrique pour les mesures en mode TM et TE.

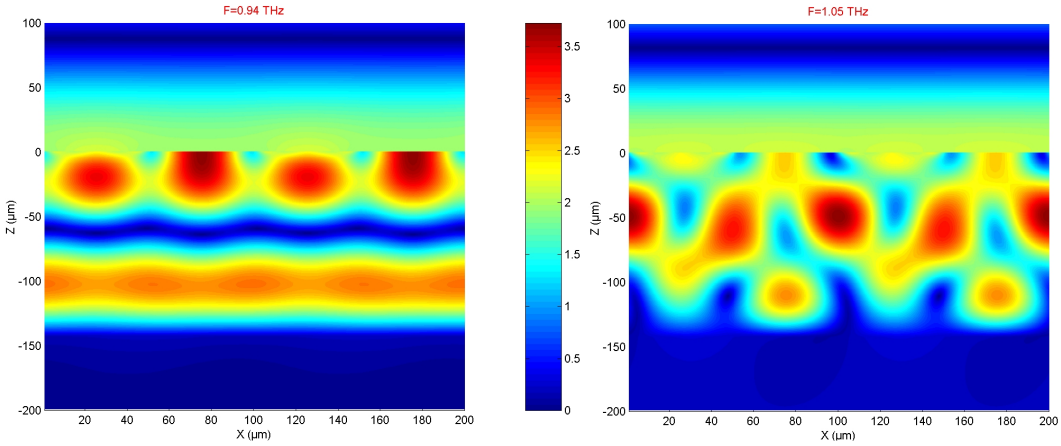



FIGURE 6.18: Localisation du champs dans la structure sous incidence 25° en polarisation $p$. A gauche le pic à 0.94 THz attribué à un mode plasmon. A droite le pic à 1.05 THz attribué à un mode de substrat.

- soit à l'excitation de SP (cas de gauche de la figure 6.18, équation 6.17).

$$\sin\theta + m\frac{c}{df} = sin(90°) = 1 \tag{6.16}$$

$$\sin\theta + p\frac{c}{df_{SP}} = n_{eff} \tag{6.17}$$

$$\text{Avec : } m, p \in \mathbb{N}$$

Il est possible à l'aide des équations 6.16 et 6.17 de calculer pour chaque "m-line" les ordres de diffraction (m et p) satisfaisant ces équations. La valeur de l'ordre de diffraction doit être un entier, il est donc possible de déterminer le type de propagation associé à une "m-line" en l'attribuant au cas donnant une valeur entière pour l'ordre.
Nous sommes donc en mesure de déterminer le type de propagation (mode substrat ou plasmonique) en observant la distribution d'énergie dans le substrat du mode considéré (première méthode), ou en calculant l'indice effectif de ce mode (les deux méthodes étant cohérentes).
Il est intéressant de constater qu'en l'absence de substrat, l'indice effectif $n_{eff}$ des SP est très proche de 1 (dans le domaine THz). Dans ce cas, les équations 6.16 et 6.17 sont formellement identiques. Comme nos simulations rendent très bien compte des expériences, nous avons réalisés une étude avec la méthode intégrale de l'influence du substrat sur l'indice effectif des plasmons. La courbe 6.19 met en évidence la présence de plasmon dans la structure par une levée de la dégénérescence dans le cas d'une épaisseur de substrat non nulle, et cela uniquement pour le mode TM. En effet, pour une petite épaisseur de substrat l'indice effectif du SP devient légèrement différent de 1.

$$n_{eff} = 1 + \epsilon \neq sin(90°)$$

Sur le même principe (variation de l'épaisseur de substrat dans le modèle basé sur la méthode intégrale) nous continuons à augmenter l'épaisseur à sa valeur réelle de 143 $\mu$m. En suivant (de proche en proche) la résonnance plasmonique, jusqu'a la valuer du substrat réel, nous sommes en mesure de déterminer la nature de la raie plasmonique d'ordre +1 (troisième méthode). L'indice effectif du SP en fonction de l'épaisseur du substrat est représenté en figure 6.20.
On constate que l'indice effectif converge vers le valeur de l'indice du silicium, indiquant que le plasmon est très majoritairement présent dans le silicium. Cela est en accord avec les cartes de champs 6.18 qui prédisent aussi un mode plasmonique dans le silicium. Notre travail démontre que la structure possède des modes de propagation en polarisation $p$ de type plasmonique ou de type guide d'onde. Ceci valide les résultats de Lee *et. al.* [124] qui observe des modes plasmoniques pures dans une structure identique sans substrat.

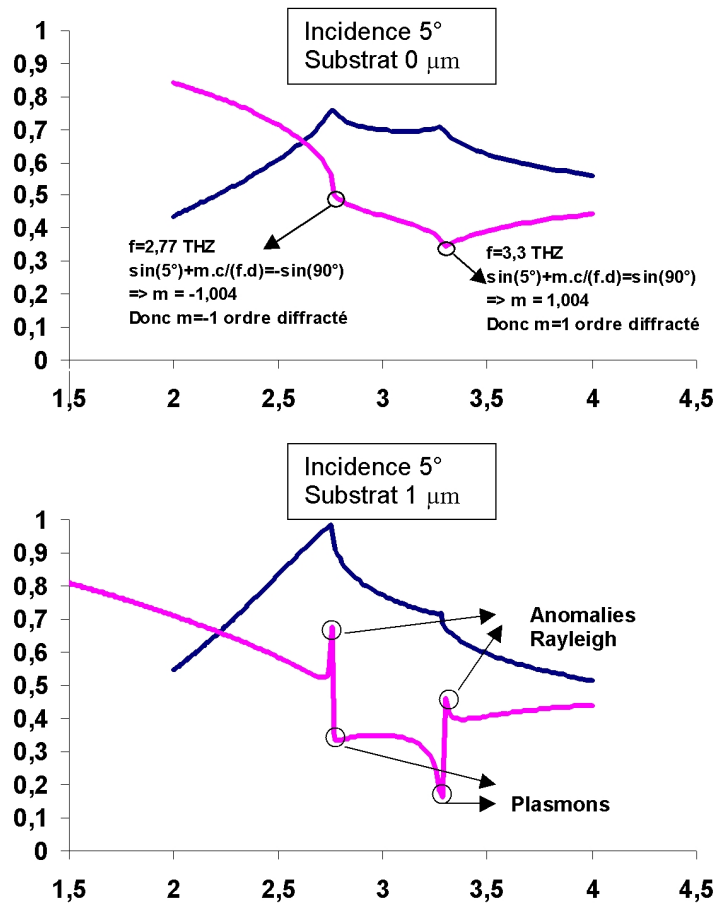



FIGURE 6.19: Mode TE en bleu et TM en violet. La courbe du haut représente le coefficient de transmission pour une épaisseur nulle de substrat, et celle du bas pour une épaisseur de 1 $\mu$m de substrat. On observe une levée de la dégénéréscence dans le cas TM avec une épaisseur non nulle de substrat.

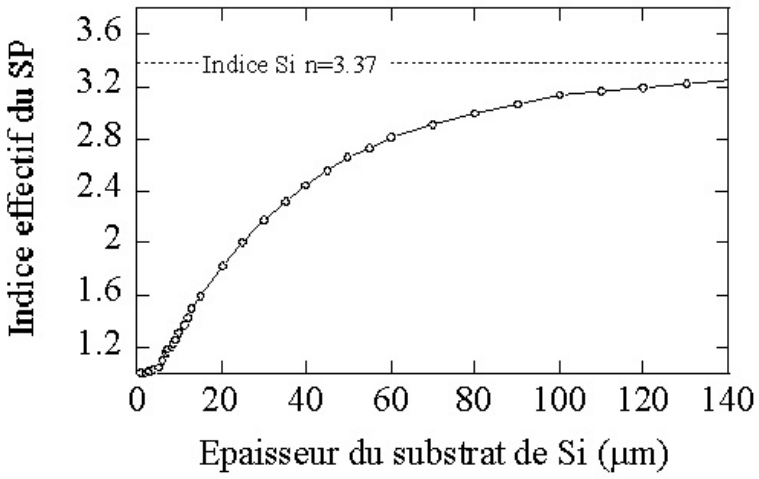



FIGURE 6.20: Evolution calculée de l'indice effectif du mode plasmon en fonction de l'épaisseur du substrat.

# Conclusion

Dans ce travail de thèse, nous avons :

- Etudié la génération et la détection THz par les techniques d'optique non-linéaires,
- Observé les signatures spectrales des matériaux pyrotechniques et de dissimulation,
- Développé et caractérisé un spectromètre dans le domaine THz de type goniomètre,
- Caractérisé des dispositifs de couplage et de mise en forme de plasmon THz.

Dans la première partie de cette thèse, nous avons dressé un état de l'art des différentes techniques de détection d'explosifs. Nous avons pu mettre en avant l'intérêt et la complémentarité qu'offre le rayonnement THz par rapport aux autres techniques de détection. Le caractère non ionisant du rayonnement ainsi que sa capacité à traverser les matériaux diélectriques non dipolaires (vêtements) permet d'utiliser ce rayonnement sur les personnes.
Dans le premier chapitre, nous avons rédigé un état de l'art de la génération et détection THz pour les applications très large bande ($>$ 20 THz). Nous avons montré l'intérêt qu'offrent les cristaux de ZnTe pour la génération et la détection des ondes THz.
Le second chapitre est une étude théorique de la génération et de la détection THz appliquée aux cristaux de ZnTe. Elle nous a permis de déterminer les spectres en fonction de l'orientation et de l'épaisseur des cristaux et ainsi de simuler le banc expérimental que nous avons développé.

La seconde partie de cette thèse concerne un travail expérimental sur la conception de banc de spectroscopie. Le chapitre 3 concerne le banc de spectroscopie large bande. Nous avons obtenu par simulation des largeurs spectrales similaires à nos expériences. Toutefois, un décalage du maximum vers les basses fréquences par rapport à la théorie est observé. Toutefois, compte-tenu de la dynamique des signaux obtenus, il est dans l'état impossible d'obtenir de large spectre même en utilisant des cristaux fins. En effet, nous avons montré que nos cristaux possèdent un coefficient de Pockels de l'ordre de seize fois inférieur à celui rencontré dans la littérature ; trouver de bons fournisseurs de cristaux est donc nécessaire. Avec des cristaux efficaces, il serait alors possible d'obtenir des signaux de référence avec une dynamique de l'ordre de la dizaine de dB (environ 20 dB) aux

très hautes fréquences (20 THz). Bien que cela reste faible pour de la spectroscopie, des caractérisations d'échantillons de faible épaisseur optique et de faible absorption seraient d'ors et déjà possibles avec le banc actuel. Nous avons vu pour les hautes fréquences que les aberrations géométriques (très fortes avec de petites erreurs d'alignements) conduisent rapidement à la destruction du signal. L'utilisation de cristaux fins nécessitera donc un soin particulier sur les alignements pour minimiser cet effet qui pourrait alors devenir critique.
Le chapitre 4 s'intéresse au développement d'un banc de spectroscopie de type goniomètre. La mesure des signaux transmis et réfléchis pour des angles de détection quelconque et pour des incidences sur l'échantillon quelconque permet de connaitre la fonction de distribution bidirectionnelle de réflectivité des matériaux. Ainsi une meilleure connaissance du comportement des matériaux en situation réelle peut être obtenue grâce à ce type de banc de mesure. Nous avons donc conçu un spectro-goniomètre THz, le fibrage du détecteur permet un déplacement simple et donc un changement de l'angle de détection. Nous avons validé sa capacité à détecter des signaux diffusés en transmission.

La dernière partie de la thèse regroupent les mesures d'échantillons et de dispositifs. Le chapitre 5 présente les mesures effectuées sur les matériaux pyrotechniques (réalisé à l'ETBS) ainsi que les mesures sur les matériaux de dissimulation réalisées au laboratoire IMEP-LAHC. Nous avons observé des signatures spectrales d'explosifs par ailleurs déjà publiées par d'autres équipes. Nous pouvons affirmer qu'il est important de couvrir une bande passante de 500 GHz à $> 3$ THz pour identifier clairement les explosifs étudiés (présence d'au moins 2 raies d'absorptions pour RDX, TNT, HMX et PETN). Nous relevons aussi l'existence d'une raie du TNT à 916 GHz très peu rapportée dans la littérature. Cette étude pourrait notamment se poursuivre par des mesures des matériaux pures et composites, afin de valider ou développer des modèles de comportement des échantillons composites. La mesure des matériaux de dissimulation (vêtements, papiers, matériaux de construction...) nous a permis de dresser une liste des épaisseurs critiques pour lesquelles le signal de transmission est encore visible. Les matériaux de type bois, roche, ou brique, ciment présentent une forte absorption qui rend difficile des techniques de mesure au travers de ces matériaux (compte-tenu des dynamiques actuelles, et des épaisseurs usuelles rencontrées pour ces matériaux). La mesure au travers des vêtements est par contre tout à fait possible. Les méthodes de spectroscopie THz dans le domaine temporel sont très pratiques pour l'étude de l'intéraction THz - matière et pour l'établissement de bases de données. Toutefois, en situation réelle, d'autres approches doivent être envisagées (no-

tamment avec les détecteurs incohérents offrant de très bonnes sensibilités). Néanmoins, des techniques de spectroscopie temporelle THz en transmission sont déjà mise en œuvre pour des applications de surveillance des lettres et petits colis.
Le dernier chapitre montre les dispositifs de couplage d'onde THz plasmonique. Le premier dispositif montre expérimentalement l'effet de bande d'énergie interdite au croissement des courbes de dispersion des SP. Le couplage simultané de mode propagatif et contra-progatif introduit un phénomène d'onde stationnaire empêchant l'onde plasmonique de se propager. Ce type de phénomène est intéressant dans le développement de dispositif plasmonique comme les miroirs, plan ou non, semi-réfléchissant... La perspective de créer des systèmes bi-dimensionnel complets, tel qu'un interféromètre de Mach-Zender, motive ce genre d'étude. Le second dispositif étudié est un dispositif de couplage de type réseau. Grâce à la forme ellipsoïdale des sillons du réseau l'onde couplée peut être focalisée. Ce dispositif permet donc d'obtenir un fort confinement du champ. De plus, le dispositif est ouvert (confinement dans l'air) ce qui permet un accès facile à la zone de confinement. Ce dispositif pourrait servir dans la caractérisation d'échantillon d'explosifs en petite quantité, mais aussi pour le filtrage et le couplage dans des guides d'ondes, pour l'excitation de dispositif actif comme des amplificateurs THz à cascade quantique... Le dernier dispositif étudié se compose d'un substrat sur lequel est déposée une grille d'or. Nous montrons que par le phénomène de diffraction sur la grille, nous pouvons coupler des modes guidés dans le substrat. Avec une incidence en polarisation TM, ces modes guidés sont de 2 types. A l'aide de simulation (méthodes modale développée par Y. Todorov et intégrale par D. Maistre) nous sommes capable de distinguer des modes de type substrat et des modes de type plasmonique (localisés à l'interface grille-substrat).

# Quatrième partie

# Annexes

# Annexe A

# Raies d'absorption d'une large gamme d'explosif

| **Echantillon** | **Position centrale des raies d'absorptions (THz)** |
|---|---|
| TNT | 1.66, 2.20, 3.69, 4.71, 5.52, 8.28, 9.12, 9.78, 10.65, 11.01, 13.86, 15.15<br>16.95, 17.37, 19.17, 19.89 |
| RDX | 0.82, 1.05, 1.50, 1.96, 2.20, 3.08, 6.73, 10.35, 11.34, 12.33, 13.86<br>14.52, 17.74, 18.12, 20.13 |
| HMX | 1.78, 2.51, 2.82, 5.31, 6.06, 11.28, 12.00, 12.54, 12.96, 13.74, 14.55<br>18.15, 18.60, 19.38 |
| PETN | 2.0, 2.84 |
| Tetryl | 5.97, 10.11, 11.28, 14.67, 16.14, 18.36 |
| 2-amino-4.6-DNT | 0.96, 1.43, 1.87, 3.96, 5.07, 6.27, 8.49, 9.87, 10.77, 12.15, 13.44, 16.68 |
| 4-amino-2,6-DNT | 0.52, 1.24, 2.64, 3.96, 5.04, 5.82, 7.53, 9.30, 10.20, 11.13, 13.86, 14.97, 17.70 |
| 4-Nitroluene | 1.20, 1.37, 1.86, 6.75, 8.85, 10.83, 14.04, 15.66, 18.51 |
| 1,3,5-TNB | 4.17, 4.62, 10.05, 11.19, 13.80, 15.75, 19.05 |
| 1,3-DNB | 0 ;94, 1.19, 2.37, 10.56, 12.18, 15.33, 17.13 |
| 1,4-DNB | 3.24, 3.96, 5.55, 10.38, 12.45, 13.29, 15.21, 15.54 |
| 2,4-DNT | 0.45, 0.66, 1.08, 2.52, 4.98, 8.88, 10.56, 11.58, 12.81, 14.34, 15.69, 19.05, 20.04 |
| 2,6-DNT | 1.10, 1.35, 1.56, 2.50, 5.61, 6.75, 8.78, 11.43, 13.32, 13.89, 15.39, 17.25 |
| 3,5-dinitro aniline | 0.96, 1.20, 3.18, 4.62, 5.04, 5.91, 7.44, 10.62, 10.98, 14.46, 16.41, 18.18 |
| 2-nitro diphenyl anine | 2.19, 2.58, 2.88, 3.45, 5.13, 6.18, 7.56, 10.08, 12.33, 13.05<br>15.00, 15.60, 16.29, 17.34, 18.51, 19.32 |

Table A.1: Extrait de "Terahertz spectroscopy and imaging for defense and security applications [23]".

# Annexe B

# Routine Maple exprimant le module et la direction de polarisation du champs THz dans le ZnTe (110)

```
> restart:
with(linalg):
with(plots):
```

Warning, the protected names norm and trace have been redefined and unprotected
Warning, the name changecoords has been redefined

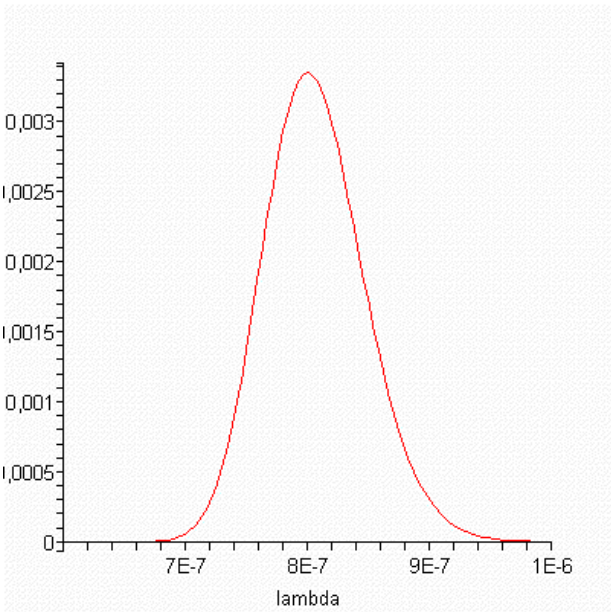
```
> EoptLab:=matrix(3,1,[[cos(theta)],[-sin(theta)],[0]]);
```

$$EoptLab := \begin{bmatrix} \cos(\theta) \\ -\sin(\theta) \\ 0 \end{bmatrix}$$

```
> xo:=3e8*2*Pi/(800*1e-9)*1e-12:
sigma:=xo/14:
Pw:=unapply(1/sigma*sqrt(1/Pi)*exp(-((x-xo)/sigma)**2),x):
plot(Pw(x),x=xo-2*sigma..xo+2*sigma):
int(Pw(x),x=-infinity..infinity):
Ew:=unapply(sqrt(Pw(x)),x); #Champs en TeraRad/s
plot(Pw(3e8*2*Pi*1e-12/lambda),lambda=600*1e-9..1000*1e-9);
```

```
>
```

$$Ew := x \rightarrow 0.1366260102 \sqrt{\frac{e^{\left(-\frac{0.0003484444445\,(x - 750.0000000\,\pi)^2}{\pi^2}\right)}}{\pi^{(3/2)}}}$$




```
> noptmicro := unapply(sqrt( 4.27+3.01*lambda**2/(lambda**2-0.142) ),lambda):
```

```
noptw:=unapply(noptmicro(3e8*2*Pi/(w*1e-6)),w):
a:=(noptmicro(0.85)-noptmicro(0.75))/0.1:
b:=noptmicro(0.75)-a*0.75:

noptmicrolin:=unapply(a*x+b,x):
noptwlin:=unapply( noptmicrolin(3e8*2*Pi/(w*1e-6)) ,w):
#x1:=0.7:#Pour fitter avec parabole
#x2:=0.8:#Pour fitter avec parabole
#x3:=0.9:#Pour fitter avec parabole
#solve({aaa*x1**2+bbb*x1+ccc=noptmicro(x1),aaa*x2**2+bbb*x2+ccc=n
optmicro(x2),aaa*x3**2+bbb*x3+ccc=noptmicro(x3)},{aaa,bbb,ccc}):
noptmicroPara:=unapply(1.278808700*lambda**2-
2.559404870*lambda+4.081852195,lambda):
noptwPara:=unapply(noptmicroPara(3e8*2*Pi/(w*1e-6)),w):

nThzTHz := unapply(sqrt( (289.27-6*fthz**2)/(29.16-fthz**2)
),fthz):


nThz:=unapply(nThzTHz(w/(2*Pi)),w);                    #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine THz
#nThz:=unapply(nThzTHz(1),x);                          #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine THz
#nopt:=unapply(simplify(noptw(w*1e12)),w);             #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine Opt
#nopt:=unapply(noptmicro(0.8),x);                      #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine Opt
nopt:=unapply(noptwlin(w*1e12),w);                     #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine Opt
#nopt:=unapply(noptwPara(w*1e12),w);                   #Indice du
ZnTe en teraRad/s domaine Opt
```

$$nThz := w \rightarrow \sqrt{\frac{289.27 - \frac{3\,w^2}{2\,\pi^2}}{29.16 - \frac{w^2}{4\,\pi^2}}}$$

$$nopt := w \rightarrow -\frac{294.3033660\,\pi}{w} + 3.248236234$$

```
> M1:=matrix(3,3,[[0,sqrt(2)/2,sqrt(2)/2],[0,-
sqrt(2)/2,sqrt(2)/2],[1,0,0]]);
M2:=matrix(3,3,[[(1+cos(alpha))/2,(1-cos(alpha))/2,-
sqrt(2)/2*sin(alpha)],[(1-
```

```
cos(alpha))/2,(1+cos(alpha))/2,sqrt(2)/2*sin(alpha)],[sin(alpha)/
sqrt(2),-sin(alpha)/sqrt(2),cos(alpha)]]);
M1S:=inverse(M1):
M2S:=simplify(inverse(M2)):
```

$$M1 := \begin{bmatrix} 0 & \frac{1}{2}\sqrt{2} & \frac{1}{2}\sqrt{2} \\ 0 & -\frac{1}{2}\sqrt{2} & \frac{1}{2}\sqrt{2} \\ 1 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$M2 := \begin{bmatrix} \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(\alpha) & \frac{1}{2} - \frac{1}{2}\cos(\alpha) & -\frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\alpha) \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2}\cos(\alpha) & \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(\alpha) & \frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\alpha) \\ \frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\alpha) & -\frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{bmatrix}$$

```
> MT:=simplify(evalm(M2&*M1)):
MTS:=simplify(inverse(MT)):
> EoptCristal1:=simplify(evalm(MT&*EoptLab));
```

$$EoptCristal1 := \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}\sqrt{2}\,(\sin(\alpha)\cos(\theta) + \cos(\alpha)\sin(\theta)) \\ \frac{1}{2}\sqrt{2}\,(\sin(\alpha)\cos(\theta) + \cos(\alpha)\sin(\theta)) \\ \cos(\alpha)\cos(\theta) - \sin(\alpha)\sin(\theta) \end{bmatrix}$$

On constate que ECristal peut être grandement simplifier mais je ne sais le faire avec mapple je vais donner la solution qui nous apparait explicitement

```
> EoptCristal:=matrix(3,1,[[-
sqrt(2)/2*sin(theta+alpha)],[sqrt(2)/2*sin(theta+alpha)],[cos(alp
ha+theta)]]);
```

$$EoptCristal := \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\theta + \alpha) \\ \frac{1}{2}\sqrt{2}\sin(\theta + \alpha) \\ \cos(\theta + \alpha) \end{bmatrix}$$

Juste pour vérifier notre expression explicite...

```
> simplify(EoptCristal1[1,1]-expand(EoptCristal[1,1])) :
simplify(EoptCristal1[2,1]-expand(EoptCristal[2,1])) :
simplify(EoptCristal1[3,1]-expand(EoptCristal[3,1])) :
```

```
> ETHzCristal:=matrix(3,1,[
[EoptCristal[2,1]*EoptCristal[3,1]],[EoptCristal[3,1]*EoptCristal
[1,1]],[EoptCristal[1,1]*EoptCristal[2,1]]
]);
```

$$ETHzCristal := \begin{bmatrix} \frac{1}{2}\sqrt{2}\,\sin(\theta+\alpha)\cos(\theta+\alpha) \\ -\frac{1}{2}\sqrt{2}\,\sin(\theta+\alpha)\cos(\theta+\alpha) \\ -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)^2 \end{bmatrix}$$

```
> ETHzLab:=simplify(evalm(MTS&*ETHzCristal));
```

$$ETHzLab := \begin{bmatrix} -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)\,(2\sin(\alpha)\cos(\theta+\alpha)+\cos(\alpha)\sin(\theta+\alpha)) \\ -\frac{1}{2}\sin(\theta+\alpha)\,(-2\cos(\alpha)\cos(\theta+\alpha)+\sin(\alpha)\sin(\theta+\alpha)) \\ 0 \end{bmatrix}$$

```
> ETHzX:=unapply(ETHzLab[1,1],theta,alpha):
ETHzY:=unapply(ETHzLab[2,1],theta,alpha):
ETHzZ:=unapply(ETHzLab[3,1],theta,alpha):

Module:=simplify(sqrt(ETHzX(theta,alpha)**2+ETHzY(theta,alpha)**2
+ETHzZ(theta,alpha)**2)):
densityplot(Module(theta,alpha),theta=0..2*Pi,alpha=0..2*Pi,grid=
[50,50]);

fieldplot([ETHzX(theta,alpha),ETHzY(theta,alpha)],theta=0..2*Pi,a
lpha=0..2*Pi,arrows=large,grid=[30,30]);
```

# Annexe C

# Routine Maple de détermination du coefficient de Pockels

```
> restart:with(linalg):
Warning, the protected names norm and trace have been redefined
and unprotected
```

## Données du problème

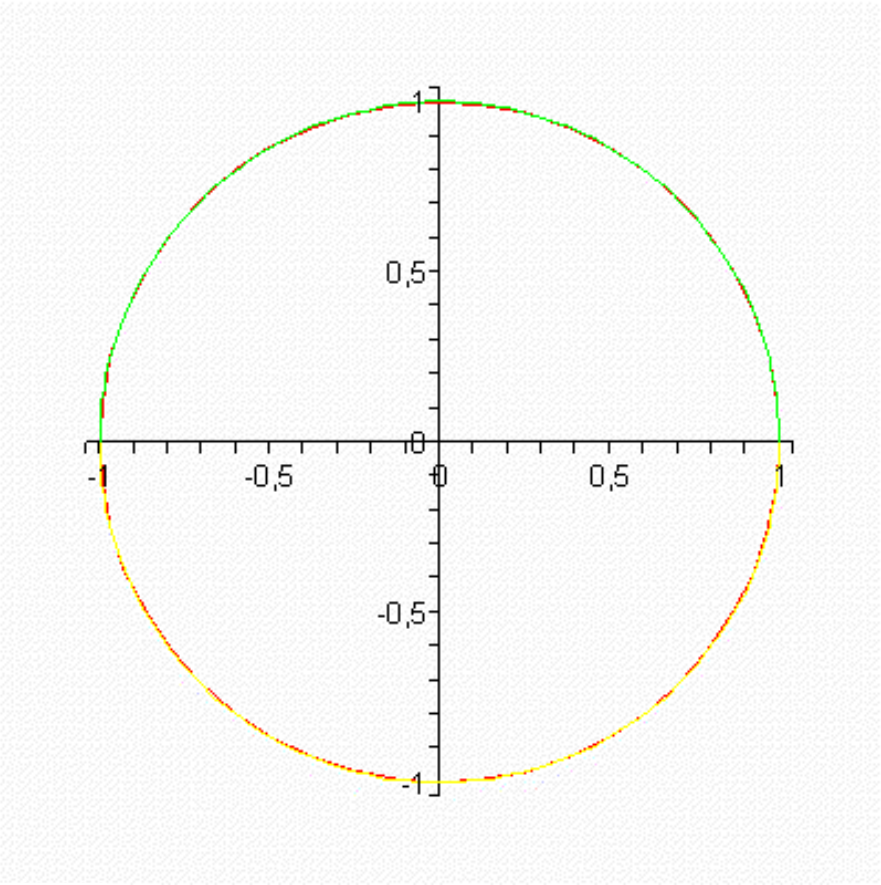
```
> R41:=2.38e-13:
Vpp:=10:
d:=3e-3:
E:=Vpp/(2*d*sqrt(2));
n:=2.7:
L:=1e-3:
lambda := 800e-9:
c:=3e8:
w:=c*2*Pi/lambda:
DeltaN := sqrt(2/3)*E*n**3*R41:
DeltaPhi := DeltaN*L*2*Pi/lambda;
```

$$E := 833.3333330\sqrt{2}$$

$$DeltaPhi := 0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi$$

Ellipse de la polarisation induite initialement circulaire, après traversé du cristal de ZnTe (111) en paramétrique (Parametrique) et en cartésien (Cartesian) et en fonction (Y1=f(X+) & Y2 = f(X-).

```
> Parametrique:=[cos(w*t),sin(w*t+DeltaPhi),t=0..2*Pi/w]:
Cartesian:=X**2/cos(DeltaPhi)^2 + Y**2/cos(DeltaPhi)^2 -
2*X*Y*sin(DeltaPhi)/cos(DeltaPhi)^2 = 1:
Y1:=solve(Cartesian,Y)[1]:Y2:=solve(Cartesian,Y)[2]:
plot({Parametrique,[X,Y1,X=-1..1],[X,Y2,X=-1..1]});
```




Recherche de l'ellipcité

Matrice M de l'ellipse qu'on cherce à diagonaliser (matrice DD) grace à la matrice de passage P

```
> M:=matrix([[1/cos(DeltaPhi)^2,-
sin(DeltaPhi)/cos(DeltaPhi)^2],[-
sin(DeltaPhi)/cos(DeltaPhi)^2,1/cos(DeltaPhi)^2]]);
expand(evalm([X,Y]&*M&*[[X],[Y]])[1])=1:
Donnee:=eigenvects(M);
P:=matrix([[Donnee[1][3][1][1],Donnee[2][3][1][1]],[Donnee[1][3][
1][2],Donnee[2][3][1][2]]]);
Donnee[1][3][1][2];
DD:=evalm(inverse(P)&*M&*P);
```

$$M := \begin{bmatrix} \frac{1}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} & -\frac{\sin(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} \\ -\frac{\sin(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} & \frac{1}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} \end{bmatrix}$$

$$Donnee := [0.9999645975, 1, \{[0.7071067813, 0.7071067813]\}],$$

$$[1.000035405, 1, \{[-0.7071067813, 0.7071067813]\}]$$

$$P := \begin{bmatrix} 0.7071067813 & -0.7071067813 \\ 0.7071067813 & 0.7071067813 \end{bmatrix}$$

$$0.7071067813$$

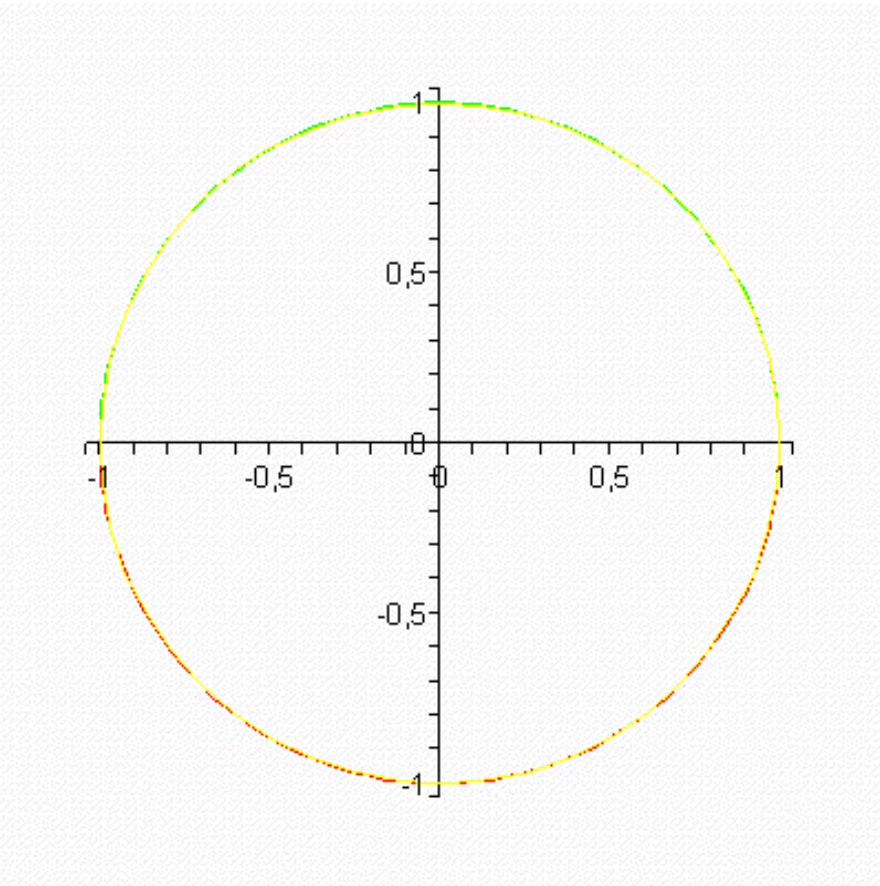
$$DD := \left[ \left[ \frac{1.000000000}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} - \frac{1.000000000\sin(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2}, 0. \right], \left[ 0., \frac{1.000000000\sin(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} + \frac{1.000000000}{\cos(0.000003253162500\sqrt{6}\sqrt{2}\pi)^2} \right] \right]$$

```
> a:=evalf(sqrt(1/DD[1,1]));b:=evalf(sqrt(1/DD[2,2]));
if(a/b<1)then ellipticite := 1-a/b else ellipticite := 1-b/a fi;
plot({Parametrique,[X,b*sqrt(1-X**2/a**2),X=-a..a],[X,-b*sqrt(1-
X**2/a**2),X=-a..a]});
```

$$a := 1.000017702$$

$$b := 0.9999822983$$

$$ellipticite := 0.0000354031$$

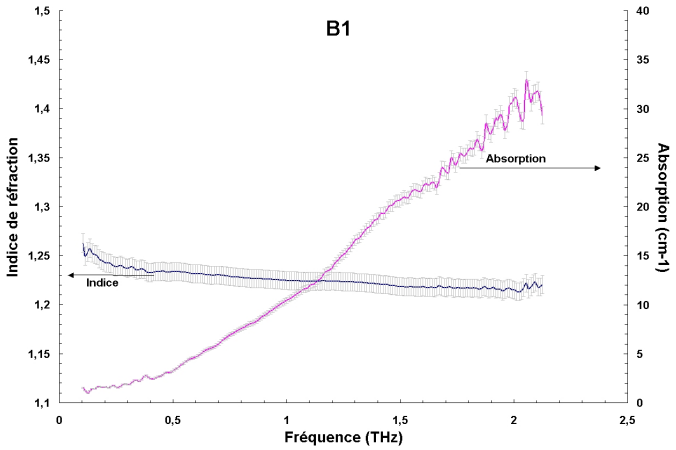


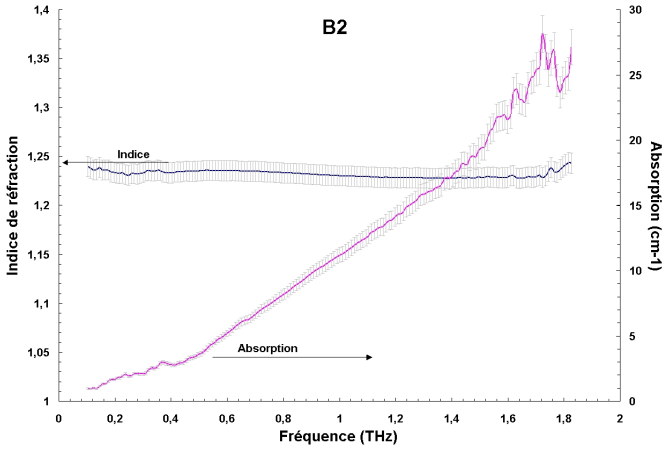
# Annexe D

# Détail des résultats obtenus sur les matériaux de dissimulation

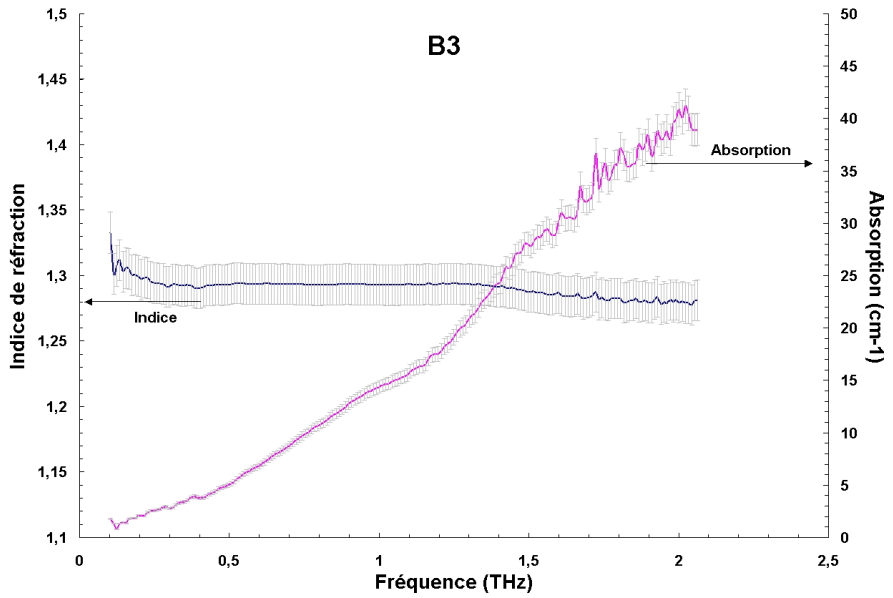
### D.0.3 B1, bois résineux

### D.0.4 B2, bois résineux

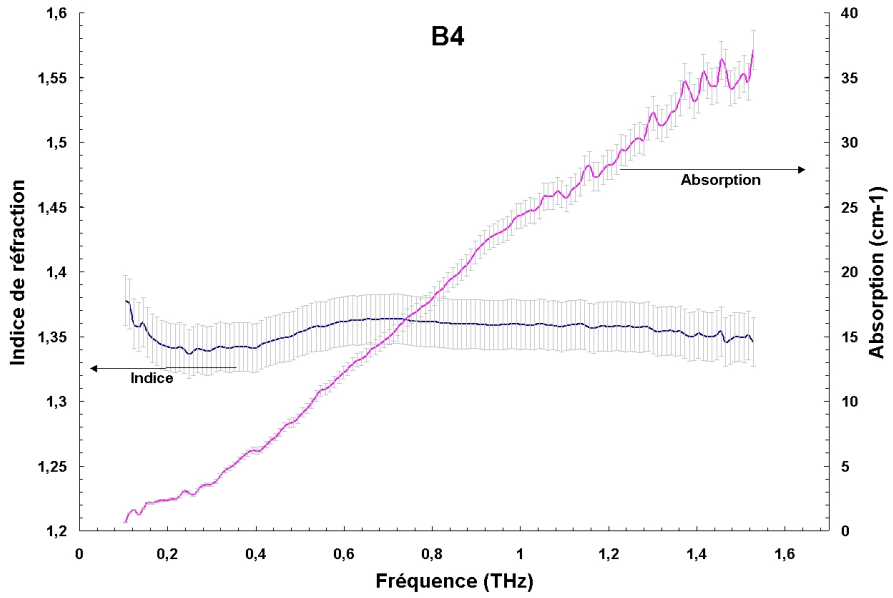

B1
Indice de réfraction
Absorption (cm-1)
Fréquence (THz)
Absorption
Indice
1,5
1,45
1,4
1,35
1,3
1,25
1,2
1,15
1,1
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
0,5
1
1,5
2
2,5


B2
Indice de réfraction
Absorption (cm-1)
Fréquence (THz)
Indice
Absorption
1,4
1,35
1,3
1,25
1,2
1,15
1,1
1,05
1
30
25
20
15
10
5
0
0
0,2
0,4
0,6
0,8
1
1,2
1,4
1,6
1,8
2

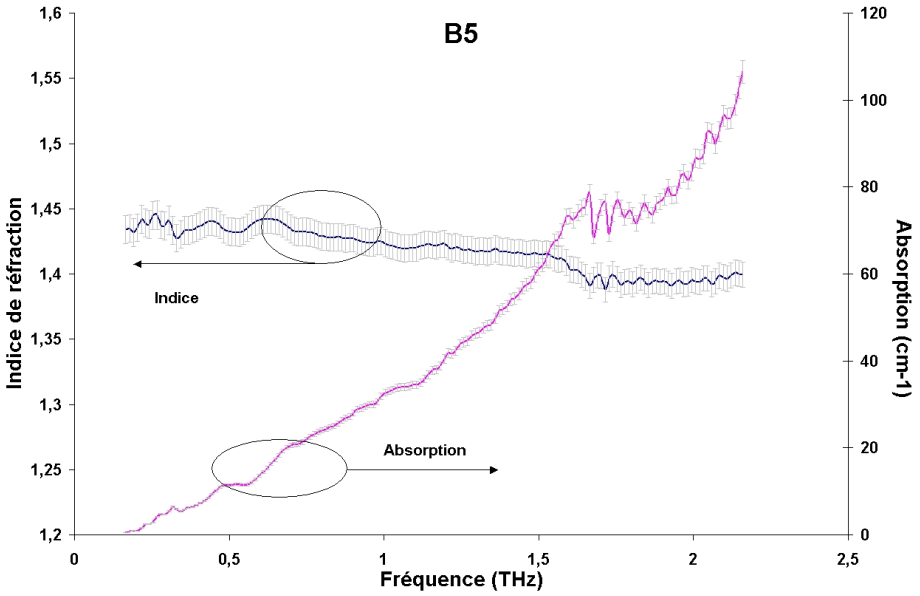
### D.0.5 B3, bois résineux



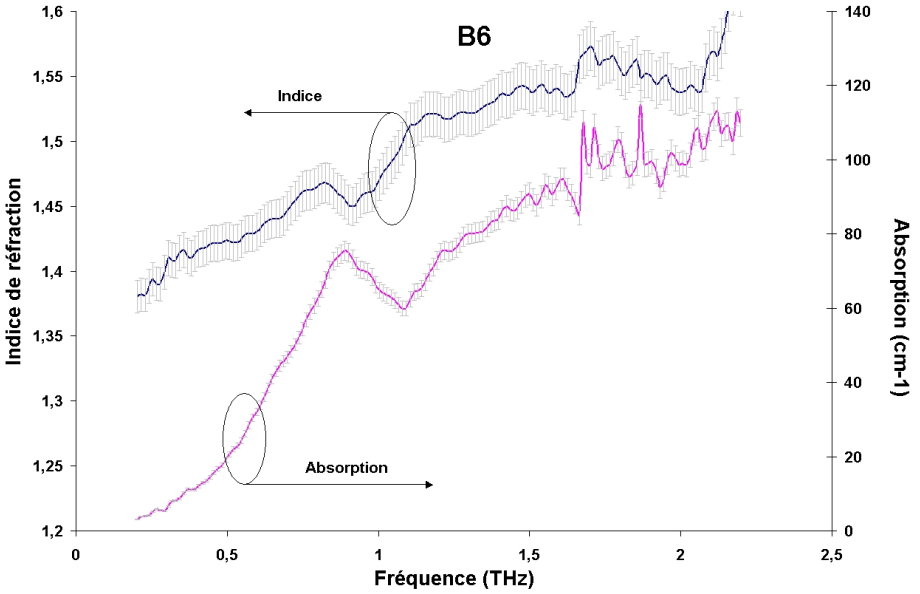

### D.0.6 B4, bois résineux



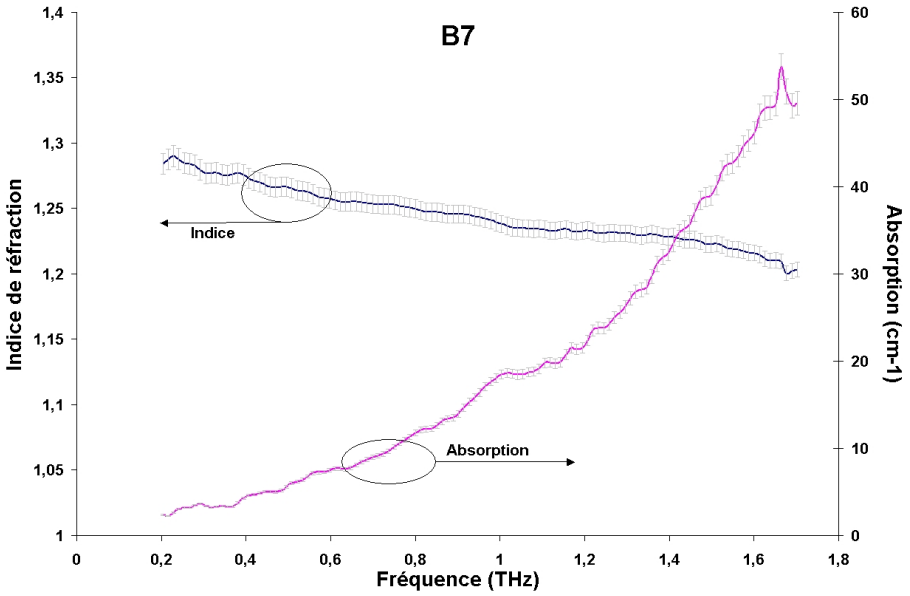
### D.0.7 B5, essence de hêtre



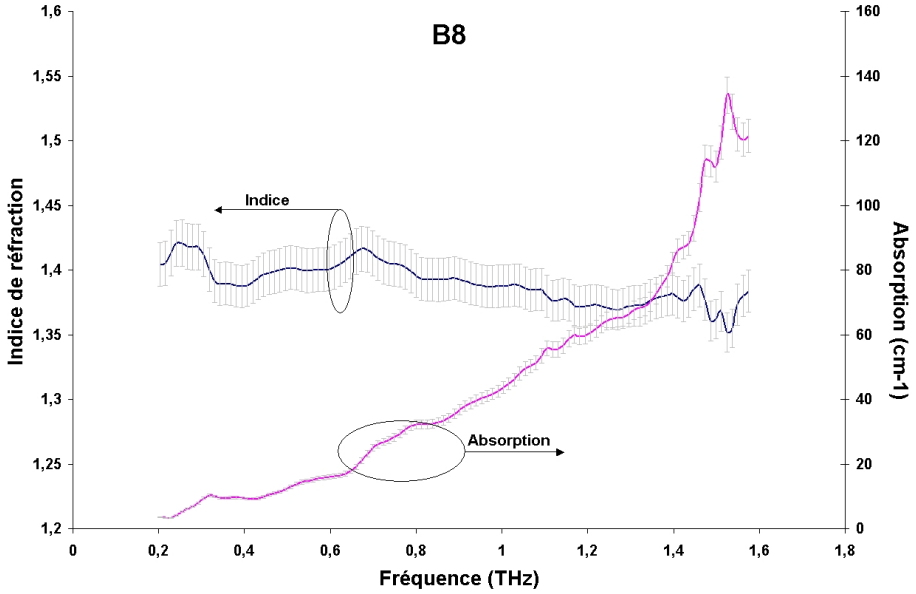

### D.0.8 B6, essence de chêne



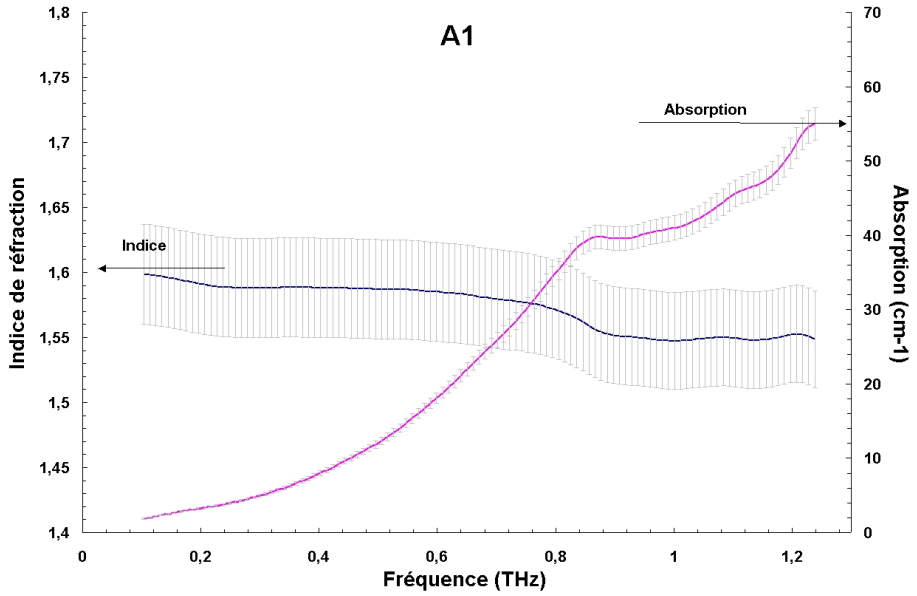
### D.0.9 B7, essence d'acajou 1



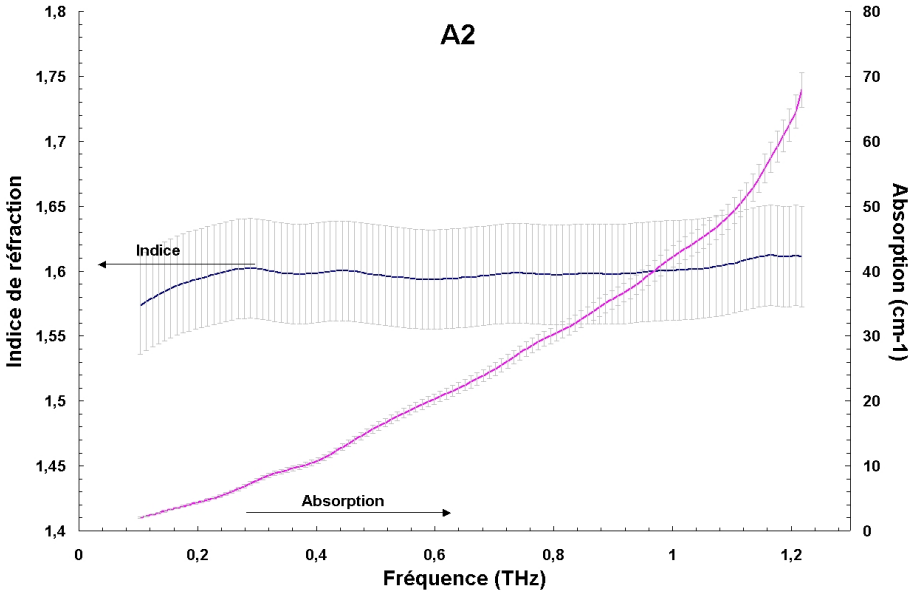

### D.0.10 B8, essence d'acajou 2



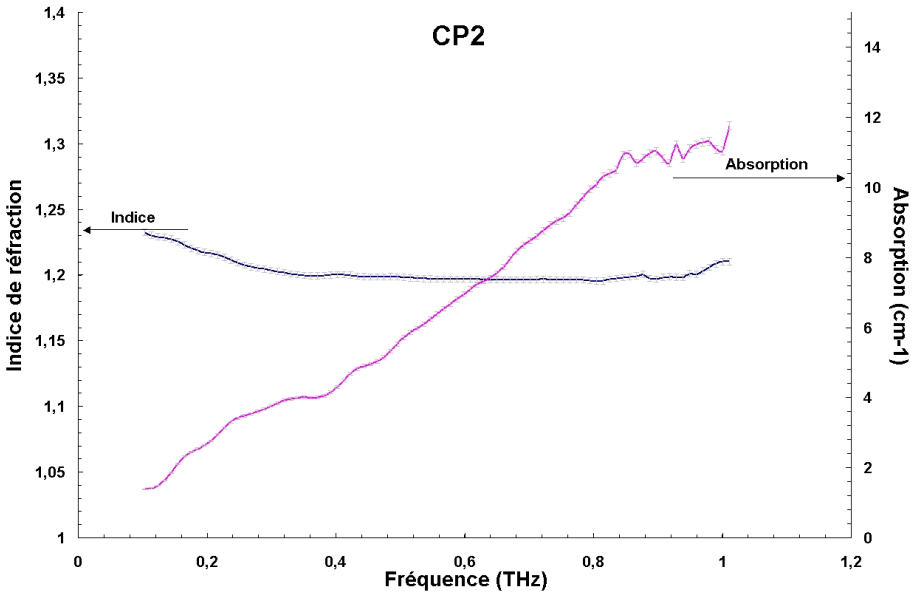
### D.0.11 A1, aggloméré



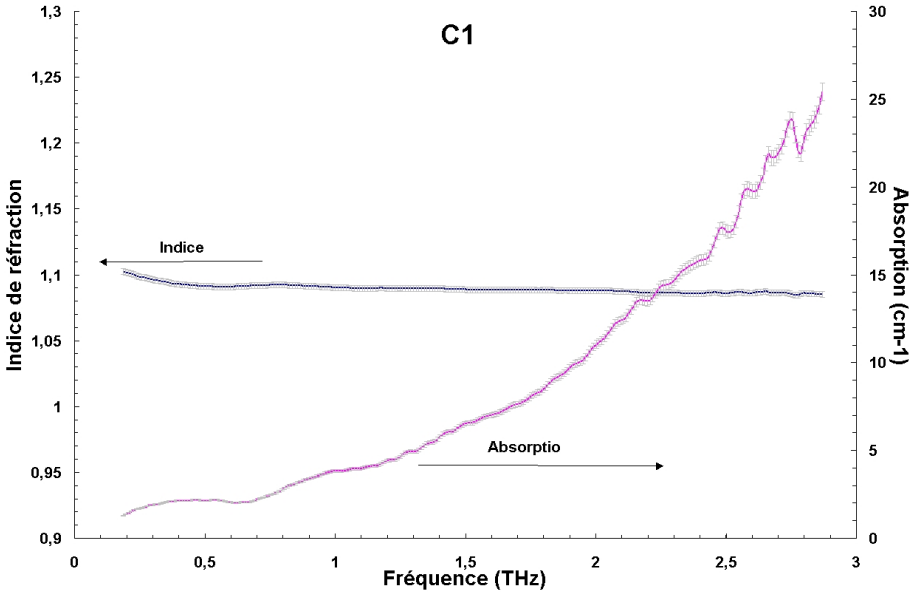

### D.0.12 A2, aggloméré



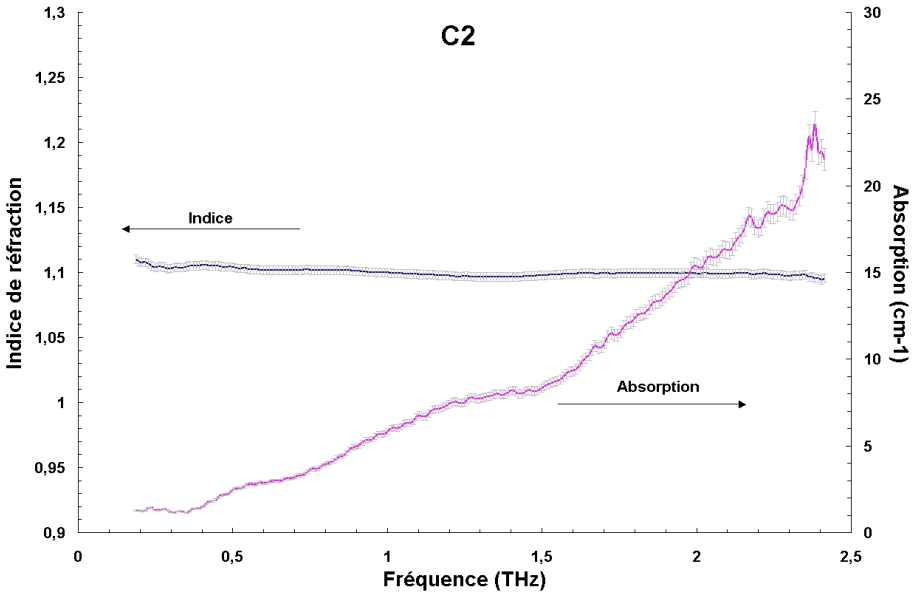
### D.0.13 CP2, contre-plaqué



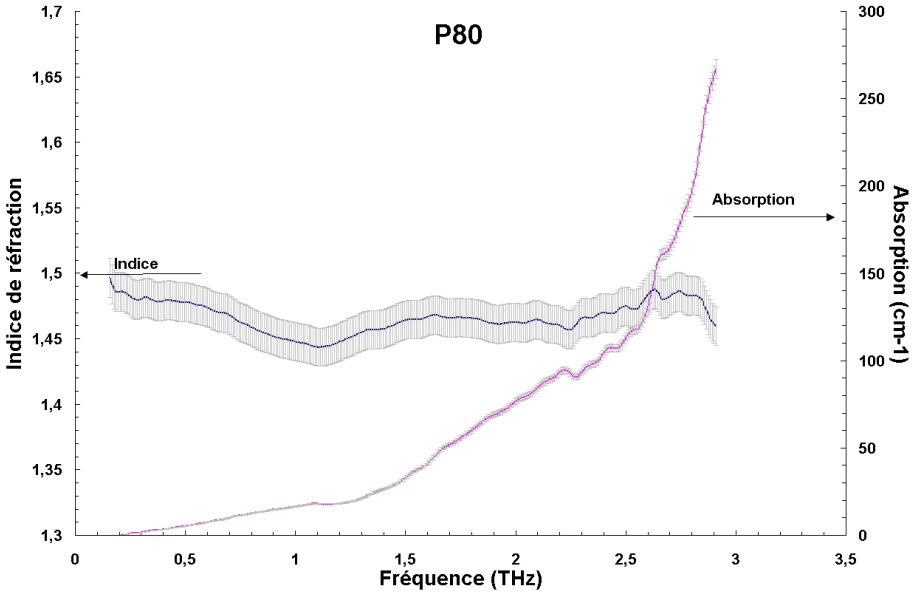

### D.0.14 C1, carton alvéolé



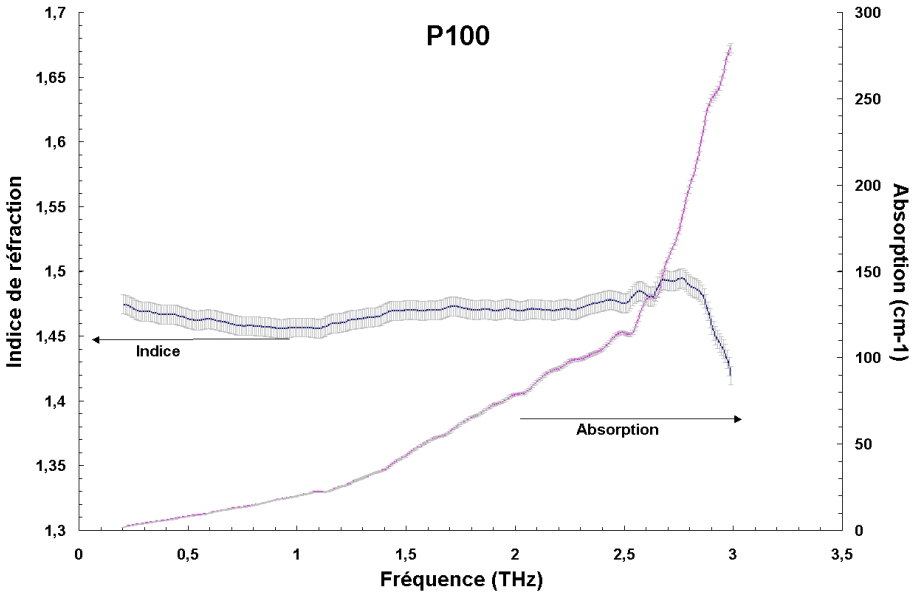
### D.0.15 C2, carton alvéolé



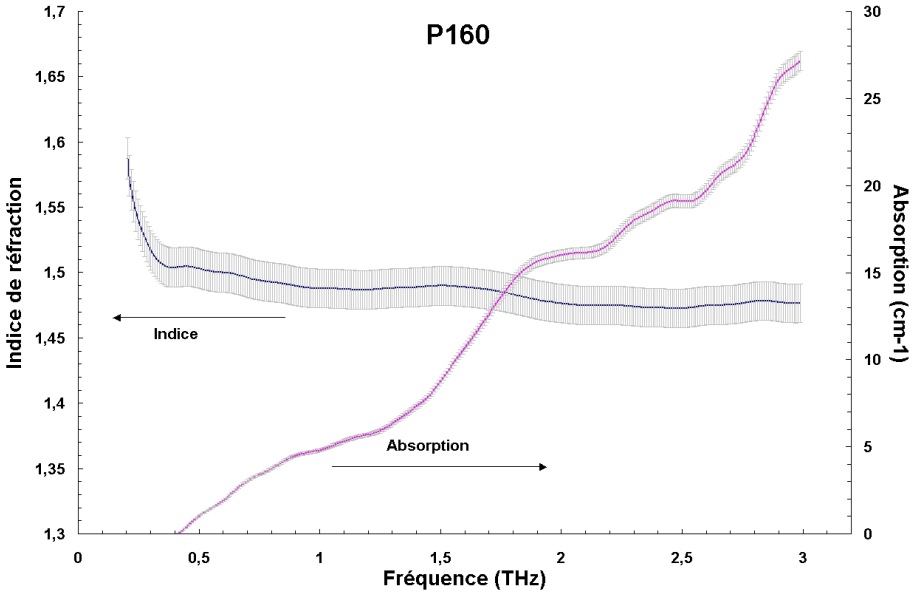

### D.0.16 P80, papier blanc



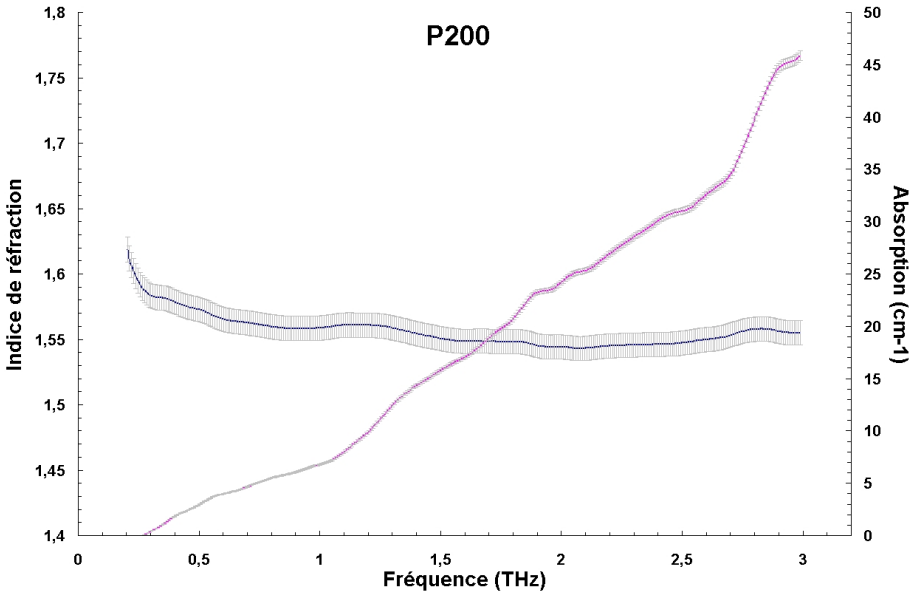
### D.0.17 P100, papier blanc



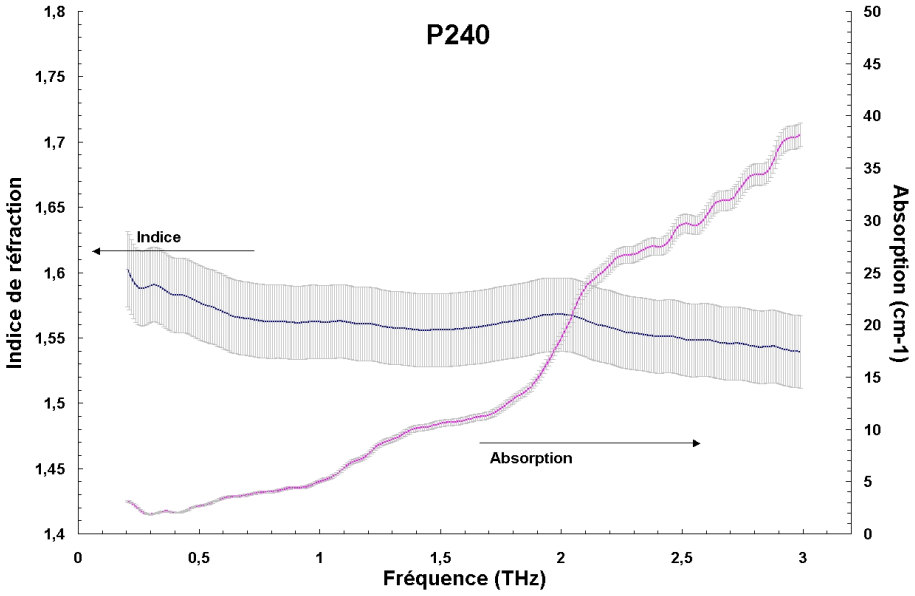

### D.0.18 P160, papier blanc



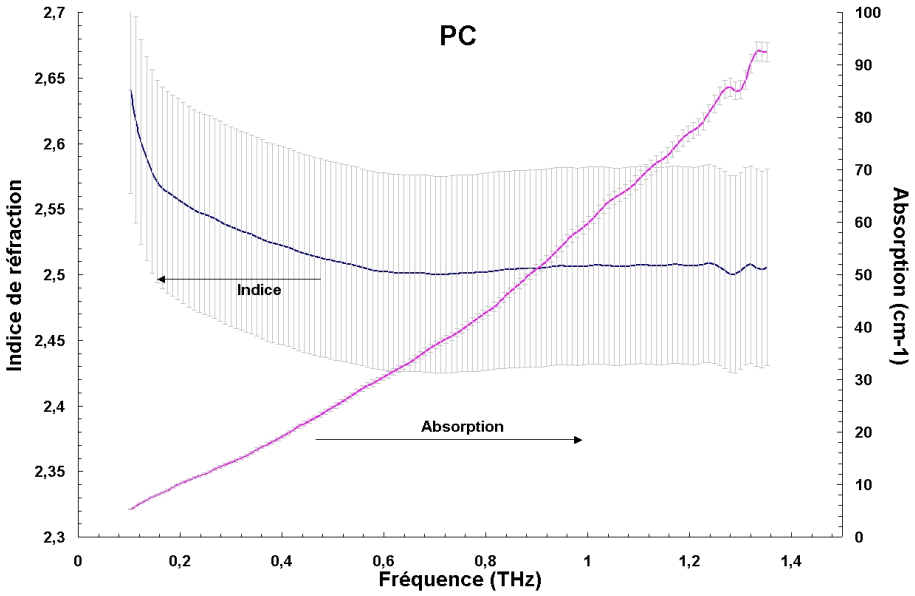
### D.0.19 P200, papier blanc



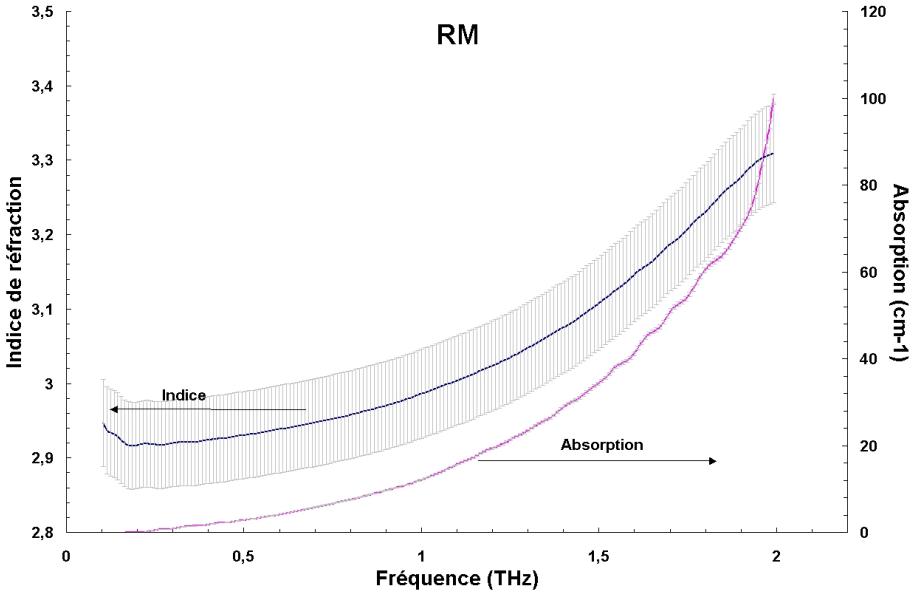

### D.0.20 P240, papier blanc



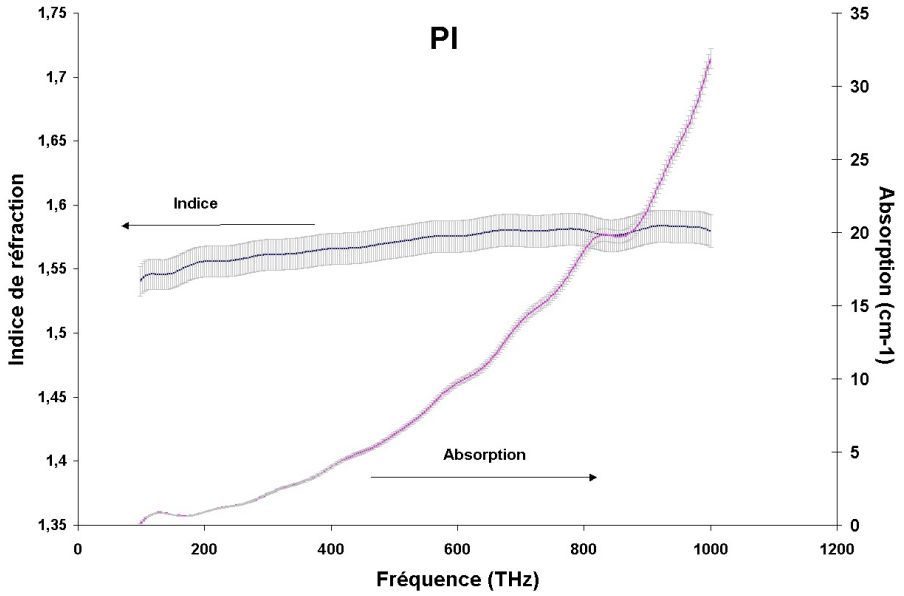
### D.0.21 PC, Pâte de ciment



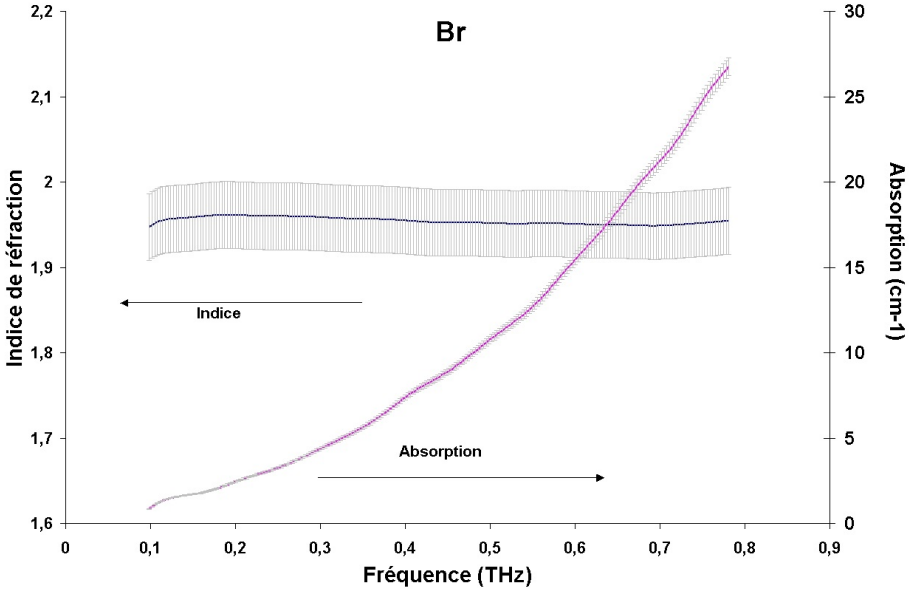

### D.0.22 RM, roche marquise



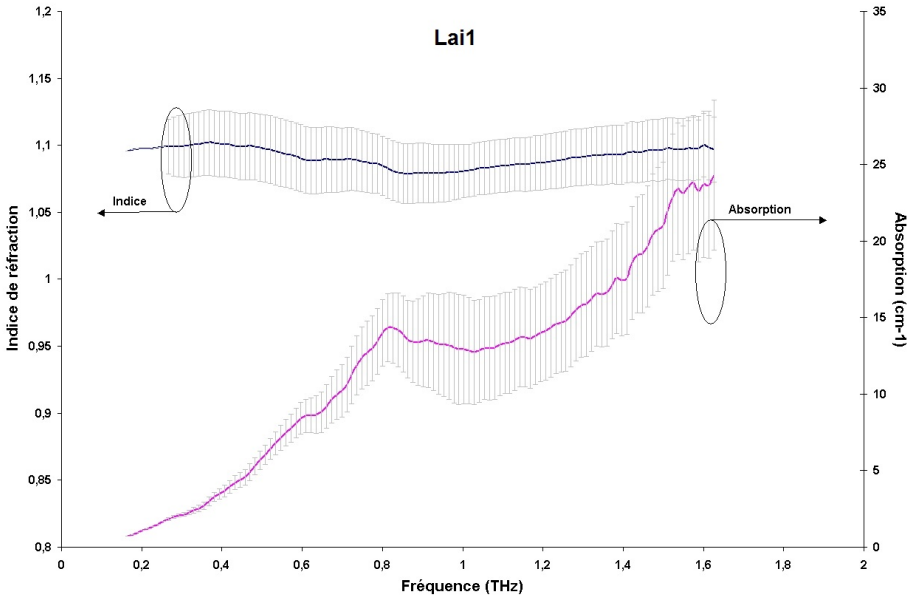
### D.0.23 Pl, Plâtre



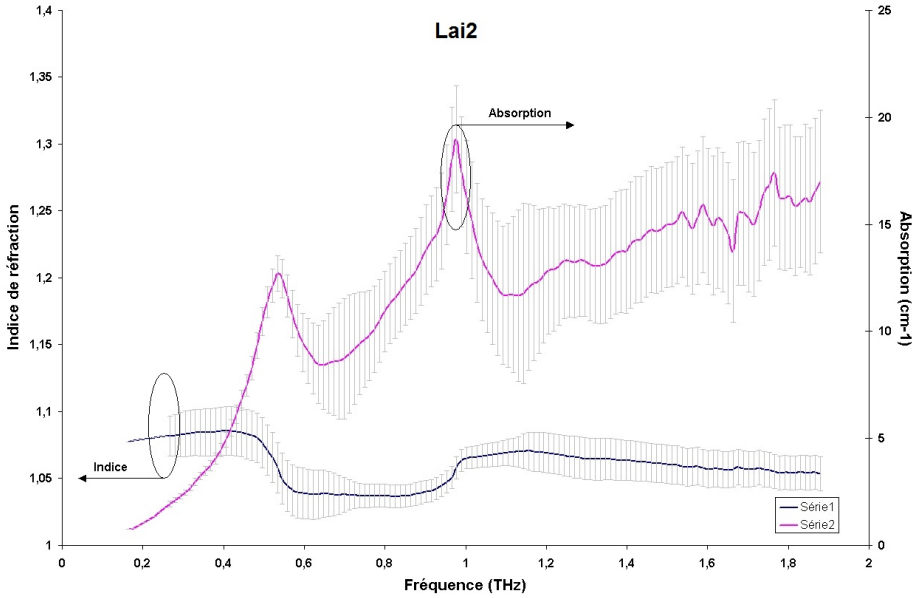

### D.0.24 Br, Brique



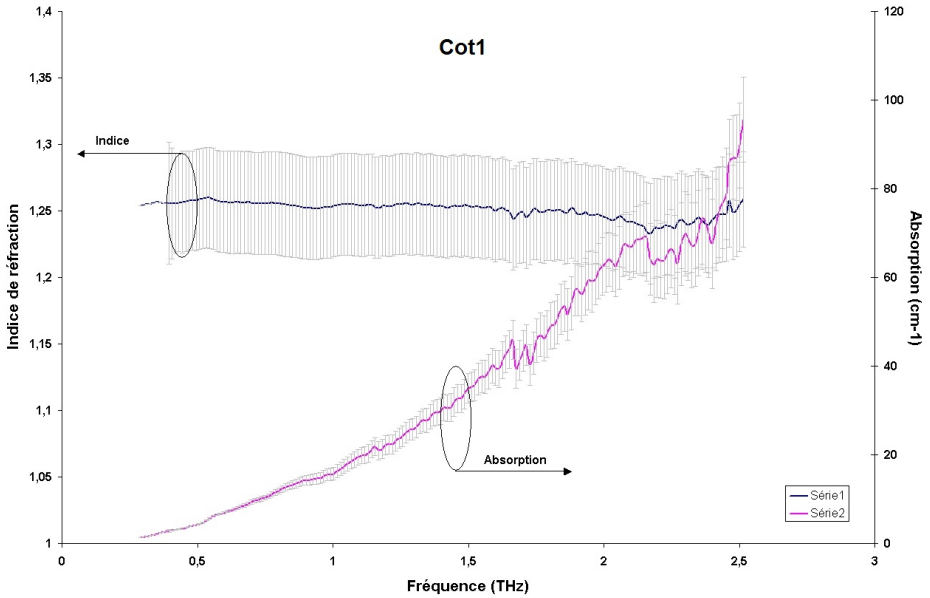
### D.0.25 Lai1, Laine



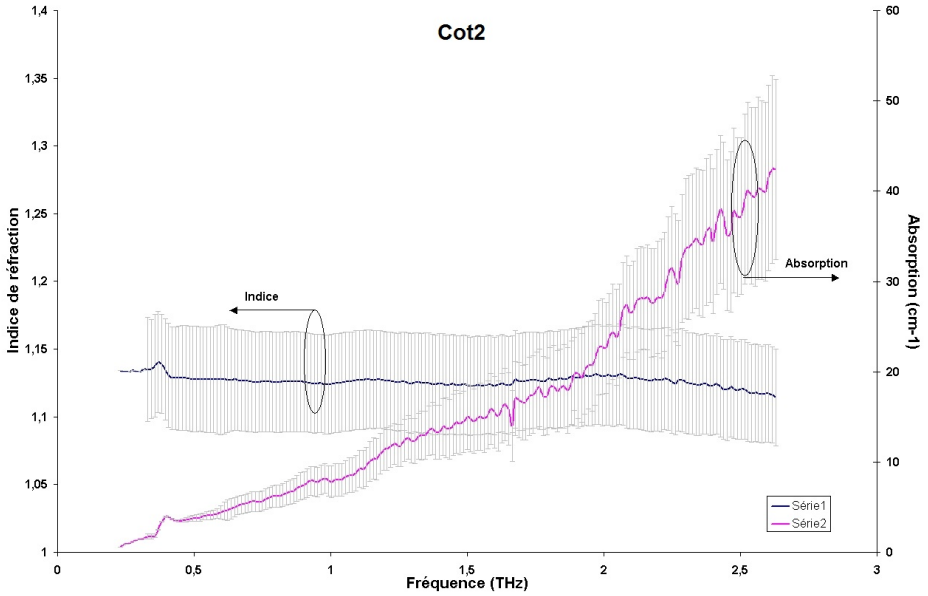

### D.0.26 Lai2, Laine



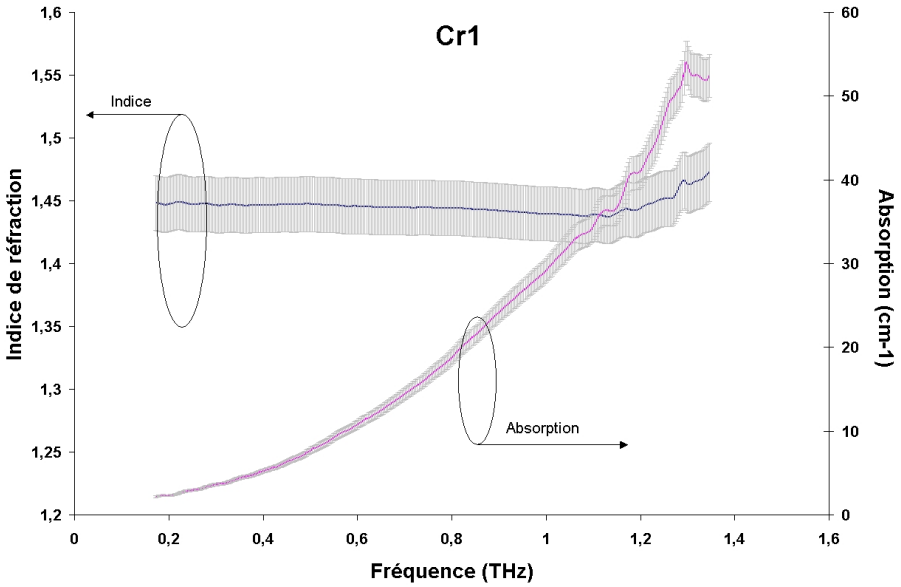
### D.0.27 Cot1, Coton



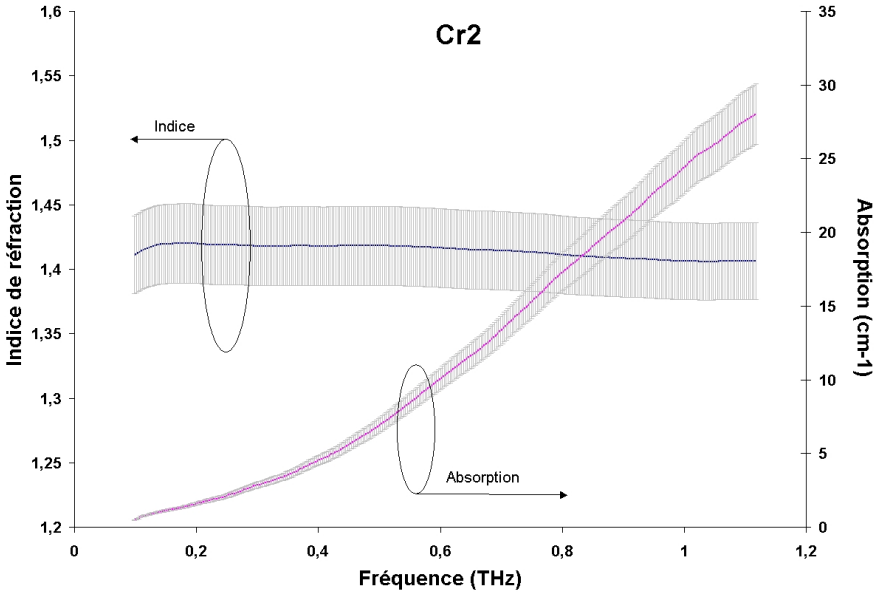

### D.0.28 Cot2, Coton



### D.0.29 Cr1, Cuir




### D.0.30 Cr2, Cuir



# Bibliographie


[1] J. C. Maxwell, "On physical lines of force," *Philosophical magazine*, March 1861.

[2] E. F. Nichols and J. D. Tear, "Short Electric Waves," *Physical Review*, vol. 21, no. 6, pp. 587–610, June 1923.

[3] G. L. Pearson and W. H. Brattain, "History of semiconductor research," *Proceeding of the IRE*, vol. 43, no. 12, pp. 1794–1806, December 1955.

[4] C. Jastrow, K. Munter, R. Piesiewicz, T. Kurner, M. Koch, and T. Kleine-Ostmann, "300 GHz transmission system," *IEEE Electronics Letters*, vol. 44, pp. 213–214, January 2008.

[5] M. C. Beard, W. T. Lotshaw, T. M. Korter, and E. J. Heilweil, "Comparative OHD-RIKES and THz-TDS Probes of Ultrafast Structural Dynamics in Molecular Liquids," *journal of physical chemistry A*, vol. 48, pp. 9348–9360, October 2004.

[6] C. D. Sudworth, A. J. Fitzgerald, E. Berry, N. N. Zinov'ev, S. Homer-Vanniasinkam, R. E. Miles, M. Chamberlain, and M. A. Smith, "The optical properties of human tissue at terahertz frequency," *SPIE 5143*, 2003.

[7] K. Yamamoto, M. Yamaguchi, F. Miyamaru, M. Tani, M. Hangyo, T. Ikeda, A. Matsushita, K. Koide, M. Tatsuno, and Y. Minami, "Noninvasive Inspection of C-4 Explosive in Mails by Terahertz Time-Domain Spectroscopy," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 3B, pp. 414–417, 2004.

[8] Y. Ogawat, K. Kawad, M. Yamashita, and H. Inoue, "Non-destructive inspection techniques for illicit drugs using terahertz imaging," *Optics Express*, vol. 11, no. 20, pp. 2549–2554, October 2003.

[9] J. A. *et al.*, *Aspects of explosives detection*, 1st ed., M. Marshall and J. C. Oxley, Eds. Defense Science ond Technology Laboratory, Fort Halstead, Sevenoaks, Kent TN147BP, United Kingdom : Elsevier, 2009.

[10] A. M. J. *et al.*, *Counterterrorist detection techniques of explosives*, 1st ed., J. Yinon, Ed. Radarweg 29, PO Box 211, 1000 AE Amsterdam, The Nethelands : Elsevier, 2007.

[11] A. Jimenez and M. Navas, "Chemiluminescence detection systems for the analysis of explosives," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 106, no. 1, pp. 1–8, January 2004.

[12] J. R. A. *et al.*, *Advances in Forensic Applications of Mass Spectrometry*, 3rd ed., J. Yinon, Ed. CRC Press, December 2003.

[13] B. M. R. *et al.*, *Energetic Materials Vol. 12*, 1st ed., P. Politzer and J. S. Murray, Eds. Elsevier, 2003.

[14] Y. A. Pirogov, "Passive millimeter-wave imaging," *Radiophysics and quantum electronics*, vol. 46, no. 8-9, pp. 594–603, 2003.

[15] N. Laman, S. S. Harsha, D. Grischkowsky, and J. S. Melinger, "7 GHz resolution wevaguide THz spectroscopy of explosives related solids showing new features," *Optics Express*, vol. 16, no. 6, pp. 4094–4105, March 2008.

[16] J. Zhang and D. Grischkowsky, "Waveguide terahertz time-domain spectroscopy of nanometer water layers," *Optics Letters*, vol. 29, no. 14, pp. 1617–1619, July 2004.

[17] J. S. Melinger, N. Laman, S. S. Harsha, and D. Grischkowsky, "Line narrowing of terahertz vibrational modes for organic thin polycrystalline films within a parallel plate waveguide," *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 25, pp. 251 110.1–251 110.3, 2006.

[18] J. S. Melinger, N. laman, and D. Grischkowsky, "The underlying terahertz vibrational spectrum of explosives solids," *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 1, pp. 011 102.1–011 102.3, July 2008.

[19] D. J. Cook, B. K. Decker, and M. G. Allen, "Quantitative THz spectroscopy of explosives materials," *OSA/OTST*, March 2005.

[20] W. R. Tribe, A. Newnham, P. F. Taday, and M. C. Kemp, "Hidden object detection : security applications of terahertz technology," *Proc. of SPIE*, 2004.

[21] W. H. Fan, A. Burnett, P. C. Upadhya, J. Cunningham, E. H. Linfield, and A. G. Davies, "Far-infrared spectroscopy characterization on explosives for security applications using broadband terahertz time-domain spectroscopy," *Applied spectroscopy*, vol. 61, pp. 638–643, April 2007.

[22] Y. Hu, P. Huang, L. Guo, X. Wang, and C. Zhang, "Terahertz spectroscopic investigations of explosives," *Physics letters A*, vol. 359, no. 6, pp. 728–732, 2006.

[23] H.-B. Liu, H. Zhong, Karpowicz, Y. Chen, and X.-C. Zhang, "Terahertz Spectroscopy and Imaging for Defense and Security Applications," *Proceeding of the IEEE*, vol. 95, no. 8, pp. 1514–1527, August 2007.

[24] D. S. Moore, "Recent advances in trace explosives detection instrumentation," *Sensing and Imaging an international journal*, vol. 8, no. 1, pp. 9–38, May 2007.

[25] F. Huang, B. Schulkin, H. Altan, J. F. Federici, and D. Gary, "Terahertz study of 1,3,5-trinitro-s-triazine by time-domain and fourier transform infrared spectroscopy," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 23, pp. 5535–5537, December 2004.

[26] H.-B. Liu, Y. Chen, and X.-Z. Zhang, "Detection and identification of explosive RDX by THz diffuse reflection spectroscopy," *Optics Express*, vol. 14, no. 1, pp. 415–423, January 2006.

[27] M. C. Kemp, P. F. Taday, B. E. Cole, J. A. Cluff, A. J. Fitzgerald, and W. R. Tribe, "Security applications of terahertz technology," *Proceeding of SPIE 5070*, 2003.

[28] M. R. Leahy-Hoppa, M. J. Fitch, X. Zheng, L. M. Hayden, and R. Osiander, "Wideband terahertz spectroscopy of explosives," *Chemical Physics Letters*, vol. 434, no. 4-6, pp. 227–230, February 2007.

[29] D. G. Allis, D. A. Prokhorova, and T. M. Korter, "Solid-state of the terahertz spectrum of the hight explosive HMX," *J. Phys. Chem. A*, vol. 110, pp. 1951–1959, 2006.

[30] D. G. Allis, J. A. Zeitler, P. F. Taday, and T. M. Korter, "Theoretical analysis of the solid-state terahertz spectrum of the hight explosive RDX," *Chemical Physics Letter*, vol. 463, pp. 84–89, 2008.

[31] D. G. Allis and T. M. Korter, "Theoretical analysis of the terahertz spectrum of the high explosive PETN," *ChemPhyChem*, vol. 7, no. 11, pp. 2398–2408, 2006.

[32] S. H. Vosko, L. Wilk, and M. Nusair, "Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin density calculations : a critical analysis," *Canadian Journal of physics*, vol. 59, pp. 1200–1211, 1980.

[33] A. D. Becke, "Density-functional exchange-energy approximation with correct asymptotic behavior," *Physical review A*, vol. 38, no. 6, pp. 3098–3100, September 1988.

[34] J. P. Perdew and W. Yue, "Accurate and simple density functional for the electronic exchange energy : Generalized gradient approximation," *Physical review B*, vol. 33, no. 12, pp. 8800–8802, June 1986.

[35] D. J. Paul, "Pictoring people : non-intrusive imaging," *State of the Science Review*, vol. Foresight Exploiting the Electromagnetic Spectrum, 2005.

[36] G. Mourou, C. V. Stancampiano, and D. Blumenthal, "Picosecond microwave pulse generation," *Applied physic letters*, vol. 38, p. 470, 1981.

[37] G. Mourou, C. V. Stancampiano, A. Antonetti, and A. Orszag, "Picosecond microwave pulses generated with a subpicosecond laser-driven semiconductor switch," *Applied Physics Letters*, vol. 39, no. 4, pp. 295–296, 1981.

[38] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, "Picosecond photoconducting hertzian dipoles," *Applied physics letters*, vol. 45, no. 3, pp. 284–286, 1984.

[39] E. R. Brown, F. W. Smith, and K. A. McIntosh, "Coherent millimeter-wave generation by heterodyne conversion in low-temperature-grown GaAs photoconductors," *Applied physic letters*, vol. 73, no. 3, pp. 1480–1484, February 1993.

[40] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis, "Photomixing up to 3.8 THz in low-temperature-grown GaAs," *Applied physic letters*, vol. 66, no. 285, January 1995.

[41] T. H. Maiman, "Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby," *Physical review letters*, vol. 4, pp. 564–566, June 1960.

[42] B. I. Greene, P. N. Saeta, D. R. Dykaar, and S. L. Chuang, "Far-Infrared Light Generation at Semiconductor Surfaces and Its Spectroscopic Applications," *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 28, pp. 2302–2312, October 1992.

[43] V. L. Malevich, R. Adomavicius, and A. Krotkus, "THz emission from semiconductor surfaces," *Comptes rendus de physique*, vol. 9, pp. 130–141, 2008.

[44] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, "Quantum Cascade Laser," *Sciences*, vol. 264, no. 5158, pp. 553–556, April 1994.

[45] M. Rochat, J. Faist, and M. Beck, "Far-infrared ($\lambda = 88$ $\mu$m) electroluminescence in a quantum cascade structure," *Applied physics letters*, vol. 73, no. 25, pp. 3724–3726, December 1998.

[46] R. Colombelli, F. Capasso, C. Gmachl, A. L. Hutchinson, D. L. Sivco, A. Tredicucci, M. C. Wanke, A. M. Sergent, and A. Y. Cho, "Far-infrared surface-plasmon quantum-cascade lasers at 21.5 $\mu$m and 24 $\mu$m wavelengths," *Applied physics letters*, vol. 78, no. 18, p. 2620, April 2001.

[47] G. Dodel, "On the history of far-infrared (FIR) gas lasers : Thirty-five years of research and application," *Infrared Physics & Technology*, vol. 40, p. 127, 1999.

[48] G. L. Carr, M. C. Martin, W. R. McKinney, K. Jordan, G. R. Neil, and G. P. Williams, "Hight-power terahertz radiation from relativistic electrons," *Nature*, vol. 420, pp. 153–156, November 2002.

[49] G. Gallerano and S. Biedron, "Overview of terahertz radiation sources," *Proceeding of the 2004 FEL*, p. 216, 2004.

[50] M. Dyakonov and M. Shur, "Shallow water analogy for a ballistic field effect transistor : new mechanism of plasma wave generation by DC current," *Physical Review letters*, vol. 71, no. 15, pp. 2465–2469, October 1993.

[51] W. Knap, J. Lusakowski, T. Parenty, S. Bollaert, A. Cappy, V. V. Popov, and M. S. Shur, "Terahertz emission by plasma waves in 60 nm gate high electron mobility transistors," *Applied physics Letters*, vol. 84, no. 13, pp. 2331–2333, March 2004.

[52] T. Onishi, T. Tanigawa, and S. Takigawa, "Hight power terahertz emission from a single gate AlGaN/GaN field effect transistor with periodic ohmic contacts for plasmon coupling," *Applied physics letterrs*, vol. 97, pp. 092 117.1–092 117.3, September 2010.

[53] A. Roitman, D. Berry, M. Hyttinen, and B. Steer, "Sub-millimeter waves from a compact, low voltage extended interaction klystron," *IRMMW*, September 2007.

[54] A. Maestrini, B. Thomas, H. Wang, C. Jung, J. Treuttel, Y. Jin, G. Chattopadhyay, I. Mehdi, and G. Beaudin, "Schottky diode-based terahertz frequency multipliers and mixers," *Comptes rendus de physique*, vol. 11, no. 7-8, pp. 480–495, August 2010.

[55] A. W. M. Lee, Q. Qin, S. Kumar, B. S. Williams, and Q. Hu, "Real-time terahertz imaging over a standoff distance (>25 meters)," *Applied Physics Letters*, vol. 89, pp. 141 125.1–141 125.3, August 2006.

[56] J. J. A. Baselmans, M. Hajenius, J. R. Gao, T. M. Klapwijk, P. A. J. de Korte, B. Voronov, and G. Gol'tsman, "Doubling of sensitivity and bandwidh in photon cooled hot electron bolometer mixers," *Applied Physics Letters*, vol. 84, no. 11, pp. 1958–1960, March 2004.

[57] A. D. Semenov, H.-W. Hübers, J. Schubert, G. N. Gol'tsman, A. I. Elantiev, and B. M. Gershenzon, "Design and performance of the lattice-cooled hot-electron terahertz mixer," *Journal of Applied Physics*, vol. 2000, no. 11, pp. 6758–6767, December 88.

[58] S. Komiyama, O. Astafiev, V. Antonov, T. Kutsuwa, and H. Hirai, "A single-photon detector in the far-infrared range," *Nature*, vol. 403, pp. 405–407, January 2000.

[59] A. L. Aseev, D. G. E. adn M. A. Dem'yanenko, I. V. Marchishin, B. A. Knyazev, and G. N. Kulipanov, "Terahertz imaging and radioscopy with 160 × 120 microbolometer 90 FPS camera," *Proceedings of FEL*, vol. 2007, 2007.

[60] W. Knap, Y. Deng, S. Rumyantsev, and M. S. Shur, "Resonant detection of subterahertz and terahertz radiation by plasma waves in submicron field-effect transistors," *Applied Physics Letters*, vol. 81, no. 24, pp. 4637–4639, December 2002.

[61] F. Teppe, D. Veksler, V. Y. Kachorovski, A. P. Dmitriev, X. Xie, X.-C. Zhang, S. Rumyantsev, W. Knap, and M. S. Shur, "Plasma wave resonant detection of femtosecond pulsed terahertz radiation by a nanometer field-effect transistor," *Applied Physics Letters*, vol. 87, pp. 022 102.1–022 102.3, July 2005.

[62] W. Knap, D. Coquillat, N. Dyakonova, F. Teppe, O. Klimento, H. Videlier, S. Nadar, J. Lusakowski, G. Valusis, F. Schuster, B. Giffars, T. Skotnicki, and C., "Plasma excitations in field effect transistors for terahertz detection and emission," *Comptes rendus de physique*, 2010.

[63] D. H. Auston and M. C. Nuss, "Electrooptic generation and detection of femtosecond electrical transients," *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 24, no. 2, pp. 184–197, February 1988.

[64] L. Duvillaret, F. Garet, and J.-L. Coutaz, "A reliable method for extraction of material parameters in terahertz time-domain spectroscopy," *IEEE journal of selected topics in quantum electronics*, vol. 2, no. 3, pp. 739–746, September 1996.

[65] C. Fattinger and D. Grischkowsky, "Terahertz beams," *Applied Physics Letters*, vol. 54, no. 6, pp. 490–492, February 1989.

[66] M. van Exter and D. Grichkowsky, "Characterisation of an optoelectronic terahertz beam system," *IEEE Microwave Theory and Tech.*, vol. 38, no. 11, pp. 1684–1691, November 1990.

[67] Y. C. Shen, P. C. Upadhya, E. H. Linfield, H. E. Beere, and A. G. Davies, "Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters," *Applied physics letters*, vol. 83, no. 15, pp. 3117–3119, October 2003.

[68] M. Tani, M. Herrmann, and K. Sakai, "Generation and detection of terahertz pulsed radiation with photoconductive antennas and its application to imaging," *Measurement science and technology*, vol. 13, pp. 1739–1745, October 2002.

[69] S. Kono, M. Tani, P. Gu, and K. Sakai, "Detection of up to 20 THz with a low-temperature-grown GaAs photoconductive antenna gated with 15 fs light pulses," *Applied Physics Letters*, vol. 77, no. 25, pp. 4104–4106, December 2000.

[70] M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, T. Itoh, K. Miyamoto, and H. Ito, "Ultrabroadband THz Field Detection beyond 170 THz with a Photoconductive Antenna," *CLEO*, vol. CTuX6, 2008.

[71] P. Y. Han and X.-C. Zhang, "Coherent, broadband midinfrared terahertz beam sensors," *Applied physics letters*, vol. 73, no. 21, pp. 3049–3051, 1998.

[72] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer, "Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz," *Applied physics letter*, vol. 76, no. 22, pp. 3191–3193, May 2000.

[73] Q. Wu and X.-C. Zhang, "Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses," *Applied physics letters*, vol. 71, no. 10, pp. 1285–1286, 1997.

[74] A. Leitenstorfer, R. Huber, F. Tauser, and A. Brodschelm, "Femtosecond experiments using single-cycle pulses at 30 THz : The buildup of screening in a photoexcited electron-hole plasma," *Tenth International Conference on Terahertz Electronics Proceedings*, pp. 36–40, 2002.

[75] H. Cao, T. F. Heinz, and A. Nahata, "Electro-optic detection of femtosecond electromagnetic pulses by use of poled polymers," *Optics letters*, vol. 27, no. 9, pp. 775–777, May 2002.

[76] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X.-C. Zhang, "Distortion of terahertz pulses in electro-optics sampling," *Journal of Optical Society of America B*, vol. 15, no. 6, pp. 1795–1801, June 1998.

[77] B. Pradarutti, G. Mattäus, S. Riehemann, G. Notni, S. Nolte, and A. Tünnermann, "Highly efficient terahertz electro-optic sampling by material optimization at 1060nm," *Optics communications*, vol. 281, pp. 5031–5035, 2008.

[78] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. Keiding, "Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas," *JOSA B*, vol. 13, no. 11, pp. 2424–2436, 1996.

[79] L. Duvillaret, F. Garet, J.-F. Roux, and J.-L. Coutaz, "Analytical modeling and optimization of terahertz time-domain spectroscopy experiments using photoswitches as antennas," *IEEE journal on selected topics in quantum electronics*, vol. 7, no. 4, pp. 615–623, August 2002.

[80] F. Miyamaru, Y. Saito, K. Yamamoto, T. Furuya, S. Nishizawa, and M. Tani, "Dependance of emission of terahertz radiation on geometrical parameters of dipole photoconductive antennas," *Applied Physics Letter*, vol. 96, no. 21, pp. 211 104.1–211 104.3, May 2010.

[81] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, *Fundamentals of photonics.* John Wiley & Sons, 1991.

[82] J.-L. Coutaz, "Optique non linéaire," 1988, Stockolm (cours d'optique non publié).

[83] M. L. Boas, *Mathematical methods in the physical sciences*, second edition ed. John Wiley & Sons, 1983.

[84] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander, "Terahertz optical rectification from (110) zinc-blende crystals," *Applied physics letters*, vol. 64, no. 11, pp. 1324–1326, March 1994.

[85] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann, "Generation of 1.5 $\mu$j single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal," *Optics Express*, vol. 15, no. 20, pp. 13 212–13 220, October 2007.

[86] G. Gallot and D. Grischkowsky, "Electro-optic detection of the terahertz radiation," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 16, no. 8, pp. 1204–1212, August 1999.

[87] 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," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 18, no. 3, p. 313, March 2001.

[88] 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," *J; Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, no. 11, pp. 2704–2715, 2002.

[89] M. Yi, K. Lee, I. Maeng, J.-H. Son, R. D. Averitt, and J. Ahn, "Tailoring the spectra of terahertz emission from CdTe and ZnTe electro-optic crystal," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 47, no. 1, pp. 202–204, 2008.

[90] J.-L. C. *et al.*, *Optoélectronique térahertz*, E. Sciences, Ed., 2008.

[91] L. Ward, *Handbook of optical constants of solids*, E. D. Palik, Ed., 1991, vol. II.

[92] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox, "Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling : Experiment and theory," *Applied physics letters*, vol. 74, no. 11, pp. 1516–1518, March 1999.

[93] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, "A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling," *Applied physics letter*, vol. 69, no. 16, pp. 2321–2323, October 1996.

[94] S. Vidal, "Etude téorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d'impulsions térahertz," Ph.D. dissertation, Ecole doctorale des sciences physiques et de l'ingénieur, December 2009.

[95] G. Gaborit, J.-L. Coutaz, and L. Duvillaret, "Vectorial electric field measurement using isotropic electro-optic crystals," *Appl. Physics Letters*, vol. 90, no. 24, pp. 1118–1121, June 2007.

[96] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox, "Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling : Experiment and theory," *Applied physics letters*, vol. 74, no. 11, pp. 1516–1518, 1999.

[97] C. Palmer, *Diffraction grating handbook*, 6th ed. Newport Corporation, 2005.

[98] M. Herrmann, C. Wiegand, J. Jonuscheit, and R. Beigang, "The influence of surface roughness on THz reflection measurements," *IRMMW*, 2009.

[99] M. Ortolani, J. S. Lee, U. Schade, and H.-W. Hübers, "Surface roughness effects on the terahertz reflectance of pure explosive materials," *Applied Physics Letters*, vol. 93, 2008.

[100] M. Reid and R. Fedosejevs, "Terahertz birefringence and attenuation properties of wood and paper," *Applied Optics*, vol. 45, no. 12, pp. 2766–2772, Avril 2006.

[101] H. Hoshina, Y. Sasaki, A. Hayashi, C. Otani, and K. Kawase, "Noninvasive mail inspection system with terahertz radiation," *Applied Spectroscopy*, vol. 63, no. 1, pp. 81–86, October 2009.

[102] D. L. Begley, R. W. Alexander, C. A. Ward, R. Miller, and R. J. Bell, "Propagation distances of surface electromagnetic waves in the far infrared," *Surface science*, vol. 81, no. 1, pp. 245–251, February 1979.

[103] L. S. Mukina, M. M. Nazarov, and A. P. Shkurinov, "Propagation of THz plasmon pulse on corrugated and flat metal surface," *Surface science*, vol. 600, pp. 4771–4776, August 2006.

[104] M. Gong, T.-I. Jeon, and D. Grischkowsky, "Thz surface wave collapse on coated metal surfaces," *Optics Express*, vol. 17088-17101, no. 19, pp. 17 088–17 101, September 2009.

[105] M. Nazarov, F. Garet, D. Armand, A. Shkurinov, and J.-L. Coutaz, "Surface plasmon THz waves on gratings," *Comptes rendus Physique*, vol. 9, no. 2, pp. 232–247, March 2008.

[106] D. L. Mills, "Interaction of surface polaritons with periodic surface structures ; rayleigh waves and grating," *Physical review B*, vol. 15, no. 6, pp. 3097–3118, March 1977.

[107] D. Armand, M. M. Nazarov, F. Garet, J.-L. Coutaz, and A. P. Shkurinov, "Terahertz plasmon propagation on flat and corrugated metal surface," *IRMMW*, September 2007.

[108] D. Maystre, *Electromagnetic theory of gratings*, R. Petit, Ed. Springer-Verlag, 1980, vol. Chapitre 3.

[109] J.-C. Weeber, Y. Lacroute, A. Dereux, E. Devaux, T. Ebbesen, C. Girard, M. U. González, and A.-L. Baudrion, "Near-field characterization of Bragg mirrors engraved in surface plasmon waveguides," *Physival Review B*, vol. 70, no. 23, pp. 235 406.1–235 406.12, December 2004.

[110] J. R. Krenn, H. Ditlbacher, G. Schider, A. Hohenau, A. Leitner, and F. R. Aussenegg, "Surface plasmon micro- and nano-optics," *Journal of Microscopy*, vol. 209, pp. 167–172, March 2003.

[111] G. Gaborit, D. Armand, J.-L. Coutaz, M. Nazarov, and A. Shkurinov, "Excitation and focusing of terahertz surface plasmons using a grating coupler with elliptically-curved grooves," *Applied physics letters*, vol. 9, no. 23, pp. 231 108.1–231 108.3, June 2009.

[112] G. Gaborit, D. Armand, M. Nazarov, A. Shkurinov, and J.-L. Coutaz, "Coupling and focusing THz surface plasmons on bulk aluminium by means of an elliptical-shaped grating," *EOS topical meeting on terahertz science and technology*, september-october 2008.

[113] W. Zhu, A. Agrawal, and A. Nahata, "Direct measurement of the gouy phase shift for surface plasmon-polaritons," *Optics Express*, vol. 15, no. 16, pp. 9995–10 001, August 2007.

[114] A. Nahata, W. Zhu, and A. Agrawal, "Planar plasmonic terahertz guided-wave devices," *Optics Express*, vol. 16, no. 9, pp. 6216–6226, April 2008.

[115] A. Agrawal, H. Cao, and A. Nahata, "Time-domain analysis of enhanced transmission through a single subwavelength aperture," *Optics Express*, vol. 13, no. 9, pp. 3535–3542, May 2005.

[116] T.-I. Jeon and D. Grischkowsky, "THz Zenneck surface wave (THz surface plasmon) propagation on a metal sheet," *Applied physics letters*, vol. 88, no. 6, pp. 061 113.1–061 113.3, 2006.

[117] A. P. Hibbins, E. Hendry, M. J. Lockyear, and J. R. Sambles, "Prism coupling to 'designer' surface plasmons," *Optics express*, vol. 16, no. 25, pp. 20 441–20 447, November 2008.

[118] J. F. Garcia-Vidal, L. Martin-Moreno, and J. B. Pendry, "Surfaces with holes in them : new plasmonic metamaterials," *Journal of optics A :Pure and applied optics*, vol. 7, pp. S97–S101, January 2005.

[119] D. Armand, Y. Todorov, F. Garet, J.-L. Coutaz, and C. Minot, "Evidence of THz surface plasmon-like wave propagation along 1D metallic grid," *IRMMW*, September 2007.

[120] D. Armand, Y. Todorov, F. Garet, C. Minot, and J.-L. Coutaz, "Study of the transmission of sub-wavelength metallic grids in the thz frequency range," *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics*, vol. 14, no. 2, pp. 513–520, March-April 2008.

[121] C. Minot, Y. Todorov, D. Armand, F. Garet, and J.-L. Coutaz, "Long-wavelength limit and Fano profiles of extraordinary transmission through metallic slit gratings in the THz range," *Physical Review B*, vol. 80, no. 15, pp. 153 410.1–153 410.4, October 2009.

[122] Y. Todorov and C. Minot, "A modal method for conical diffraction on rectangular slit mettalic grating in a multilayer structure," *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 24, no. 10, pp. 3100–3114, October 2007.

[123] J.-F. Roux, F. Aquistapace, F. Garet, L. Duvillaret, and J.-L. Coutaz, "Grating-assisted coupling of terahertz waves into a dielectric waveguide studied by terahertz time-domain spectroscopy," *Applied optics*, vol. 41, no. 30, pp. 6507–6513, October 2002.

[124] J. W. Lee, M. A. Seo, D. J. Park, S. C. Jeoung, Q. H. Park, C. Lienau, and D. S. Kim, "Terahertz transparency at Fabry-Perot resonances of periodic slit arrays in a metal plate : experiment and theory," *Optics Express*, vol. 14, no. 26, pp. 12 637–12 643, December 2006.

**Adresse :**

✉ Université de Savoie,
Laboratoire d'Hyperfréquences et de Caractérisation (LAHC),
UFR SFA
Bâtiment Chablais
73376 Le Bourget du Lac cedex
FRANCE

☎ +33 (0) 479 75 87 46
+33 (0) 479 75 87 42

damien.armand@univ-savoie.fr

**Application de la spectroscopie térahertz à la détection de substances sensibles**

**Résumé :**

Pour répondre aux questions que pose la faisabilité d'un dispositif de détection d'explosifs à l'aide de la technologie de spectroscopie térahertz, cette thèse a exploré trois axes. Le premier a consisté à établir une base de données des signatures spectrales (indice et absorption) d'une large gamme de matériaux d'intérêt pour ce type d'applications, à partir des données expérimentales que nous avons mesurées par spectroscopie dans le domaine temporel. Nous avons identifié les matériaux montrant une signature spectrale significative et nous avons aussi étudié l'effet des matériaux de dissimulation.

Dans la seconde partie de ce travail, nous avons conçu et construit un banc de spectroscopie ultra-large bande destiné à une meilleure identification spectrale des substances. Nous avons identifié les limites techniques de ce type de banc et donné les pistes pour atteindre les performances désirées.

Ensuite, nous avons développé et validé un banc de spectroscopie en réflexion, de type goniométrique, afin de détecter des signaux térahertz diffusés par des matériaux hétérogènes.

Finalement, nous avons étudié les plasmons de surface dans le domaine térahertz, en vue de la détection de très faibles quantités de matière.

**Mots clés :** spectroscopie térahertz, infrarouge lointain, plasmon de surface, optique impulsionnelle, électro-optique

---

**Application of terahertz spectroscopy for the detection of prohibited substances**

**Abstract :**

This PhD work was performed in view of using terahertz electromagnetic signals for the detection and identification of dangerous and prohibited substances. In a first stage, a database of the terahertz properties (namely refractive index and absorption) of these substances was created from the measurements we performed using terahertz time-domain spectroscopy. Then a large bandwidth terahertz time-domain set up has been built, together with a goniometric-type set up that allows us recording signals scattered by rough or heterogeneous samples. Finally, we studied the excitation and propagation of surface plasmons in the terahertz domain, which may be used for the detection of small amounts of matter.

**Keywords :** terahertz spectroscopy, far infrared, surface plasmon, ultrafast optics, electro-optics