



**HAL**  
open science

# Développement de sources térahertz intenses et applications en optique non-linéaire

Marion Cornet

► **To cite this version:**

Marion Cornet. Développement de sources térahertz intenses et applications en optique non-linéaire. Optique [physics.optics]. Université de Bordeaux, 2015. Français. NNT: 2015BORD0194 . tel-01257850

**HAL Id: tel-01257850**

**<https://theses.hal.science/tel-01257850>**

Submitted on 18 Jan 2016

**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.

THÈSE PRÉSENTÉE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR DE**

**L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR  
SPÉCIALITÉ : LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

par Marion CORNET

**DÉVELOPPEMENT DE SOURCES  
TÉRAHERTZ INTENSES ET APPLICATIONS  
EN OPTIQUE NON-LINÉAIRE**

Sous la direction de : M. Emmanuel ABRAHAM et M. Jérôme DEGERT

Soutenue le 15 Octobre 2015

Membres du jury:

M.	Jean-Louis	COUTAZ	Université Savoie - Mont Blanc, Rapporteur
M.	Manuel	JOFFRE	Laboratoire d'Optique et Biosciences , Rapporteur
M.	Jean	OBERLÉ	Université de Bordeaux, Examinateur
M.	Takeshi	YASUI	University of Tokushima, Examinateur
M.	Philippe	ADAM	Direction Générale de l'armement, Invité
M.	Emmanuel	ABRAHAM	Université de Bordeaux, Directeur de thèse
M.	Jérôme	DEGERT	Université de Bordeaux, Co-directeur de thèse







# Remerciements

Les remerciements sont sans aucun doute la partie la plus amusante à rédiger dans une thèse, mais aussi délicate, car il s'agit de n'oublier personne... En contrepartie, c'est aussi celle qui est la plus lue... surtout par les thésards qui cherchent comment rédiger leurs remerciements... ou bien qui procrastinent au lieu de travailler.

En premier lieu, je tiens à remercier tous les membres de mon jury de thèse, MM. Manuel Joffre et Jean-Louis Coutaz pour avoir accepté de rapporter ce manuscrit, M. Takeshi Yasui pour l'avoir examiné, et M. Jean Oberlé pour avoir présidé le jury. Merci à eux d'avoir jugé ce travail de thèse avec beaucoup de sérieux et d'intérêt. Je remercie également M. Philippe Adam pour sa présence en tant que membre invité. J'en profite pour remercier la Région Aquitaine et la Direction Générale de l'Armement, qui ont financé ma bourse de thèse et m'ont permis notamment de communiquer mes résultats sur presque tous les continents.

Je remercie mon directeur de thèse, Emmanuel Abraham, pour son enthousiasme et son dynamisme, ainsi que pour les quelques morceaux de jazz joués en sa compagnie : encore quelques progrès à faire pour respecter la structure de « Petite Fleur » et ce sera bon !

Je remercie également notre patron à tous, Eric Freysz, pour son incroyable disponibilité, et ce, à n'importe quelle heure de la journée, ainsi que pour sa capacité à tenir des conversations entières avec un accent indien. Vous avez toujours répondu présent pour chercher (et trouver !) une explication à tous les résultats bizarres que je sortais pendant les manips, avec un indéfectible enthousiasme. Merci pour tout (à propos, si vous les cherchez, vos clés de voiture sont sûrement sur mon bureau, à côté de vos lunettes).

Je remercie mon co-directeur de thèse, Jérôme Degert, pour tout ce qu'il m'a apporté pendant ce projet de trois ans. La liste est longue : Jérôme, merci pour ta bonne humeur à toute épreuve (ou presque, je me rappelle t'avoir vu entrer dans une rage folle contre les photodiodes balancées et leur jeter un tournevis à la tête), ta cool attitude face à la serveuse du banquet de IRMMW-THz Hong-Kong et aux morceaux de gras et de peau de cochon grillé qu'elle nous forçait à terminer. Merci pour tous les moments où j'étais déprimée devant mes résultats et où tu m'as remontée le moral, merci aussi de nous avoir rendu notre agrafeuse après que j'aie soupçonné tout le premier étage de vol... Merci de m'avoir expliqué toujours deux ou trois fois de suite comment on arrivait à tel calcul, comment justifier telle étude... et d'avoir supporté que je revienne encore une fois te réexpliquer ce que tu venais de m'expliquer, pour m'assurer que j'avais bien compris. Merci pour les lignes de calcul remises au propre, pour les simulations et enfin, bien sûr, pour l'aide en salle de manips. Un énorme merci enfin pour toutes les relectures, et surtout, toutes les corrections très détaillées sur chacune des pages de mon manuscrit. Tu vas maintenant enfin pouvoir faire pousser

---

ta barbe et tes cheveux sans que je ne te fasse de remarque à chaque fois que ta barbe est un peu trop longue ou que tu es allé chez le coiffeur et que c'est devenu trop court...

Je tiens maintenant à remercier l'ensemble des personnels techniques du laboratoire, sans lesquels cette thèse n'aurait pas pu avoir lieu. Je remercie l'ensemble de la direction pour leur accueil, et pour m'avoir soutenu dans la mise en place du LOMA's band. Je remercie tout le service administratif du laboratoire, Annie, Isabelle, Josiane, et en particulier Laurette et Suzanne pour leur gentillesse, leur disponibilité, et, toujours, leur capacité à nous préparer des ordres de mission aux petits oignons. Je remercie également Sophie, pour son soutien, pour m'avoir offert une conférence / un séjour au ski, et pour avoir partagé quelques cafés avec moi. Je remercie également le service informatique, en particulier Hassan, le service électronique, en particulier William et Sébastien, et le service mécanique, en particulier Sarah et Eddy, qui nous dépannent tous les jours de la meilleure manière qui soit. Je remercie enfin Marc pour, notamment, les FROG réalisés à la fin de ma thèse. Je remercie également l'ensemble des personnels du ménage, qui nous permettent de travailler dans de bonnes conditions au jour le jour. Je remercie enfin Bernadette pour sa gentillesse permanente, pour avoir déniché quelques vieux articles difficilement compréhensibles, et, aussi, pour avoir accueilli les répétitions de jazz du LOMA's band dans la bibliothèque de l'IPF pendant tout un mois, après une inondation mémorable...

Parmi les chercheurs, je souhaite tout particulièrement remercier Christine Grauby : merci d'avoir accepté de me prendre sous ton aile pour mes premiers enseignements de TP, et d'avoir été présente, tout simplement. Votre voisinage, à toi et à Jérôme, a rendu ma thèse bien plus amusante ! Je souhaite également remercier Etienne Brasselet, toujours très chaleureux et de bon conseil. Je remercie également Ulysse Delabre pour nos conversations dans le couloir entre deux bureaux, et Hamid Kellay, pour THE question dans le tram, à laquelle j'ai mis une demi-heure à répondre quand j'étais au tout début de ma première année. Je dois avouer que je n'ai compris qu'au bout de 6 mois de thèse que c'était vous, « le » Hamid...

Après les personnels permanents, passons aux meilleurs, les non-permanents ! Si je me concentre d'abord sur le premier étage... Je tiens tout d'abord à remercier mon colocataire de bureau, Minh, dont l'arrivée a été providentielle. Je suis fier de t'avoir fait découvrir Ciel Mon Doctorat, et j'espère qu'en mon absence, tu continueras régulièrement à procrastiner sur ce site ! Je te remercie également d'avoir été présent pendant les moments difficiles que nous avons vécu tous les deux au même moment. Je suis certaine que tu réussiras à obtenir un super poste dans une chouette entreprise, comme tu le souhaites. Sinon, je ferai mon possible pour te dégouter une place de secrétaire ! Je tiens aussi à remercier Guillaume pour les francs moments de rigolade lorsque tu nous as rejoins au bureau. Merci de m'avoir fait découvrir Bonjour Madame... et d'avoir ramené mon vélo jusqu'à Compiègne ! Je remercie également les autres doctorants et post-docs du premier : Marion pour la magnifique photo du plasma, ainsi que pour tous les moments très sympathiques que nous avons passé ensemble depuis son arrivée au LOMA. Je pense notamment à une soirée mémorable pour fêter mon CDI, ainsi qu'à notre ballade à la mer ! Merci aussi de m'avoir soutenue dans les moments les plus difficiles. Rim, merci d'avoir accepté de garder un tas de cartons deux fois plus grand que toi dans ton appartement (donc pas si grand, finalement...) et aussi d'être venue très régulièrement trotter dans mon bureau pour discuter des dernières rumeurs, râler, farfouiller dans les tiroirs et envier le porte-échantillons de Minh. Tu as partagé cette dernière responsabilité avec Antoine, qui, lui, envoyait son écran plat Dell ! La fine équipe ! Antoine, merci de m'avoir fait rêver avec ton bermuda et ton pyjama Petit Navire. N'arrête jamais de claquer des doigts sur le trajet des toilettes ! Alex, merci d'avoir été présent tout au long de ces trois années, que ce soit

---

au labo, à la piscine, en ville, ou encore à la patinoire... merci pour les coups de main en Matlab, les soirées blinis et tarama, merci de m'avoir prêté ton chat et ta voiture... Et, quoi que tu dises, l'optique et le THz, c'est ça, la vraie classe!!! Pour finir sur le premier étage, je tiens à remercier Nicolas-le-beau-gosse-contrebassiste, pour son support à l'organisation du Loma's band et pour m'avoir écoutée râler contre le non-respect du planning, ainsi que Tini, pour le jazz, l'accueil à Okinawa, les crevettes au lait de coco, et surtout, surtout, les chansons tahitiennes à l'eau de rose que j'aime tant...

Si l'on passe aux autres étages, je tiens d'abord à remercier les cocos de mon équipe, Amine, Antonio et Gabriel, dont l'activité informatique particulièrement développée m'a permis de découvrir le jeu de simulation de laboratoire du CERN, et d'y devenir complètement accro le temps d'une journée ou deux... Amine, je te souhaite bon courage pour terminer ton manuscrit, tu y es presque! Topper dans ta main en 2D me manquera. Antonio, merci pour tes bavardages, les discussions scientifiques, et les frayeurs à vélo, ne passe jamais ton permis voiture!!! Gabriel, le petit thésard, un grand merci pour les nombreux cafés de la dernière semaine de rédaction... je te souhaite bon courage pour la fin de la thèse.

Je souhaite adresser une mention spéciale à ma chère Olga, dont l'accent, le sourire et la joie de vivre m'ont apporté énormément durant ces trois années de thèse. Merci de m'avoir autant soutenu sur la fin de la thèse, et d'avoir été ma suppléante organisationnelle du Loma. Nous formions une équipe de choc!

Parmi les post-docs, je tiens à remercier les anciens : Matthias, Vadim of course, Agnès... ainsi que les moins anciens : Sergey, merci pour ta gentillesse et pour m'avoir ramenée régulièrement dans ta berline... je te fais signe dès que je viens à Moscou! Artur, merci pour ton sourire immuable durant les deux dernières années de thèse : j'ai remarqué que, depuis qu'on se connaît un peu mieux, tu travailles moins souvent le jeudi après-midi autour de 16h!!! Ce n'était pas le cas lors de ton arrivée et j'ose espérer que c'est un peu grâce à moi!

Je pense enfin à tous les autres, Charles, Gianluca, Carlene, Davit, Musegh, Bryan, Hernando, Asma, Ibtissem,... pour avoir participé aux pique-niques du laboratoire et m'avoir donné, chacun, un petit avant-goût de vos pays respectifs...

Si je sors maintenant de l'environnement du LOMA, je souhaite remercier tous les autres doctorants ou docteurs bordelais que j'ai rencontré durant cette thèse, Bin, William, Chiara, Gildas... pour tous vos témoignages d'amitié et de sympathie, merci. Je pense aussi aux THz-boys, JB, Ivo, Matthieu... et aux THz-girls, Joyce, Tiphaine, Marianne, Sarah... que j'ai rencontré en conférence, ou bien sur le campus : Jean-Baptiste, merci de m'avoir accompagnée aux concerts de l'auditorium, et pour tous nos moments de franche rigolade, de danse et de voyage... je ne suis pas sûre de t'avoir donné le bon exemple lors de la dernière conférence à Hong Kong... Joyce, j'espère que nous aurons l'occasion de retourner draguer des beaux physiciens dans des bars étrangers, comme nous l'avons fait aux USA! Merci pour ta bonne humeur et tout ton soutien, pour le délicieux houmous maison et tous les témoignages d'amitié que tu m'as donnés. Marianne, merci pour ton enthousiasme sans fin, tes délires et ton sens de la mode, je ne serais plus jamais la même après avoir partagé avec toi une chambre d'hôtel avec vue sur la salle de bain... Tu gardes avec moi un pied-à-terre à Compi-city! Je pense enfin à Sarah : merci d'avoir fait nos courses de Beaufort et d'en avoir ramené tellement que c'en était presque la honte... merci également pour ton accueil très chaleureux à Antony entre mes deux jobs, ainsi que pour le don de la bouilloire



---

et le prêt de la serviette ! Je vous souhaite à tous une très bonne fin de thèse, même si, Marianne, tu n'avances quand même pas très vite après trois années de première année...

Je souhaite également remercier mes chers collègues de l'IUT, pour m'avoir permis d'y enseigner, et avoir partagé leur expérience avec moi. Je pense en particulier à Nicolas, Luc, Benjamin, Bruno, qui ont été supers, et avec lesquels j'ai pu partager toutes les étapes de mon embauche chez St Gobain.

Je tiens ensuite à remercier mes deux amis végétariens, Sarah et Xavier, pour leur accompagnement tout au long de ces trois années, et leur soutien indéfectible. Xavier, j'attends avec impatience que tu rentres en France et que tu te rachètes une moto pour pouvoir refaire un tour avec toi... Sarah, je me rappellerais toujours de notre organisation de folie de tous les événements de l'école doctorale... merci à vous deux pour toutes les bons moments en votre compagnie. Je tiens également à remercier Julien, le seul mécanicien appartenant au CENBG. Julien, merci d'avoir partagé mes difficiles premiers mois de thèse, d'avoir supporté la couleur de mes cheveux et mes cris aigus à la gloire de Mika, d'avoir récupéré mon courrier, ou encore d'avoir dormi sur le canapé et de m'avoir prêté ton lit pendant ma semaine de soutenance. Malgré cela, je t'interdis de te recouper le doigt en ma présence ou de jeter encore de l'eau de javel dans ton évier, juste après avoir nettoyé ce dernier au destop... Je souhaite également remercier le minuscule Vincent, pour les très bons moments passés avec toi lorsque tu étais ENFIN disponible. Je te souhaite tout le meilleur pour ta nouvelle vie au Texas !

Je veux remercier Pierric, pour m'avoir invitée à venir jouer dans l'atelier de jazz de l'université, et m'avoir ainsi ouvert des perspectives musicales insoupçonnées. Je pense aussi à Tiphaine et à sa citrouille bleue, et je lui souhaite beaucoup de succès. Je joins à ces remerciements Gilles, notre flûtiste, clarinettiste, contrebassiste, pianiste, chef d'orchestre, impresario et j'en oublie... J'espère que nous aurons l'occasion de rejouer ensemble un de ces jours. Je pense enfin à Lycia, dont l'enthousiasme à toute épreuve et les multiples talents de musicienne (même si pour la flûte, c'est pas encore ça), photographe, pilote de course et autres ont largement contribué à maintenir mon moral durant la dernière année de la thèse...

Je tiens également à remercier Yulia, Claire et Agathe, les copines du club photo ! C'était vraiment sympa notre petit fraisier... Claire, bon courage pour ta thèse, je suis sûre que tu vas nous sortir deux trois petits algorithmes bien sympathiques. Agathe, quand est-ce qu'on se refait un festival??? Yulichka, merci pour ton accompagnement tout au long de ma première année, pour tes merveilleuses photos, pour ton sourire et pour toute ton amitié. J'espère que tu reviendras très bientôt partager un croissant dans un café français avec moi.

Parmi les personnes qui m'ont tout particulièrement entourée pendant ces trois années, je pense d'abord à Amelle et Damien. Ce sont des maîtres de stage comme vous qu'il faudrait à tous les stagiaires du monde : prévenants, enthousiastes, chaleureux et d'une patience hors-pair. Merci de m'avoir fait découvrir l'optique non-linéaire, ses joies comme ses difficultés. Vous n'avez jamais lésiné sur les explications, quitte à perdre un temps fou à m'expliquer encore et encore un nouveau concept, et tout ça avec une bonne humeur à toute épreuve. Merci pour toute la réflexion, tous les conseils que vous avez pu me donner, et pour m'avoir aidé à choisir ma voie après le master. Merci également pour votre soutien durant la thèse. Vous avez toujours été une oreille attentive. Amelle, merci d'avoir assisté à ma soutenance de thèse, c'était un réconfort de t'avoir toi quand je ne pouvais pas avoir mon papa.

---

Je pense également à Patricia Martin, dont la rencontre a été une ouverture formidable sur l'après-thèse, et qui m'a permis, entre autres, de décrocher un premier emploi avant même d'avoir terminé ma thèse. Patricia, un immense merci pour votre accompagnement personnalisé et la gentillesse avec laquelle vous avez su m'écouter, me conseiller, me corriger et me guider. Vous avez su apporter de nombreuses réponses à mes innombrables interrogations, et je vous en suis vraiment très reconnaissante. C'est notamment grâce à votre aide précieuse que je suis aujourd'hui embauchée chez St Gobain. A ce sujet, je tiens à remercier mes supérieurs du CRDC, en particulier Julius et Myriam, pour m'avoir permis de terminer ma thèse dans les meilleures conditions.

Last but not least, je remercie ma soeurette, Caicaire, ainsi que Cyrilou, qui ont été et restent si présents malgré la distance et les difficultés de la vie.

Pour finir, je remercie les deux personnes sans lesquelles je n'aurais jamais réussi à aller aussi loin. Papa, même si tu ne liras jamais ces lignes et que tu ne me le montras pas, je sais que tu étais fier de moi. Maman, merci... merci à vous deux.



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Génération et détection d'un rayonnement THz intense</b>	<b>9</b>
1.1 La source amplifiée Titane:Saphir de la plateforme COLA . . . . .	14
1.2 Redressement optique et génération THz intense : la technique de l'inclinaison du front de l'impulsion . . . . .	15
1.2.1 Le cristal de LiNbO <sub>3</sub> . . . . .	16
1.2.2 Quelques considérations théoriques . . . . .	18
1.2.3 Mise en œuvre expérimentale . . . . .	22
1.3 La « source plasma » : génération THz intense par superposition et focalisation de l'onde de pompe et de son second harmonique . . . . .	28
1.3.1 Quelques considérations théoriques . . . . .	28
1.3.2 Dispositif expérimental de génération de rayonnement THz intense par plasma	33
1.4 Détection d'un champ THz par ellipsométrie . . . . .	39
1.4.1 État de l'art de la détection d'une impulsion THz . . . . .	39
1.4.2 Action d'un champ électrique sur un milieu matériel . . . . .	41
1.4.3 Cristaux électro-optiques : le choix du GaP et du ZnTe . . . . .	43
1.4.4 Description mathématique de l'effet Pockels induit par un champ THz dans un cristal de structure zinc-blende . . . . .	48
1.4.5 Détection de la biréfringence induite par l'effet Pockels par ellipsométrie .	50
<b>2 Non-linéarités du second ordre dans le domaine THz : effet Pockels</b>	<b>57</b>
2.1 Analyse mathématique complète de l'effet Pockels . . . . .	59
2.1.1 Équation de propagation non-linéaire pour l'effet Pockels . . . . .	59
2.1.2 Polarisation non-linéaire pour l'effet Pockels . . . . .	60
2.1.3 Résolution du système d'équations couplées . . . . .	63
2.2 Nouvelle détection intensimétrique d'un champ THz : une alternative à la détection électro-optique conventionnelle . . . . .	65
2.2.1 Etude préliminaire en configuration homodyne . . . . .	66
2.2.2 Détection hétérodyne . . . . .	69
2.3 Évolution du spectre d'une impulsion optique générée par effet Pockels : application à la mesure de la dérive de fréquence de cette dernière . . . . .	74
2.3.1 Modèle analytique de l'évolution du spectre de l'impulsion optique générée par effet Pockels . . . . .	78
2.3.2 Dispositif expérimental . . . . .	83
2.3.3 Résultats expérimentaux . . . . .	85
2.3.4 Limitations du modèle et perspectives . . . . .	99

<b>3</b>	<b>Non-linéarités du troisième ordre effectives par effets de cascade : génération de second harmonique induite par effet Pockels</b>	<b>103</b>
3.1	Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : dispositif expérimental et premiers résultats . . . . .	106
3.1.1	Dispositif expérimental . . . . .	106
3.1.2	Résultats préliminaires . . . . .	107
3.2	Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : résultats complémentaires . . . . .	109
3.2.1	Étude en intensité . . . . .	109
3.2.2	Dépendance angulaire . . . . .	111
3.2.3	Bilan . . . . .	112
3.3	Expression théorique du signal de second harmonique induit par effet Pockels (PISH)	114
3.3.1	Effet Pockels : modification des indices de réfraction du cristal . . . . .	114
3.3.2	Expression du champ sonde après modification par l'effet Pockels . . . . .	116
3.3.3	Expression de la polarisation non-linéaire du second ordre . . . . .	116
3.3.4	Equation d'onde non-linéaire . . . . .	117
3.4	Expression théorique du signal de second harmonique induit par un champ THz (TFISH) . . . . .	121
3.4.1	Susceptibilité non-linéaire du troisième ordre . . . . .	121
3.4.2	Expression de la polarisation non-linéaire du troisième ordre . . . . .	121
3.4.3	Equation d'onde non-linéaire . . . . .	122
3.5	Application de la génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) à la détection d'un champ THz intense . . . . .	124
<b>4</b>	<b>Non-linéarités du troisième ordre : effet Kerr THz</b>	<b>131</b>
4.1	Choix des cristaux zinc-blende . . . . .	132
4.1.1	Effet Kerr THz : état de l'art . . . . .	133
4.1.2	Procédés non-linéaires du troisième ordre, induits par un champ THz dans des cristaux de type zinc-blende. . . . .	135
4.2	Description du dispositif expérimental . . . . .	137
4.3	Modèle théorique de l'effet Kerr THz dans un cristal zinc-blende . . . . .	139
4.3.1	Expression des champs électriques à l'entrée du cristal . . . . .	139
4.3.2	Expression de la polarisation associée à l'effet Kerr THz . . . . .	141
4.3.3	Établissement de l'équation de propagation non-linéaire de la sonde . . . . .	144
4.3.4	Résolution de l'équation de propagation non-linéaire : expression théorique du déphasage induit par effet Kerr THz . . . . .	145
4.3.5	Détection du déphasage induit par effet Kerr THz . . . . .	146
4.4	Résultats expérimentaux . . . . .	149
4.4.1	Étude de la dépendance en intensité . . . . .	152
4.4.2	Étude de la dépendance angulaire . . . . .	153
4.4.3	Dynamique temporelle de l'effet Kerr THz : simulation et expérience . . . . .	155
	<b>Conclusion générale</b>	<b>161</b>
<b>A</b>	<b>Établissement de l'équation de propagation non-linéaire du champ sonde</b>	<b>167</b>
A.1	Equation de propagation non-linéaire . . . . .	167
A.2	Approximation de l'enveloppe lentement variable . . . . .	168
A.3	Dispersion du vecteur d'onde . . . . .	169

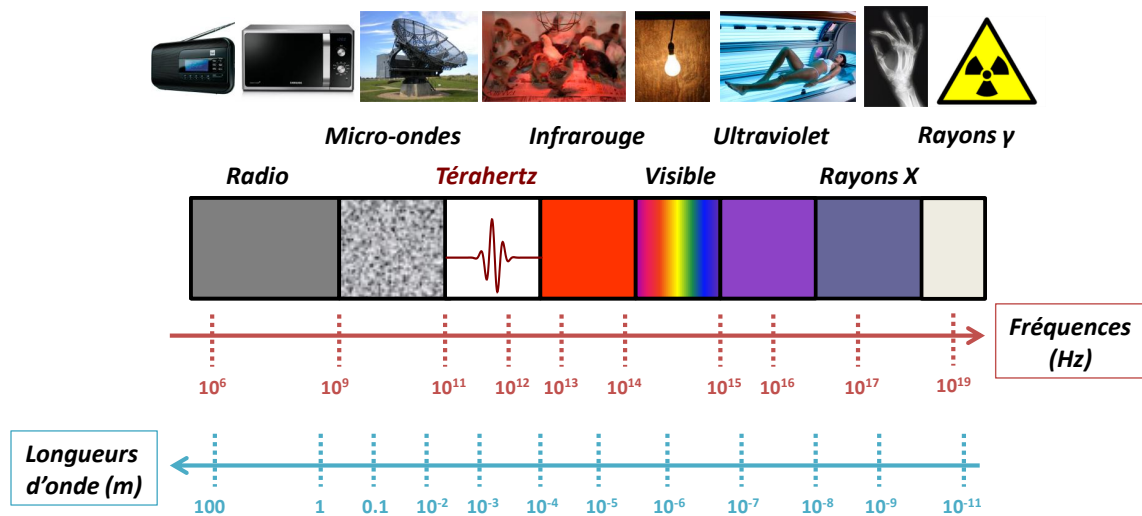
---

## Bibliographie



# Introduction générale

La gamme des fréquences térahertz (THz) suscite actuellement un grand intérêt, du fait des nombreuses opportunités qu'elle tend à offrir dans divers domaines d'applications. Au sein du spectre électro-magnétique, présenté sur la figure 1, les ondes THz s'étendent entre 0.1 et 30 THz ( $1 \text{ THz} = 1 \times 10^{12} \text{ Hz}$ ), soit pour des longueurs d'ondes situées entre  $10 \mu\text{m}$  et  $3 \text{ mm}$  et des énergies entre  $0.4 \text{ meV}$  et  $0.12 \text{ eV}$ , et se trouvent à l'interface des domaines optique et radiofréquence. De ce fait, elles concilient diverses propriétés qui les rendent très prometteuses pour de nombreuses applications, que ce soit sur le terrain des télécommunications, de la sécurité et de la défense, ou encore de l'analyse, de l'observation et du contrôle non destructif de nombreux matériaux.



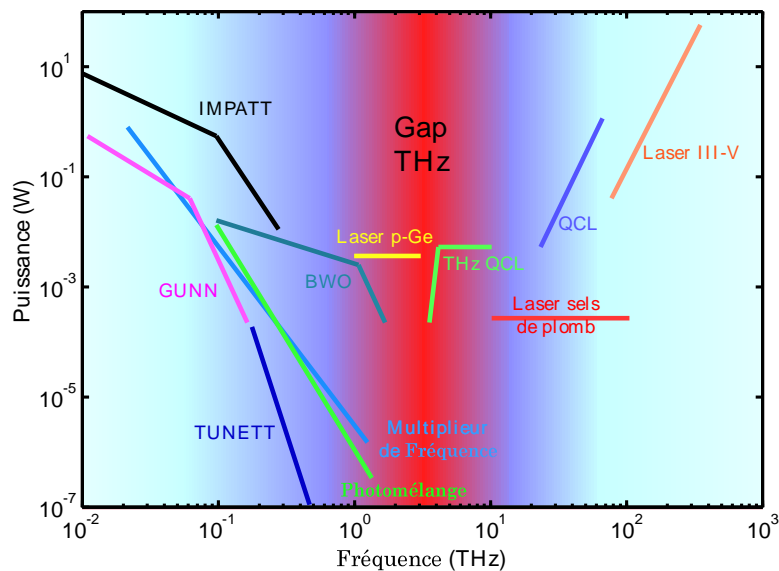
**FIGURE 1** – Le spectre électro-magnétique. Les fréquences THz sont situées entre le domaine infrarouge et celui des micro-ondes.

Voisines du domaine des radiofréquences, ces ondes non ionisantes ont la capacité de traverser un certain nombre de matériaux opaques dans d'autres gammes de fréquences, comme par exemple certains diélectriques (béton, plastiques, céramiques...), ce qui les rend tout à fait appropriées pour imager ces matériaux. En parallèle, de nombreuses substances chimiques présentent dans ce domaine des signatures spectrales spécifiques, ce qui permet de détecter certaines d'entre elles plus aisément qu'avec les méthodes ordinaires. Ainsi, certains polluants, drogues ou échantillons bactériologiques toxiques [1–3] peuvent être détectés quasiment sans équivoque. Dans le domaine de la sécurité, des scanners THz corporels sont déjà en place dans certains aéroports, ce qui démontre l'utilité et la complémentarité des ondes THz pour un nombre croissant d'applications. D'autre part, de nombreux autres développements sont en cours, que ce soit dans des thématiques



académiques, avec la biologie [4], l'archéologie [5–7], l'histoire de l'art [8]... ou industrielles, avec la possibilité d'exercer un contrôle non destructif sur certains matériaux, en aéronautique par exemple [9, 10] ou bien de caractériser ou trier les médicaments dans l'industrie pharmaceutique.

Devant un tel panel d'opportunités et d'applications, une question se pose : pourquoi la technologie basée sur les ondes THz, connues depuis de nombreuses années avec les premiers travaux de Rubens en 1897 [11], en est-elle paradoxalement à un stade encore peu avancé, comparée à l'optique ou aux radiofréquences, déjà largement intégrées dans notre vie quotidienne ? L'une des réponses à cette question est à voir dans la difficulté, jusqu'aux années 1990, de disposer de sources et de détecteurs pour cette gamme de longueurs d'ondes. L'étude des rayonnements THz est ainsi restée longuement délicate et uniquement accessible à des laboratoires très spécialisés. Comme le montre la figure 2, la puissance moyenne des sources chute drastiquement, dès lors que les fréquences atteignent le domaine 0.1 à 10 THz. Comblar ce fossé a été et constitue encore l'un des défis que la communauté scientifique s'efforce de relever depuis une vingtaine d'années [12].



**FIGURE 2** – Illustration du « fossé térahertz », figure reproduite à partir d'un document du Terahertz Technology Trend Investigation Committee (Japon).

Malgré cela, et grâce au développement croissant des lasers ultracourts, il est devenu aujourd'hui possible de disposer de sources THz de plus en plus performantes et fiables, aux intensités croissantes en même temps que celles des lasers sur lesquelles elles sont basées. On peut ainsi citer les antennes photo-conductrices (PCA), qui reposent sur l'excitation de porteurs de charges d'un matériau semi-conducteur à l'aide d'une impulsion laser. En parallèle, les développements de la microélectronique permettent maintenant d'aborder le domaine THz par l'autre bord du spectre, comme par exemple les diodes Gunn reliées à des multiplicateurs de fréquence. Les possibilités de générer un champ THz sont donc extrêmement nombreuses et l'on pourra se référer à [13, 14] pour plus d'informations.

Toutefois, ces systèmes, en règle générale, n'émettent pas des rayonnements THz très intenses en comparaison de ceux émis par les sources lasers. Notons que, dans la gamme de fréquences THz, on qualifie d'« intense » un rayonnement dont le champ électrique atteint ou dépasse la centaine de  $\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$ . Parmi les possibilités de générer un rayonnement THz, présentées sur la figure 3,

seules quelques sources spécifiques permettent d’atteindre les intensités suffisantes pour générer des effets non-linéaires dans des matériaux bien adaptés. Les lasers à électrons libres, comme FELIX ou FLASH en Allemagne, permettent d’obtenir des champs électriques très élevés [15], et des lignes de rayonnements THz de très forte énergie et puissance moyenne sont également développées depuis plusieurs années sur des accélérateurs de particules, comme le SLAC aux États-Unis [16], mais la taille et le coût de telles installations ne répondent évidemment pas aux besoins du plus grand nombre. Enfin, le pompage de certains cristaux organiques à des cadences de répétition peu élevées ( $\approx 100$  Hz) permet de générer par redressement optique des champs électriques THz très intenses, dont l’amplitude atteint plusieurs centaines de  $\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$  [17, 18].

Nous nous intéresserons, quant à nous, à deux types de sources dont les premiers pas datent des années 2000. Elles génèrent toutes deux des impulsions qui s’étendent sur une durée de l’ordre de quelques picosecondes ( $1 \text{ ps} = 1 \times 10^{-12} \text{ s}$ ) et sont basées sur des impulsions lasers femtosecondes ( $1 \text{ fs} = 1 \times 10^{-15} \text{ s}$ ) à une cadence de répétition de 1 kHz. La première d’entre elles repose sur un plasma, induit par l’impulsion de pompe, mélangée à son second harmonique. La seconde consiste à pomper un cristal de niobate de lithium à l’aide d’une technique spécifique, dite « par inclinaison du front de l’impulsion » ou TPFS (Tilted-Pulse Front Scheme). Ces deux méthodes de génération THz sont remarquables, du fait qu’elles permettent de produire des champs électriques THz intenses avec des systèmes lasers certes onéreux et encombrants, mais qui restent malgré tout relativement accessibles au sein des laboratoires, comparés aux accélérateurs de particules par exemple : les amplitudes générées peuvent ainsi atteindre la dizaine de  $\text{MV}/\text{cm}$ , que ce soit avec le plasma [19], ou avec le TFPF [20].

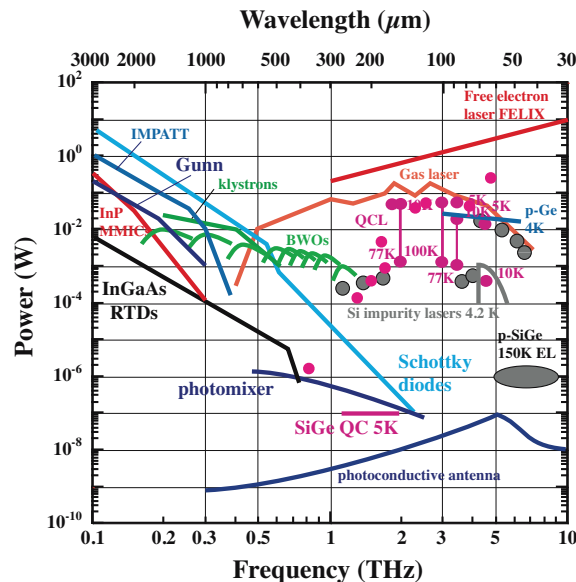


FIGURE 3 – Vue d’ensemble des sources de rayonnement térahertz, reproduit à partir de [21].

En parallèle de cette thématique de l’émergence des technologies THz, et pour continuer sur une composante historique, rappelons que l’avènement des technologies laser dans les années 60 s’est accompagné presque immédiatement de la démonstration expérimentale de processus optiques surprenants, qui n’avaient jamais été observés auparavant, malgré leur prédiction. Le laser naissait en 1960 [22] et, seulement un an plus tard, l’optique non-linéaire apparaissait à son tour [23]. Lorsque un champ électrique incident sur un matériau atteint une valeur non négligeable devant

---

le champ inter-atomique (inter-moléculaire ou cristallin selon le milieu), la réponse du matériau ne varie plus proportionnellement à la valeur du champ incident : la relation entre la polarisation du milieu et le champ électrique appliqué est alors modifiée et la polarisation admet un développement en puissances du champ incident. Ceci conduit à de nombreux phénomènes originaux, parmi lesquels la génération d'harmoniques, la diffusion ou l'absorption non-linéaire ou encore l'autofocalisation de l'impulsion. Aussi l'optique non-linéaire est-elle devenue fondamentale pour de très nombreuses applications : développement et diversification constants des sources lasers, spectroscopie non-linéaire, bistabilité optique, etc. sont autant de possibilités offertes par la maîtrise des phénomènes non-linéaires, dans les domaines du visible et de l'infrarouge principalement. Mais qu'en est-il dans le domaine térahertz ?

Les impulsions THz picosecondes, qui sont générées à partir d'impulsions optiques cent fois plus courtes, oscillent lentement au cours du temps et peuvent donc être échantillonnées de manière relativement simple dans le domaine temporel. L'utilisation d'une impulsion laser ultracourte permet en effet de sonder la réponse d'un matériau (cristal électro-optique ou composé semi-conducteur, par exemple) à l'excitation THz. En effet, les deux impulsions THz et sonde peuvent être facilement synchronisées à l'aide d'optiques bien adaptées. Ceci donne donc accès à la totalité du champ électrique THz, à savoir son amplitude et sa phase, contrairement aux impulsions optiques femtosecondes, dont seule le profil en intensité du champ est généralement accessible par des méthodes simples (auto- et cross-corrélation). Remarquons qu'avec l'avènement récent des impulsions de durée de l'ordre de l'attoseconde ( $1 \times 10^{-18}$  s), cela n'est plus tout à fait vrai dans les domaines du moyen infrarouge et du visible [24]. Quoi qu'il en soit, il est possible, dans le domaine THz, de mesurer directement le champ électrique, et d'en déduire la permittivité diélectrique complexe de différents matériaux. Parmi les techniques d'analyse et de caractérisation existant dans le domaine THz, la spectroscopie impulsionnelle résolue en temps (spectroscopie THz - TDS) figure en bonne place. Elle consiste à mesurer le profil temporel d'une impulsion ultrabrève située dans le domaine THz, en enregistrant à la fois sa phase et son amplitude. Lorsque celle-ci traverse ou est réfléchié par un échantillon donné, de longueur connue, son profil temporel est modifié. Grâce à la comparaison des deux formes du champ électrique par l'intermédiaire d'un traitement mathématique approprié (transformation de Fourier), la réponse spectrale du matériau peut alors être complètement déterminée, ce qui permet à l'expérimentateur d'extraire les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction du matériau étudié. Si l'intensité du champ incident est suffisante, la réponse du matériau à l'excitation peut devenir non-linéaire. De nombreuses expériences de spectroscopie non-linéaire ont ainsi déjà été publiées dans la littérature [25], réalisées sur des semi-conducteurs [26], des ferroélectriques [27], etc.

Par ailleurs, la spectroscopie THz - TDS permet également d'accéder à la dynamique électronique et/ou vibrationnelle éventuelle des matériaux [28]. Une impulsion optique peut être utilisée pour exciter l'échantillon et induire une création de charges, dont l'évolution peut être sondée avec le champ THz. A l'inverse, il est possible d'utiliser l'impulsion optique comme une sonde, permettant de mesurer l'excitation du matériau générée par une impulsion THz intense. Les expériences menées dans ce travail sont majoritairement de ce type. Lors du passage d'une impulsion, les électrons de l'échantillon oscillent avec le champ électrique et acquièrent une énergie proportionnelle à l'inverse de la fréquence du champ électrique élevée au carré. Ce concept permet généralement de comprendre certains phénomènes non-linéaires qui ne peuvent être décrits par la théorie des perturbations, comme la génération d'harmoniques. Une excitation intense dans le domaine THz - constitué de très basses fréquences comparées au visible - permet donc d'augmenter de manière significative l'énergie des électrons, et offre un nouvel éclairage sur certains processus physiques

---

difficiles à appréhender [29,30].

D'autre part, certains dispositifs électroniques atteignent aujourd'hui des fréquences de coupures proches de 1 THz, et des champs THz de l'ordre du MV/cm peuvent être atteints facilement dans certaines antennes de taille nanométrique. Les propriétés de transport de charges au sein des semiconducteurs soumis à un champ THz très intense ne peuvent donc plus être ignorées, et l'étude de ceux-ci avec des champs THz très intenses ouvre aujourd'hui la voie à une meilleure compréhension de ces propriétés [31]. Enfin, une dernière possibilité d'effectuer des expériences spectroscopiques non-linéaires dans le domaine THz est, naturellement, d'utiliser le rayonnement THz à la fois comme impulsion sonde et pompe [32]. Ceci a notamment permis de suivre la dynamique de relaxation des porteurs libres excités par le passage d'un champ THz très intense dans le germanium [33], ou encore la génération de porteurs libres par ionisation par impact dans l'antimoniure d'indium [34], l'arséniure de gallium [35] ou encore le graphène [36].

Parmi les autres travaux d'optique non-linéaire effectués dans le domaine THz, on peut enfin citer l'observation de procédés non-linéaires d'ordres deux et trois [28,37], voire même d'ordres supérieurs, avec, par exemple, la génération d'harmoniques dans le graphène [38].

Concilier le rayonnement térahertz, dont les sources ont été peu intenses pendant de nombreuses années, et l'optique non-linéaire, telle est la problématique dans laquelle nous avons souhaité inscrire ce travail. Au sein de l'environnement bordelais et de ses nombreuses institutions, la recherche sur les lasers est une thématique historique, largement développée au Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine. Ce travail de thèse, effectué au sein du groupe PULS (Photonics and Ultrafast Spectroscopy), s'inscrit donc tout naturellement dans ce cadre, et sera basé sur l'utilisation et la maîtrise des technologies laser ultrarapides. L'un des objectifs principaux de ce travail a donc été, en premier lieu, de développer et optimiser différentes sources intenses de rayonnement THz, afin, d'une part, de compléter la gamme de fréquences déjà accessibles au sein du groupe PULS et, d'autre part, d'atteindre des intensités lumineuses suffisantes pour observer des effets non-linéaires dans la gamme THz. Nous avons ensuite étudié et caractérisé un certain nombre de ces effets non-linéaires, dont certains ont été appliqués à la détection et la mesure du champ THz. Ce manuscrit se divise ainsi en quatre grandes parties.

Le **premier chapitre** rappellera les fondamentaux de la génération et de la détection d'un champ électrique THz intense. Dans une première partie, nous nous intéresserons au développement, à l'optimisation et à l'étude de deux sources térahertz intenses, dont la mise en place au laboratoire a constitué l'un des premiers objectifs de cette thèse. La première source repose sur la focalisation dans l'air d'un laser de durée femtoseconde, composé du mélange de sa fréquence fondamentale et de son second harmonique. Dotée d'un large spectre, elle doit permettre de produire des impulsions THz intenses et large-bande, centrées à 3 THz. La deuxième source de rayonnement THz est fondée sur le redressement optique d'impulsions femtosecondes dans un cristal de niobate de lithium. Elle devra délivrer des impulsions intenses et de bande spectrale étroite, centrées autour de 1 THz. Dans la seconde partie, nous rappellerons plusieurs notions essentielles à la détection d'un champ THz, en s'intéressant tout particulièrement à la détection électro-optique dans des cristaux de structure zinc-blende, taillés selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Celle-ci repose sur l'effet Pockels et sur la mesure de la biréfringence résultante, phénomènes induits par le passage d'un champ THz dans ces matériaux.

Le **deuxième chapitre** du manuscrit sera consacré en détails à l'effet Pockels. Nous porte-

---

rons un nouveau regard sur cet effet non-linéaire du second ordre, usuellement utilisé pour détecter un champ THz. Nous démontrerons tout d’abord que, pour une certaine géométrie des champs électriques optique et THz à l’entrée du cristal, l’effet Pockels peut induire l’apparition d’une composante, dite électro-optique, déphasée de  $\pi/2$  par rapport à l’impulsion optique incidente et polarisée orthogonalement à cette dernière. En se basant sur ces caractéristiques, nous présenterons tout d’abord une alternative à la détection électro-optique conventionnelle, développée au cours de cette thèse et qui permet d’effectuer une mesure hétérodyne du champ THz. Par ailleurs, la composante électro-optique pouvant être facilement isolée expérimentalement, cela nous permettra d’étudier son spectre en fonction du retard entre les impulsions optique et THz. Nous verrons que cette expérience peut s’apparenter à la technique du « X-FROG » [39]. Celle-ci permet, par exemple, de mesurer la phase spectrale d’une impulsion optique inconnue, à partir de son interaction avec une autre impulsion de référence. Par analogie, nous verrons qu’il est possible de mesurer la dérive de fréquences de l’impulsion sonde avec la même précision qu’un auto-corrélateur conventionnel.

Le **troisième chapitre** sera consacrée à l’étude d’un effet non-linéaire effectif d’ordre trois. Nous aborderons ainsi la génération de second harmonique induite par l’effet Pockels dans un cristal de tellure de zinc. Nous verrons que ce processus est un effet de cascade de deux procédés non-linéaires du second ordre, et nous montrerons que, malgré certaines ressemblances, il ne doit pas être confondu avec le procédé du troisième ordre dit TFISH pour « THz-field-induced Second Harmonic » [40]. Les résultats expérimentaux obtenus seront ensuite comparés à un modèle analytique. Enfin, cet effet de cascade sera appliqué à la détection du champ THz, en utilisant une méthode équivalente à la technique hétérodyne établie dans le chapitre précédent.

Dans le **quatrième et dernier chapitre**, nous nous intéresserons finalement à un effet non-linéaire d’ordre trois, l’effet Kerr THz. Nous montrerons que, dans un cristal électro-optique de phosphore de gallium et pour une configuration particulière des directions de polarisations des impulsions THz et sonde à l’entrée du matériau, il est possible d’induire une modification de son indice de réfraction, proportionnelle à l’intensité THz. D’une part, nous étudierons expérimentalement les dépendances en intensité et en angle de cette biréfringence. D’autre part, nous montrerons qu’il est possible de calculer analytiquement la réponse non-linéaire du matériau, de la modéliser et d’en déduire, par comparaison avec les résultats expérimentaux, les éléments non nuls du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre impliqués dans l’effet Kerr THz.

Enfin, en conclusion, nous nous attacherons à rappeler les différents résultats obtenus durant cette thèse, et à proposer quelques perspectives de travaux futurs.





# Chapitre 1

## Génération et détection d'un rayonnement THz intense

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>La source amplifiée Titane:Saphir de la plateforme COLA . . . . .</b>	<b>14</b>
<b>1.2</b>	<b>Redressement optique et génération THz intense : la technique de l'inclinaison du front de l'impulsion . . . . .</b>	<b>15</b>
1.2.1	Le cristal de $\text{LiNbO}_3$ . . . . .	16
1.2.2	Quelques considérations théoriques . . . . .	18
1.2.2.1	Procédé de redressement optique . . . . .	18
1.2.2.2	Condition d'accord de phase . . . . .	20
1.2.3	Mise en œuvre expérimentale . . . . .	22
1.2.3.1	Présentation du dispositif expérimental . . . . .	22
1.2.3.2	Choix des optiques : réseau et lentilles . . . . .	23
1.2.3.3	Influence de la durée de l'impulsion pompe sur l'efficacité de génération THz . . . . .	24
1.2.3.4	Spécificités de la source . . . . .	26
<b>1.3</b>	<b>La « source plasma » : génération THz intense par superposition et focalisation de l'onde de pompe et de son second harmonique . . . . .</b>	<b>28</b>
1.3.1	Quelques considérations théoriques . . . . .	28
1.3.1.1	Formation d'un plasma à partir d'impulsions laser ultra-courtes . . . . .	28
1.3.1.2	Aperçu des différents mécanismes envisagés pour la génération THz par plasma . . . . .	29
1.3.2	Dispositif expérimental de génération de rayonnement THz intense par plasma . . . . .	33
1.3.2.1	Montage expérimental . . . . .	33
1.3.2.2	Génération du second harmonique (SHG) par un cristal de BBO . . . . .	34
1.3.2.3	Spécificités de la « source plasma » . . . . .	36
<b>1.4</b>	<b>Détection d'un champ THz par ellipsométrie . . . . .</b>	<b>39</b>
1.4.1	État de l'art de la détection d'une impulsion THz . . . . .	39
1.4.2	Action d'un champ électrique sur un milieu matériel . . . . .	41
1.4.3	Cristaux électro-optiques : le choix du GaP et du ZnTe . . . . .	43

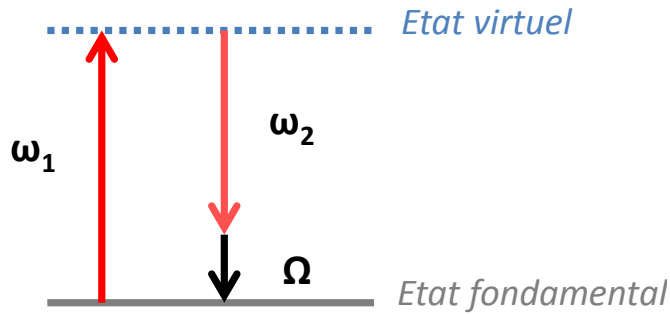


---

1.4.4	Description mathématique de l'effet Pockels induit par un champ THz dans un cristal de structure zinc-blende . . . . .	48
1.4.5	Détection de la biréfringence induite par l'effet Pockels par ellipsométrie . . . . .	50
1.4.5.1	Présentation du dispositif expérimental conventionnel . . . . .	51
1.4.5.2	Mise en équation du signal électro-optique dans le cas conventionnel . . . . .	52

---

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous disposons au laboratoire d'une plateforme laser femtoseconde amplifiée, dont les caractéristiques seront présentées en détails dans la première partie de ce chapitre. Dans le but de générer des champs THz intenses, il est possible d'utiliser un tel outil de diverses manières. Une première technique très répandue de génération THz intense repose sur le redressement optique d'une impulsion laser de pompe dans des matériaux non-linéaires. Ce processus, présenté sur la figure 1.1, peut avoir lieu dans de nombreux matériaux possédant une non-linéarité d'ordre 2 (voir le tableau 1.1) : on peut citer par exemple le tellure de zinc (ZnTe) ou l'arséniure de gallium (AsGa), qui sont des cristaux semi-conducteurs, mais également le DAST (4-N,N-diméthylamino-4'-N'-méthylstilbasolium tosylate) ou le DSTMS (4-N,N-diméthylamino-4'-N'-méthylstilbazolium 2,4,6-triméthylbenzenesulfonate), qui appartiennent à la catégorie des cristaux organiques. Le redressement optique consiste à générer, à partir de deux photons de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  appartenant à une même impulsion optique, une seconde impulsion de fréquence beaucoup plus faible,  $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ , située dans le domaine THz et obtenue par différence de fréquences.



**FIGURE 1.1** – Redressement optique - point de vue corpusculaire.

Cependant, cette méthode de génération THz a, en règle générale, une efficacité plutôt réduite pour plusieurs raisons :

- d'une part, certains milieux, très utilisés pour le redressement optique d'une impulsion laser, sont semi-conducteurs et ont donc une énergie de gap plutôt faible. En conséquence, si l'on augmente l'intensité du laser pour contourner ce problème, la création de porteurs libres, qui absorbent le rayonnement THz au fur et à mesure de sa génération, conduit à une saturation de l'efficacité de génération THz. Ce phénomène est particulièrement présent dans le ZnTe [41–44] et, dans une moindre mesure, dans le GaP et le niobate de lithium (LiNbO<sub>3</sub>) [41].
- d'autre part, l'efficacité de conversion du processus dépend aussi de la réalisation de la condition d'accord de phase dans le matériau utilisé pour le redressement optique. Pour une génération THz optimale, la vitesse de groupe de l'onde optique,  $v_g^{vis} = v_g = c/n_g$ , où  $n_g$  est

---

l'indice de groupe du milieu à la longueur d'onde de pompe, doit en effet évaluer la vitesse de phase de l'impulsion THz,  $v_{\text{THz}}^\phi = c/n_{\text{THz}}$ , où  $n_{\text{THz}}$  est l'indice du milieu dans le domaine THz. Toutefois, il n'est possible de satisfaire cette condition dans un schéma colinéaire, c'est-à-dire lorsque les directions de propagation des impulsions pompe et THz sont les mêmes, que pour un certain nombre de matériaux et de longueurs d'ondes spécifiques [45]. Le tableau 1.1 présente quelques-uns des matériaux les plus fréquemment utilisés pour la génération THz par redressement optique. On constate ainsi qu'à 800 nm, le ZnTe, le GaP et le sélénure de gallium (GaSe) ont des indices  $n_g^{800}$  et  $n_{\text{THz}}$  plutôt proches, de même que le DAST et l'arséniure de gallium (GaAs) à 1.55  $\mu\text{m}$ , ce qui indique que la condition  $v_g = v_{\text{THz}}^\phi$  sera relativement bien respectée dans un schéma colinéaire. Cependant, un certain nombre de facteurs limitent malgré tout l'efficacité de ces matériaux, comme le montrent les valeurs relativement faibles du coefficient de mérite défini par  $\text{FOM} = \frac{d_{\text{eff}}^2 \cdot L_c^2}{n_g^2 \cdot n_{\text{THz}} \cdot \alpha_{\text{THz}}^2}$  où  $L_c$  est la longueur du cristal,  $d_{\text{eff}}$  le coefficient non-linéaire effectif (on verra qu'il est relié à la susceptibilité non-linéaire du second ordre par la relation (1.8)) et  $\alpha_{\text{THz}}$  le coefficient d'absorption linéaire dans le domaine THz [46].

En conséquence, à l'heure actuelle, la configuration colinéaire permet difficilement d'atteindre des amplitudes de champ électrique THz supérieures à la dizaine de kV/cm [25] : seuls les cristaux organiques permettent d'atteindre le GV/cm [17], alors que certains cristaux de ZnTe de très grande ouverture numérique autorisent des amplitudes pouvant aller jusqu'à la centaine de kV/cm [47]. Il est donc assurément nécessaire de mettre en place des schémas de génération alternatifs. Dans les cristaux à haute constante diélectrique tels que le niobate de lithium stœchiométrique (s-LiNbO<sub>3</sub>) ou le sélénure de gallium (GaSe), on constate que la vitesse de phase du rayonnement THz est nettement plus faible que la vitesse de groupe de l'impulsion pompe à 800 nm. La condition d'accord de phase  $v_g = v_{\text{THz}}^\phi$  ne peut donc être remplie. Une solution envisagée pour contourner ce problème peut être, par exemple, l'emploi de la biréfringence intrinsèque du cristal, mise en œuvre par exemple au sein du GaSe dans [48]. Cependant, ce schéma a également pour effet de réduire le coefficient non-linéaire effectif  $d_{\text{eff}}$ , ce qui ne permet pas de générer des champs très intenses.

La technique la plus prometteuse à ce jour pour atteindre des champs THz intenses malgré cette limitation de l'accord de phase est celle dite « du front de l'impulsion incliné » (Tilted Pulse Front Scheme), mise en œuvre dans un cristal de LiNbO<sub>3</sub> et, très récemment, dans un cristal d'Arséniure de Gallium (GaAs) [50], matériau dont l'absorption THz est bien inférieure à celle du LiNbO<sub>3</sub> (voir tableau 1.1). Elle a été proposée par J. Hebling et ses collaborateurs en 2002 [51] et réalisée expérimentalement pour la première fois en 2003 par la même équipe [52]. Elle permet d'atteindre des champs supérieurs au MV.cm<sup>-1</sup> [20]. À titre de comparaison, dans des conditions équivalentes, cette technique permet d'atteindre environ 240 nJ d'énergie THz [53] alors que le redressement optique dans le ZnTe ou le GaSe permet d'atteindre des énergies respectives de 150 nJ [43] et 12 nJ [54]. Dans le cadre de ce travail de thèse, une source basée sur ce principe a été développée au laboratoire et sera présentée dans la première partie de ce chapitre.

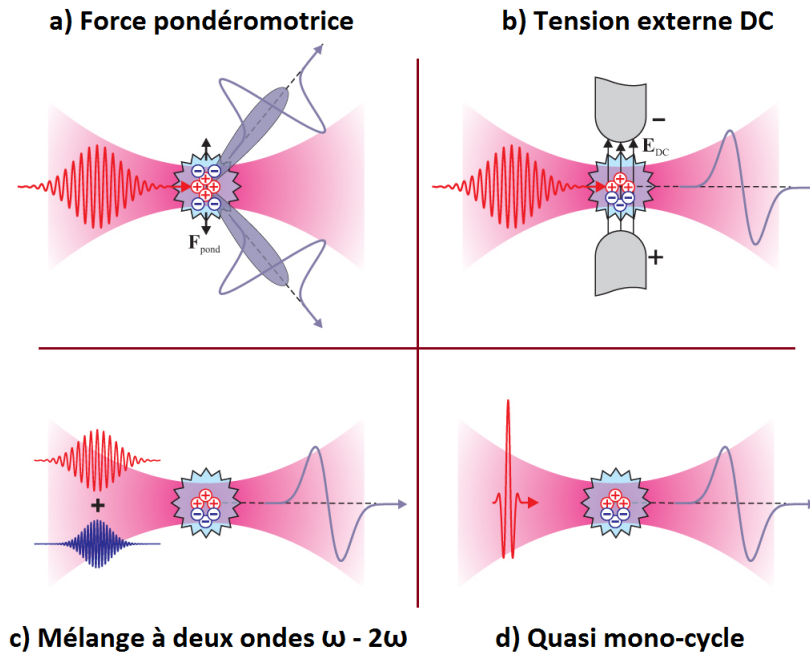
En parallèle, toutes ces méthodes d'émission de rayonnements THz, comme le redressement optique dans des cristaux non-linéaires ou la photo-excitation de semi-conducteurs, ont le désavantage certain de toujours présenter une limitation en intensité THz, du fait des propriétés intrinsèques de leur matériau constitutif. En effet, il existe dans tous ces matériaux structurés un seuil de saturation ou de dommage, qui limite leur usage à une certaine gamme de puissance de

Matériau	$d_{\text{eff}}$ (pm/V)	$n_g^{800}$	$n_{\text{THz}}$	$n_g^{1.55}$	$\alpha_{\text{THz}}$ (cm <sup>-1</sup> )	FOM (pm <sup>2</sup> .cm <sup>2</sup> /V <sup>2</sup> )
ZnTe	68.5	3.13	3.17	2.81	1.3	7.27
GaP	24.8	3.67	3.34	3.16	0.2	0.72
CdTe	81.8	–	3.24	2.81	4.8	11.0
GaAs	65.6	4.18	3.59	3.56	0.5	4.21
GaSe	28.0	3.13	3.27	2.82	0.5	1.18
DAST	615	3.39	2.58	2.25	50	41.5
s-LiNbO <sub>3</sub>	168	2.25	4.96	2.18	25 4.8 à 100 K	18.2 48.6 à 100 K

**TABLE 1.1** – Paramètres optiques des principaux matériaux utilisés pour le redressement optique d’une impulsion. Les exposants 800 et 1.55 signifient respectivement que les longueurs d’onde associées à l’indice de groupe sont 800 nm et 1.55  $\mu\text{m}$ . Le coefficient de mérite FOM est calculé à 800 nm et pour une longueur  $L_c$  égale à 2 mm. Repris de [42] et de [49].

pompe. De plus, la bande spectrale de telles sources est également limitée, à la fois par la durée d’impulsion initiale du laser, et par un certain nombre d’éléments inhérents au bon fonctionnement de la source, comme la dynamique des porteurs de charge dans les semi-conducteurs [55], ou la nécessité de l’accord de phase dans les cristaux non-linéaires [56]. En comparaison, les « sources plasma », proposées et démontrées expérimentalement en 1993 par Hamster *et al.* [57, 58], présentent de nombreux avantages, et ont été particulièrement étudiées et développées pour arriver à d’excellents résultats en matière de génération d’ondes THz intenses. Nous présentons ici un rapide état de l’art de ces sources réellement prometteuses.

En premier lieu, la technique de génération THz par création d’un plasma photo-induit dans un milieu gazeux permet d’atteindre de fortes intensités et de larges bandes spectrales, indispensables pour les techniques émergentes de spectroscopies linéaire et non-linéaire. Une impulsion laser femtoseconde dont l’énergie est supérieure à la centaine de  $\mu\text{J}$  est focalisée dans un gaz, en ionise les molécules et crée un plasma, qui devient une source d’émission THz. La cible gazeuse étant indéfiniment renouvelée, il n’existe pas de seuil de dommage pour un tel émetteur. En 1993, Hamster *et al.* [57, 58] ont supposé que le mécanisme à l’origine de l’émission THz est basé sur l’accélération radiale des électrons ionisés, sujets à la force pondéromotrice générée par le champ électrique optique très intense au point focal (voir la figure 1.2-a)). Toutefois, depuis cette première tentative d’explication, d’autres schémas pour la génération THz au sein d’un plasma ont été développés, qui ont largement permis d’améliorer les caractéristiques générales de ces sources. Une vue d’ensemble de ces différents dispositifs est présentée sur la figure 1.2.



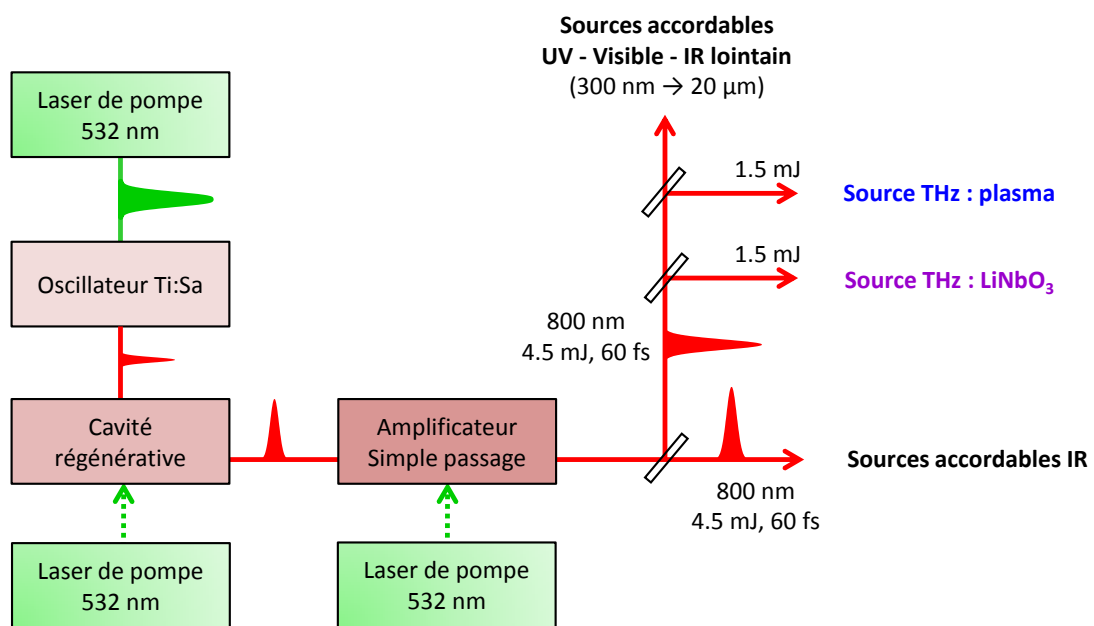
**FIGURE 1.2** – Vue d’ensemble des différents mécanismes envisagés pour la génération d’impulsions THz au sein d’un plasma, tiré de [59]. Le schéma c) est celui que nous avons choisi d’implémenter au laboratoire.

Le dispositif représenté sur la figure 1.2-b), où une différence de potentiel externe est appliquée au niveau du point focal du laser, permet d’augmenter l’intensité du rayonnement THz, en comparaison du schéma exposé en a). En 2000, Cook *et al.* [60] ont démontré que la différence de potentiel requise peut être produite en superposant le champ laser incident (à la fréquence fondamentale) et son second harmonique (voir la figure 1.2-c)). Il est également envisageable de générer un champ THz sans l’aide du second harmonique, en créant un plasma à partir d’impulsions pompes extrêmement courtes, d’une durée inférieure à 10 fs (voir la figure 1.2-d)). D’autres études ont été menées depuis lors sur le dispositif à deux couleurs [59,61–67] et les champs THz émis aujourd’hui grâce à cette méthode sont les plus élevés jamais atteints, en comparaison des autres dispositifs à plasma (figures 1.2-a), b) et d)). Notre choix d’une source de rayonnement THz intense et à large spectre s’est donc tout naturellement porté sur cette méthode, et les caractéristiques de la source développée au cours de ce travail seront présentées dans la deuxième partie de ce chapitre.

En résumé, ce chapitre sera organisé comme suit : nous décrirons tout d’abord dans la section 1.1 les caractéristiques de la plateforme laser sur laquelle s’appuient les deux sources de génération THz intense qui ont été développées au cours de cette thèse. La première d’entre elles fera l’objet de la section 1.2 : elle repose sur le principe bien connu du redressement optique d’une impulsion ultracourte dans un cristal de niobate de lithium, impulsion dont le front sera préalablement incliné pour satisfaire à la condition d’accord de phase. Cette source doit permettre de produire des impulsions THz très intenses, d’amplitude  $\geq 100 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$  et possédant un spectre relativement étroit, centré à 1 THz. La seconde source sera décrite dans la section 1.3 : basée sur l’interaction de deux impulsions lasers à la fréquence fondamentale ( $\omega$ ) et harmonique ( $2\omega$ ) au sein d’un plasma, elle doit, quant à elle, permettre de générer des impulsions THz à très large spectre, centrées autour

de 1.5 THz et ayant une amplitude de champ électrique  $\approx 100 \text{ kV.cm}^{-1}$ . Enfin, nous compléterons cette présentation des sources THz intenses disponibles au laboratoire par la présentation d'une méthode couramment utilisée pour détecter les ondes THz. Nous verrons que la mesure, par ellipsométrie, de l'état de polarisation d'un faisceau sonde qui se propage en parallèle du champ THz au sein d'un cristal électro-optique permet de déduire la forme temporelle du champ THz, ainsi que son amplitude au sein du cristal.

## 1.1 La source amplifiée Titane:Saphir de la plateforme COLA



**FIGURE 1.3** – Représentation schématique de la source Titane:Saphir amplifiée de COLA sur laquelle reposent les différentes sources THz intenses développées dans ce travail. La première source (en bleu) est basée sur un plasma, créé par focalisation des impulsions ultra-courtes de COLA, alors que la seconde (en violet) repose sur le redressement optique de ces impulsions dans un cristal de niobate de lithium.

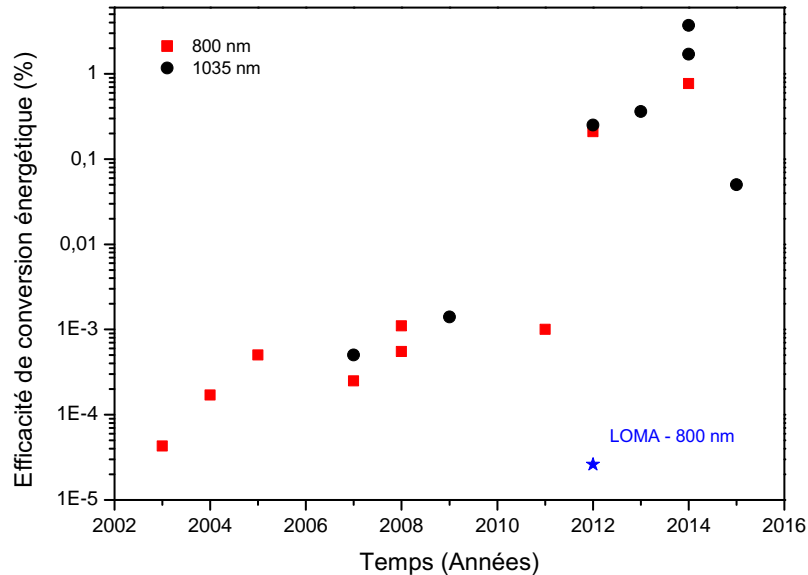
Les sources THz intenses développées dans ce travail sont basées sur une source laser Titane:Saphir, représentée schématiquement sur la figure 1.3. Elle appartient à la plateforme COLA (Centre Optique et Laser d'Aquitaine) présente au sein du Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine : il s'agit d'un oscillateur femtoseconde amplifié par une cavité régénérative, suivie d'un amplificateur simple passage, commercialisés par la société Coherent©. Il fournit en sortie deux faisceaux d'impulsions infrarouges, centrées à 800 nm, de largeur temporelle 60 fs, à une cadence de 1 kHz et d'énergie 4.5 mJ. Une seule de ces deux voies est utilisée pour générer des rayonnements THz intenses, à hauteur de 1.5 mJ pour chaque source THz. On rappelle dans le tableau 1.2 les principales caractéristiques des impulsions optiques utilisées lors de ce travail.

Nous allons maintenant présenter la source THz basée sur le redressement optique des impulsions ultracourtes produites sur la plateforme COLA.

	Puissance crête	Énergie	Intensité	Amplitude	Durée
Laser de pompe	$2.5 \times 10^{10}$ W	1.5 mJ	$2.6 \times 10^{15}$ W/cm <sup>2</sup>	$2.6 \times 10^6$ kV/cm	60 fs

**TABLE 1.2** – Tableau récapitulatif des impulsions laser centrées à 800 nm et utilisées pour générer un champ THz intense. L’intensité est définie comme l’intensité maximale, calculée au point de focalisation ( $w_0 = 10 \mu\text{m}^2$ ). La durée est définie comme la largeur à mi-hauteur en intensité de l’impulsion et l’amplitude est celle du champ électrique.

## 1.2 Redressement optique et génération THz intense : la technique de l’inclinaison du front de l’impulsion



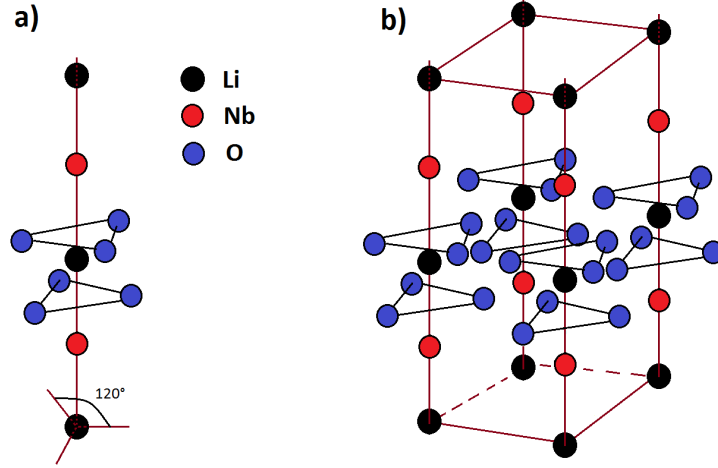
**FIGURE 1.4** – Évolution de l’efficacité de la génération d’impulsions THz par la méthode du front de l’impulsion incliné dans un cristal de  $\text{LiNbO}_3$  au fil des ans. Les données proviennent de la littérature [20, 41, 52, 68–78].

A l’heure actuelle, l’une des sources les plus efficaces en terme de génération THz intense est basée sur le redressement optique d’une impulsion laser par la méthode de l’inclinaison du front d’onde (TPFS : Tilted-Pulse Front Scheme). Nous avons donc développé un tel dispositif au laboratoire, dont les caractéristiques sont données dans cette partie du manuscrit. Il est à noter que nous restreindrons la discussion aux seules études et réalisations effectuées à partir des impulsions disponibles ici, et dont la longueur d’onde centrale est de 800 nm. Cependant, il faut savoir que de très nombreuses études et réalisations ont été mises en œuvre, en parallèle, pour augmenter au maximum l’efficacité de génération THz. À l’heure actuelle, l’efficacité énergétique de génération THz atteinte est de 0.1 % en moyenne. Le graphe 1.4 présente un aperçu de l’efficacité de conversion énergétique de cette méthode pour différentes sources développées au fil des ans, pour deux longueurs d’onde couramment utilisées. Notre source (en bleu) se place plutôt dans la partie basse de la courbe, nous y reviendrons par la suite.

Nous allons tout d’abord présenter les principales propriétés du niobate de lithium afin de

justifier son intérêt pour la génération d'un rayonnement THz intense.

### 1.2.1 Le cristal de LiNbO<sub>3</sub>



**FIGURE 1.5** – a) Maille élémentaire du réseau cristallographique du cristal de LiNbO<sub>3</sub>. b) Réseau plus complet : les ions lithium forment un réseau cubique, intercalé avec celui formé par les ions niobium. Enfin, les atomes d'oxygène forment un triangle associé à chaque paire d'ions [Li - Nb].

Le LiNbO<sub>3</sub> est un cristal diélectrique transparent, de groupe d'espace  $R3c$  et de classe cristalline  $3m$  [79]. Sa structure cristalline est présentée sur la figure 1.5. Il peut être dopé à l'oxyde de magnésium MgO, ce qui augmente sa résistance aux dommages optiques [49] et diminue son absorption dans le domaine THz (voir la figure 1.6 et le tableau 1.1). Dans notre cas, nous disposons d'un cristal stœchiométrique, dont le dopage est de 0.6% en MgO. Il s'agit d'un matériau uniaxe négatif, dont l'axe  $c$  est dirigé selon la direction  $\langle 001 \rangle$ .

Avec une énergie de bande interdite égale à 3.8 eV, ce matériau est transparent entre 350 et 5200 nm et possède une susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 de l'ordre de  $d_{\text{eff}} = 168$  pm/V, bien supérieure à celle des matériaux habituellement utilisés (voir Tableau 1.1). Ces différentes caractéristiques le rendent donc très attractif pour générer un rayonnement THz intense par redressement optique d'impulsions de longueur d'onde centrale égale à 800 nm. Dans le domaine THz, le coefficient d'absorption de ce matériau comprend principalement deux contributions et peut donc s'écrire sous la forme :

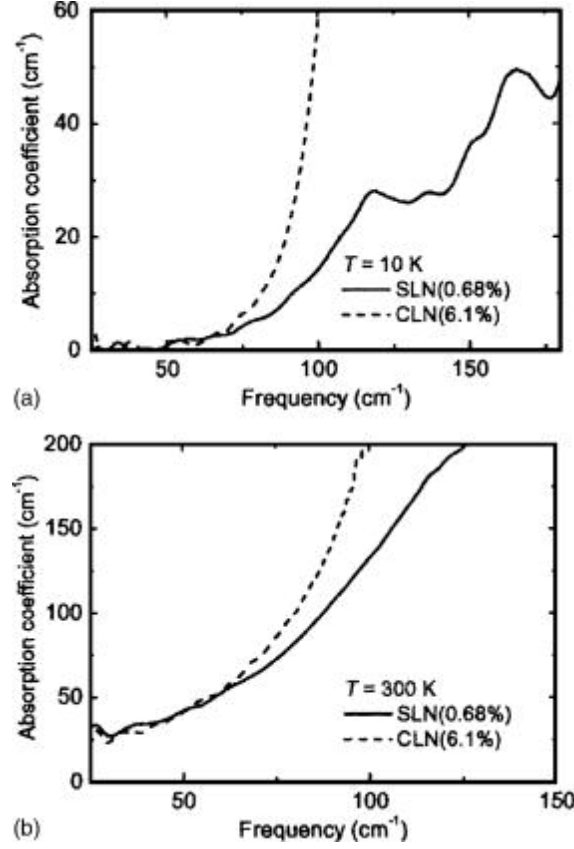
$$\alpha(\Omega, z) = \alpha_{\epsilon}(\Omega) + \alpha_{\text{pl}}(\Omega, z), \quad (1.1)$$

- Le premier terme,  $\alpha_{\epsilon}(\Omega)$ , est dû à la réponse diélectrique du matériau, donnée dans le domaine THz en fonction de la fréquence  $\Omega$  par l'expression [46] :

$$\epsilon(\Omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_{\text{TO}} \Omega_{\text{TO}}^2}{\Omega_{\text{TO}}^2 - \Omega^2 - 2i\gamma\Omega} = \tilde{n}^2 = (n + i\kappa)^2 = \left( n + i \frac{\alpha_{\epsilon}(\Omega)c}{2\Omega} \right)^2, \quad (1.2)$$

où  $\epsilon_{\infty} = 5.3$  et  $\gamma$ ,  $\Omega_{\text{TO}}$  et  $\epsilon_{\text{TO}}$  sont respectivement la largeur de raie, la pulsation et le poids associés au phonon transverse optique du LiNbO<sub>3</sub>. Ce phonon est situé vers  $\Omega_{\text{TO}} = 7.7$  THz.

L'absorption  $\alpha_\epsilon(\Omega)$  s'obtient directement à l'aide de (1.2) et est présentée sur le graphe 1.6. Nos conditions expérimentales correspondent à une température ambiante et à un cristal stœchiométrique dopé à 0.6 % de magnésium, *i.e.* à la courbe noire continue sur la figure 1.6-b). Pour plus de détails sur le taux de dopage du cristal, on pourra se référer à [46].



**FIGURE 1.6** – Spectres d’absorption du s-LiNbO<sub>3</sub> entre 0.1 et 5 THz, pour différentes températures. Repris de [49].

- Le second terme  $\alpha_{\text{pl}}(\Omega, z)$  est dû aux porteurs libres générés par l’absorption à plusieurs photons de l’impulsion pompe lors de sa propagation dans le milieu. Dans un cas idéal de matériau extrêmement pur, les photons à 800 nm, soit 1.54 eV, excitent les porteurs présents dans la couche de valence du matériau. Le LiNbO<sub>3</sub> possédant une bande interdite importante, avec  $E_g = 3.8$  eV, un porteur ne pourra passer dans un état excité que dans le cas où au moins trois photons sont apportés par l’impulsion pompe. À 800 nm, le phénomène limitant principal sera donc l’absorption à trois photons. Simultanément, les porteurs libres générés par la pompe vont absorber le rayonnement THz produit, ce qui se traduit par un coefficient d’absorption de la forme [45] :

$$\alpha_{\text{pl}}(\Omega, z) = 2 \frac{\Omega}{c} \text{Im} \left\{ \sqrt{\epsilon_\infty \left( 1 - \frac{\omega_p(z)}{\Omega^2 + i\Omega/\tau_{\text{sc}}} \right)} \right\}, \quad (1.3)$$

où  $\tau_{\text{sc}}$  est le temps de diffusion des porteurs et  $\omega_p$  la pulsation plasma, dont l’expression est



donnée par :

$$\omega_p(z) = e \cdot \sqrt{\frac{N_{\text{pl}}(z)}{\epsilon_0 \cdot \epsilon_\infty \cdot m_{\text{eff}}}},$$

où  $m_{\text{eff}}$  est la masse effective des électrons. La pulsation  $\omega_p$  dépend également du nombre de porteurs générés lors de l'interaction  $N_{\text{pl}}$ , lui-même fonction de la distance de propagation  $z$  dans le cristal [45] selon l'expression :

$$N_{\text{pl}}(z) = \frac{I(z) \cdot \tau_0}{\hbar \cdot \omega_0} \left( \alpha_\epsilon(\omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2 I(z) + \frac{1}{3}\beta_3 I^2(z) + \dots \right), \quad (1.4)$$

où  $\tau_0$  est la durée de l'impulsion à 800 nm,  $I(z, \gamma)$  l'intensité du faisceau pompe moyenné sur le temps et  $\omega_0$  la pulsation associée à la longueur d'onde centrale de l'impulsion pompe. Enfin,  $\alpha_\epsilon(\omega_0)$ ,  $\beta_2$  et  $\beta_3$  sont respectivement les coefficients d'absorption linéaire, à deux photons et à trois photons.

Du fait de l'absorption à plusieurs photons, la présence de porteurs libres explique l'existence d'un palier de saturation pour la génération THz lorsque l'intensité de la pompe augmente [41], et ce, quels que soient les matériaux envisagés pour le redressement optique. Cependant, le ZnTe et le GaP ayant chacun une bande interdite proche de 2.25 eV à 800 nm, l'absorption à deux photons limite largement la génération THz dans ces matériaux, alors que dans le LiNbO<sub>3</sub>, l'absorption à trois photons provoque un seuil de saturation bien supérieur à celui atteint pour le ZnTe et le GaP. Il sera donc possible de générer une impulsion THz de façon bien plus efficace dans un cristal de LiNbO<sub>3</sub>.

- Enfin, l'absorption dépend très fortement de la température du cristal [75], comme on peut le constater sur la figure 1.6. Lorsque le cristal est refroidi à l'aide d'un cryostat, la mobilité des porteurs diminue fortement et l'absorption est considérablement réduite dans la zone d'intérêt de 0.1 à 5 THz. À température ambiante, le coefficient d'absorption du LiNbO<sub>3</sub> dans le domaine entre 0.1 et 2 THz est proche de 20 cm<sup>-1</sup>. La génération THz n'aura donc lieu que sur une courte distance, d'environ 0.5 mm, soit en sortie du cristal de LiNbO<sub>3</sub>.

## 1.2.2 Quelques considérations théoriques

Nous rappelons ici brièvement le principe de la génération THz par la technique d'inclinaison du front de l'impulsion, qui a été abondamment documentée dans la littérature [45,51–53,68,80,81].

### 1.2.2.1 Procédé de redressement optique

La propagation d'une impulsion optique linéairement polarisée à travers un cristal de LiNbO<sub>3</sub> produit, par redressement optique, une impulsion THz polarisée linéairement également. Il s'agit d'un phénomène non-linéaire du second ordre, qui a lieu en même temps que la génération de second harmonique dans le cristal. Nous nous plaçons dans le cadre de certaines hypothèses :

- Nous considérerons uniquement des ondes planes et une onde optique linéairement polarisée selon l'axe  $\langle 001 \rangle$  du cristal (aussi dénommé axe  $c$ ) et se propageant selon la direction  $z$ .
- L'approximation de l'enveloppe lentement variable habituellement utilisée pour décrire les ondes optiques n'est pas valide dans le cas d'une impulsion THz. En effet, ici, le champ électrique associé à l'onde THz est un monocycle et oscille très lentement au cours du temps, comparé aux impulsions optiques, dont la fréquence est plusieurs milliers de fois plus élevée.
- Nous supposerons que l'absorption de l'impulsion de pompe est négligeable.
- Enfin, nous négligerons les effets de diffraction.

Pour décrire la génération de l'onde THz, on part de l'équation d'onde, obtenue à partir des équations de Maxwell, en incluant la polarisation non-linéaire comme terme source :

$$\frac{\partial^2 E_{\text{THz}}(z, t)}{\partial z^2} - \frac{n(\Omega)^2}{c^2} \frac{\partial^2 E_{\text{THz}}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{\text{NL}}(z, t)}{\partial t^2}, \quad (1.5)$$

où  $n(\Omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\Omega)}$  est l'indice de réfraction du milieu à la pulsation  $\Omega$ .

Le passage dans le domaine spectral s'effectue par une transformation de Fourier du champ électrique. L'équation (1.5) devient :

$$\frac{\partial^2 E_{\text{THz}}(\Omega, z)}{\partial z^2} + k_{\text{THz}}^2(\Omega) E_{\text{THz}}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{\epsilon_0 c^2} P^{\text{NL}}(\Omega, z). \quad (1.6)$$

La polarisation associée s'exprime sous la forme :

$$P^{\text{NL}}(\Omega, z) = P^{(2)}(\Omega, z) = \frac{\epsilon_0}{2\pi} \int_0^{+\infty} \chi_{ijk}^{(2)}(\Omega; \omega + \Omega, -\omega) \cdot E(\omega + \Omega, z) \cdot E^*(\omega, z) d\omega. \quad (1.7)$$

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

Dans le LiNbO<sub>3</sub>, le tenseur de susceptibilité non-linéaire du second ordre comporte 27 éléments dont trois sont non nuls et indépendants, on a donc :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\Omega; \Omega + \omega, -\omega) = 2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.8)$$

égalité exprimée avec la notation contractée usuelle [82]. D'autre part, dans la mesure où, loin des pics d'absorption du cristal, la susceptibilité non-linéaire du LiNbO<sub>3</sub> varie peu sur la largeur de l'impulsion optique, on obtient :

$$P^{\text{NL}}(\Omega, z) = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(\Omega) \int_0^{+\infty} E(\omega + \Omega, z) \cdot E^*(\omega, z) \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (1.9)$$

Enfin, le coefficient non-linéaire  $d_{33}$  étant très largement supérieur aux autres éléments du tenseur, la configuration simple où le champ optique est parallèle à l'axe  $c$  du cristal permet de générer une polarisation non-linéaire induisant un champ THz maximal, telle que :

$$P^{\text{NL}}(\Omega, z) = 2\epsilon_0 d_{\text{eff}} \int_0^{+\infty} E(\omega + \Omega, z) \cdot E^*(\omega, z) \frac{d\omega}{2\pi}, \quad (1.10)$$

avec  $d_{\text{eff}} = 168 \text{ pm/V}$  [83].

Dans le domaine spectral, le champ électrique de l'impulsion pompe s'exprime sous la forme suivante [84] :

$$E(\omega, z) = E_0(\omega, 0) \cdot \exp\left\{\frac{i\omega z}{v_g}\right\},$$

avec  $v_g = \frac{\partial\omega}{\partial k}_{\omega_0}$  la vitesse de groupe de l'impulsion à la pulsation centrale  $\omega_0$  et  $E_0(\omega, 0)$  le spectre complexe de l'enveloppe à l'entrée du cristal. Celui-ci est donné par la transformée de Fourier de la fonction enveloppe, soit :

$$E_0(\omega, 0) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0(t, 0) \cdot \exp(i\omega t) dt = E_0 \sqrt{\frac{\pi}{\Gamma_p}} \cdot \exp\left\{\frac{-\omega^2}{4\Gamma_p}\right\}, \quad (1.11)$$

avec  $\Gamma_p = 2 \ln 2 / \tau_p^2$ ,  $E_0$  l'amplitude du champ pompe et  $\tau_p$  la largeur à mi-hauteur en intensité de l'impulsion optique.

En insérant ces équations dans (1.9), on obtient :

$$P^{\text{NL}}(\Omega, z) = 2 d_{\text{eff}} \epsilon_0 \cdot \exp\left\{\frac{i\Omega z}{v_g}\right\} \cdot C(\Omega), \quad (1.12)$$

où  $C(\Omega)$  est défini comme la densité spectrale d'énergie, soit, à l'aide de l'expression (1.11) :

$$C(\Omega) = \int_0^{+\infty} E(\omega + \Omega, 0) \cdot E^*(\omega, 0) \frac{d\omega}{2\pi} = \int_0^{+\infty} |E(t, 0)|^2 \cdot \exp(i\Omega t) dt = E_0^2 \sqrt{\frac{\pi}{2\Gamma_p}} \cdot \exp\left\{-\frac{\Omega^2}{8\Gamma_p}\right\}.$$

L'équation de génération de l'onde THz (1.6) se simplifie alors en :

$$\frac{\partial^2 E_{\text{THz}}(\Omega, z)}{\partial z^2} + k_{\text{THz}}^2 E_{\text{THz}}(\Omega, z) = -\frac{\Omega^2}{c^2} 2 d_{\text{eff}} \cdot \exp\left\{\frac{i\Omega z}{v_g}\right\} C(\Omega), \quad (1.13)$$

et d'après [84], la solution de cette équation est donnée par :

$$E_{\text{THz}}(\Omega, z) = 2 d_{\text{eff}} \cdot C(\Omega) \cdot \frac{\Omega^2}{c^2} \cdot \frac{iz}{k_{\text{THz}}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}} \cdot \exp\left[i\left(k_{\text{THz}}(\Omega) + \frac{\Omega}{v_g}\right) \frac{z}{2}\right] \cdot \text{sinc}\left(\Delta k \frac{z}{2}\right), \quad (1.14)$$

où  $\Delta k$  représente le désaccord de phase, défini par  $\Delta k(\Omega) = k_{\text{THz}}(\Omega) - \Omega/v_g$  (voir 1.2.2.2).

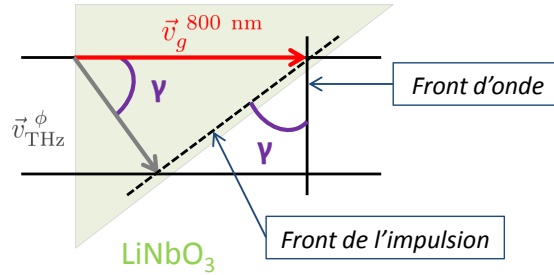
### 1.2.2.2 Condition d'accord de phase

Idéalement, l'onde THz et l'onde optique doivent se propager avec une vitesse identique pour que l'effet non-linéaire soit cumulatif. En effet, pour une propagation colinéaire, la condition

d'accord de phase s'écrit :

$$\begin{aligned}
\Delta k(\Omega) &= k_{\text{THz}}(\Omega) + k(\omega) - k(\omega + \Omega) \\
&= k_{\text{THz}}(\Omega) - \Omega \frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega} \Big|_{\omega_0} \\
&= \Omega \left[ \frac{1}{v_{\text{THz}}^\phi} - \frac{1}{v_g} \right] \\
&= \frac{\Omega \cdot n(\Omega)}{c} - \Omega \frac{n_g(\omega)}{c}
\end{aligned} \tag{1.15}$$

Satisfaire cette condition revient donc à avoir égalité entre la vitesse de groupe de l'impulsion optique  $v_g$  et la vitesse de phase  $v_{\text{THz}}^\phi$  dans le domaine THz. Dans le  $\text{LiNbO}_3$ , à une longueur d'onde de 800 nm, l'indice THz,  $n_{\text{THz}}$ , est cependant près de deux fois plus élevé que l'indice de groupe dans le visible  $n_g$  (voir le tableau 1.1). L'accord de phase n'est donc pas réalisable dans un schéma colinéaire.



**FIGURE 1.7** – Géométrie de la génération THz non colinéaire, à l'aide de la technique du front de l'impulsion incliné au sein d'un cristal de  $\text{LiNbO}_3$ . L'onde THz générée par redressement optique de l'impulsion pompe se propage selon la perpendiculaire au front de l'impulsion (en pointillés sur la figure), si celui-ci est incliné d'un angle  $\gamma$  par rapport au front d'onde. Pour que les deux impulsions restent en phase au cours de leur propagation, la projection du vecteur  $\vec{v}_g$  de l'impulsion doit être égale à la norme de la vitesse de phase  $v_{\text{THz}}^\phi$  de l'onde THz.

Pour résoudre ce problème, Hebling *et al.* ont proposé en 2002 [51] d'incliner le front de l'impulsion d'un angle  $\gamma$  judicieusement choisi. Cette méthode est illustrée sur la figure 1.7 et repose sur le raisonnement suivant : lors de sa génération par redressement optique, l'onde THz se propage à sa vitesse de phase,  $v_{\text{THz}}^\phi$ . De plus, selon le principe de Huygens, sa direction de propagation est perpendiculaire au front de l'impulsion pompe. Bien que celle-ci se propage à la vitesse de groupe  $v_g$ , sa projection selon la direction de propagation du champ THz sera égale à  $v_g \times \cos \gamma$ . Dans cette direction, et si  $v_g \geq v_{\text{THz}}^\phi$ , soit  $n_g \leq n_{\text{THz}}$ , ce qui est bien le cas dans le  $\text{LiNbO}_3$  (voir le tableau 1.1), la condition d'accord de phase (1.15) devient alors :

$$v_g \times \cos \gamma = v_{\text{THz}}^\phi. \tag{1.16}$$

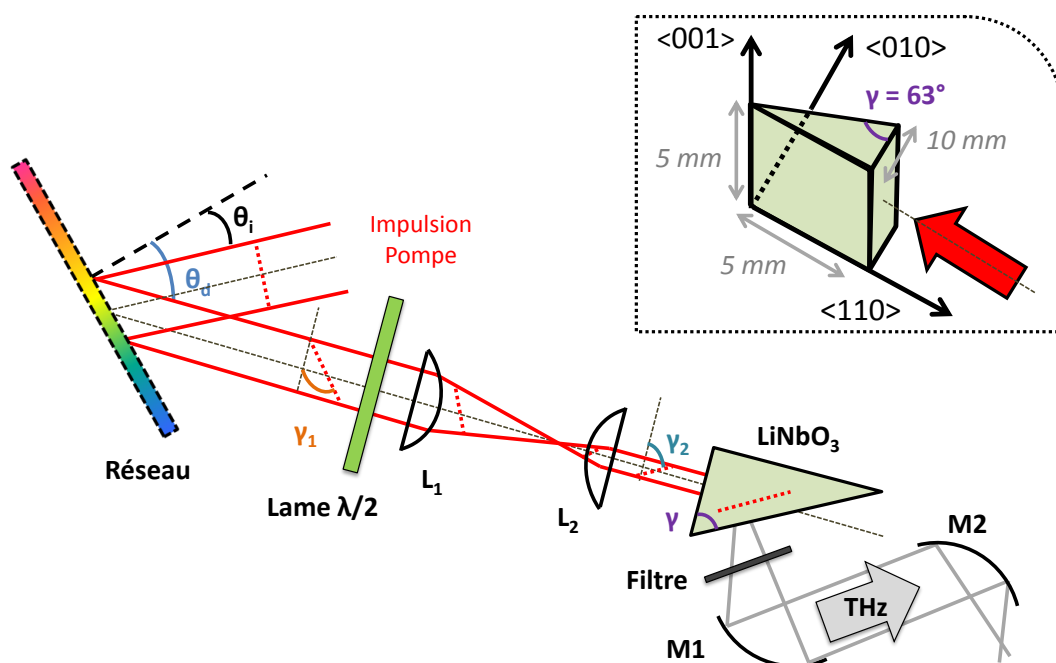
On obtient l'égalité des vitesses de phase et de groupe pour les deux impulsions dans la direction perpendiculaire au front de l'impulsion lorsque  $\gamma = 62.7^\circ$ . L'accord de phase peut alors être réalisé et la génération THz optimisée. Cependant, dans la pratique, d'autres conditions doivent être également remplies pour obtenir une génération véritablement optimale.

### 1.2.3 Mise en œuvre expérimentale

Cette section est dédiée à la mise en œuvre expérimentale de la source THz reposant sur le principe du front de l'impulsion incliné expliqué auparavant. Nous en présenterons également les performances.

#### 1.2.3.1 Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental de génération THz par inclinaison du front de l'impulsion pompe que nous avons développé au laboratoire est présenté sur la figure 1.8. Le faisceau pompe d'énergie 1.5 mJ, qui provient de la plateforme COLA décrite précédemment, est envoyé sur un réseau de diffraction, qui permet de contrôler l'inclinaison du front de l'impulsion. Une lame demi-onde permet de tourner la polarisation de l'onde optique afin qu'elle soit, comme on l'a vu précédemment, suivant la direction verticale, parallèle à l'axe  $c$  du cristal. L'impulsion est ensuite envoyée dans le cristal de  $\text{LiNbO}_3$  à l'aide de deux lentilles convergentes et génère par redressement optique le rayonnement THz. Celui-ci est polarisé verticalement et collimaté puis focalisé à l'aide de deux miroirs paraboliques hors-axe. Un filtre de plastique noir permet enfin d'éliminer les composantes optiques provenant de la pompe ou de la génération de second harmonique ayant lieu simultanément dans le cristal.



**FIGURE 1.8** – Schéma de principe de la génération THz intense par redressement optique et inclinaison du front de l'impulsion dans un cristal de  $\text{LiNbO}_3$ . La position du front de l'impulsion est représentée par le segment rouge en pointillés. Initialement perpendiculaire à l'axe optique, le passage par le réseau permet de l'incliner d'un angle  $\gamma_1$  puis le système d'imagerie par les lentilles  $L_1$  et  $L_2$  le modifie légèrement en  $\gamma_2$ , permettant enfin d'obtenir l'angle optimal  $\gamma$  au sein du cristal. L'encart donne une vue détaillée du cristal de  $\text{LiNbO}_3$  utilisé dans le cadre de cette thèse.

---

### 1.2.3.2 Choix des optiques : réseau et lentilles

En pratique, l'inclinaison du front de l'impulsion d'un angle  $\gamma$  est réalisée à l'aide d'un réseau de diffraction. Celui-ci disperse également les composantes spectrales de l'impulsion pompe et il est donc nécessaire de ré-imager le faisceau pompe sur le cristal non-linéaire. Pour une génération optimale, l'image du réseau par le système d'imagerie doit coïncider avec l'image du front incliné de l'impulsion. Ceci peut être réalisé à l'aide de différents schémas constitués d'une ou plusieurs lentilles convergentes ou de miroirs sphériques [85]. Cependant, la dispersion angulaire du réseau, alliée aux aberrations géométriques et chromatiques du système d'imagerie, peut provoquer une importante distorsion du front de l'impulsion au fur et à mesure de la propagation et diminuer l'intensité THz générée. Cette question a été étudiée méthodiquement dans le cas d'une seule lentille convergente dans [45]. Une solution proposée pour éliminer toutes les erreurs d'imagerie est de graver directement le réseau sur le cristal de  $\text{LiNbO}_3$  [85,86], et a été réalisée expérimentalement par Minami *et al.* [87]. Remarquons que cette solution a également été envisagée théoriquement pour mettre en place l'inclinaison du front de l'impulsion dans un cristal de  $\text{ZnTe}$ . En effet, à des longueurs d'onde éliminant l'absorption à deux photons dans le  $\text{ZnTe}$ , la condition d'accord de phase n'est plus respectée dans la géométrie colinéaire, et il est donc envisageable de passer à la génération par TPFS [88]. Au laboratoire, nous avons, quant à nous, utilisé la même configuration que [20], avec deux lentilles convergentes, de focales  $f_1$  et  $f_2$ .

En amont du réseau de diffraction, le front de l'impulsion est perpendiculaire à la direction de propagation de l'impulsion. La condition d'accord de phase est remplie lorsque le front de l'impulsion du faisceau pompe fait un angle  $\gamma$  avec le front d'onde dans le cristal. Le calcul de la différence de marche imposée par la diffraction du réseau permet d'obtenir l'équation :

$$\tan \gamma_1 = \frac{\lambda_0 \cdot p}{\cos \theta_d}, \quad (1.17)$$

où  $\gamma_1$  est l'angle entre le front d'onde et le front de l'impulsion après le réseau,  $p$  le nombre de traits/mm du réseau,  $\theta_d$  l'angle de diffraction du réseau au premier ordre et  $\lambda_0$  la longueur d'onde centrale de l'impulsion pompe. L'action des lentilles, caractérisées par le facteur de grandissement  $\beta = f_2/f_1$ , et celle de la réfraction à l'entrée du cristal permettent ensuite d'obtenir l'équation :

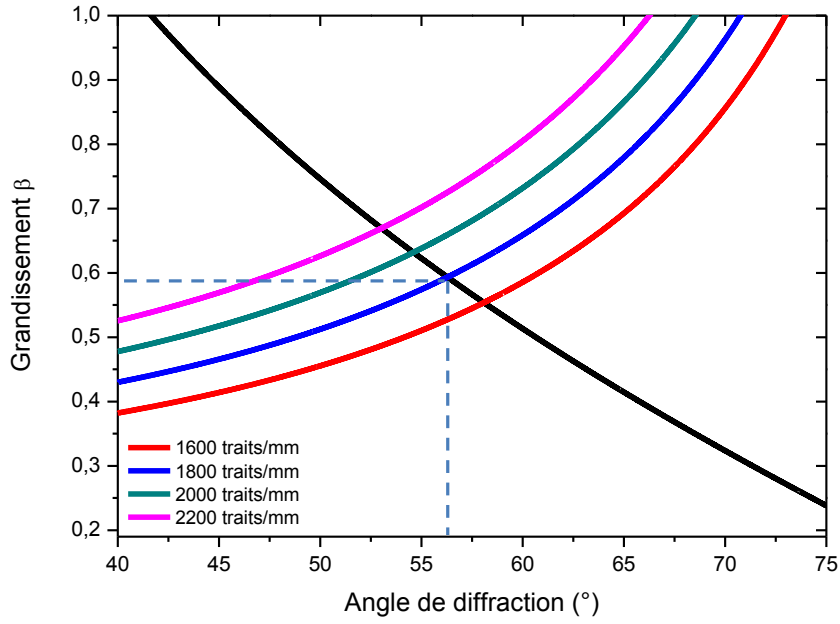
$$\tan \gamma = \frac{1}{\beta} \cdot \frac{\lambda_0 \cdot p}{\cos \theta_d}. \quad (1.18)$$

En outre, l'efficacité de génération du THz est maximale lorsque l'image du réseau par les lentilles est superposée à celle du front de l'impulsion [45]. On obtient alors un faisceau THz au profil symétrique. Cette condition géométrique s'exprime mathématiquement comme :

$$\tan \gamma = n \beta \tan \theta_d, \quad (1.19)$$

où  $n = 2.16$  est l'indice de réfraction du  $\text{LiNbO}_3$  à 800 nm [68].

La figure 1.9 permet de préciser les valeurs de grandissement optimales pour chaque réseau disponible. Nous disposons de deux réseaux de 1800 et 2000 traits/mm. Ainsi, les facteurs de grandissement optimaux sont de 0.59 et 0.63 respectivement. Nous avons finalement choisi le réseau le moins dispersif de 1800 traits/mm. Les lentilles, dont le diamètre est de 2 pouces, ont des focales respectives de  $f_1 = 125$  mm et  $f_2 = 75$  mm, permettant d'obtenir un grandissement



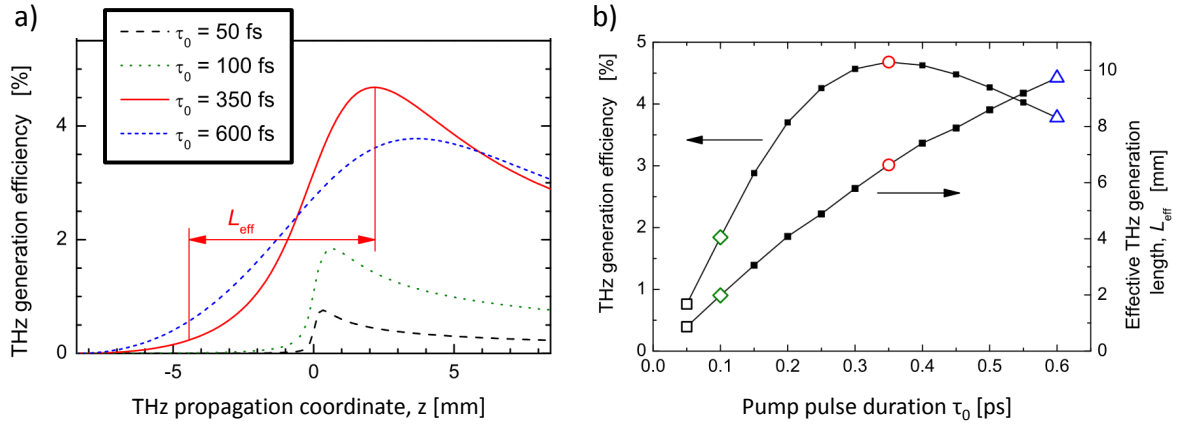
**FIGURE 1.9** – Évolution du grandissement  $\beta$  en fonction de l'angle de diffraction  $\theta_d$  du réseau. La courbe noire correspond au facteur de grandissement fixé par l'équation (1.19) qui est indépendante du pas du réseau. Les autres courbes correspondent à l'équation (1.18) et sont données pour quatre valeurs distinctes du nombre de traits/mm du réseau. La valeur du facteur de grandissement permettant une génération THz optimale est obtenue lorsque les courbes se croisent.

$\beta = 0.6$  proche du grandissement optimal de 0.59. L'angle d'incidence correspondant à  $\theta_d = 56.9^\circ$  s'obtient à l'aide de la formule des réseaux pour l'ordre 1 :  $\sin \theta_i + \sin \theta_d = \lambda_0 p$ , donnant une valeur de  $\theta_i = 37.0^\circ$ .

### 1.2.3.3 Influence de la durée de l'impulsion pompe sur l'efficacité de génération THz

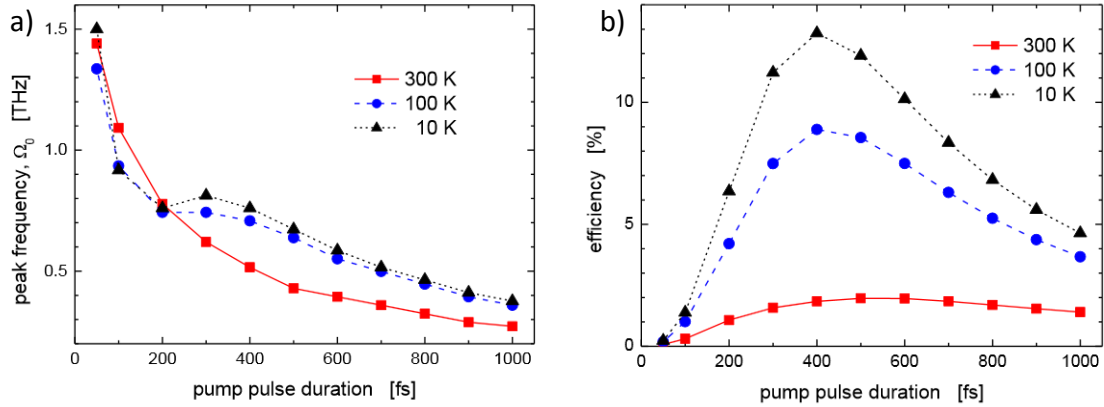
Les erreurs d'imagerie sont d'autant plus prononcées que les durées d'impulsions sont courtes. Ceci est dû à plusieurs facteurs. D'une part, plus l'impulsion est large bande, plus il devient difficile d'imager toutes les fréquences au même point au sein du cristal. Notons aussi que si l'impulsion est temporellement courte, elle sera plus diffractée lors de son passage par le réseau, ce qui la rendra d'autant plus difficile à collimater et réclamera des optiques de grande ouverture numérique. La conséquence principale de ce phénomène sera l'apparition d'aberrations sphériques, dont l'effet négatif sur la génération THz s'ajoute à celui des aberrations chromatiques décrites précédemment.

D'autre part, de la durée de l'impulsion pompe dépend également la longueur de génération effective de l'onde THz,  $L_{\text{eff}}$ , définie dans [45] comme la distance, mesurée dans la direction de propagation du faisceau THz, sur laquelle l'intensité THz augmente de 5% jusqu'à 100 % de sa valeur maximale (voir la figure 1.10-a)). En effet, plus les impulsions optiques sont courtes, plus elles vont s'élargir temporellement lors de leur propagation à cause de la dispersion de la vitesse de groupe. À 800 nm, celle-ci atteint en effet  $430 \text{ fs}^2/\text{mm}$  [89]. En conséquence, leur intensité au pic diminue au fur et à mesure de leur propagation dans le matériau, ce qui affecte considérablement l'efficacité de génération du champ THz.  $L_{\text{eff}}$  sera donc d'autant plus faible que l'impulsion pompe



**FIGURE 1.10** – Repris de [45] : a) Efficacité de génération THz en fonction de la distance de propagation du champ THz  $z$  pour différentes durées  $\tau_0$  de l’impulsion pompe. Cette figure permet également de définir la longueur effective  $L_{\text{eff}}$ . b) Dépendances du rendement de conversion THz et de la longueur effective  $L_{\text{eff}}$  en fonction de la durée  $\tau_0$ . Les longueurs effectives calculées pour les situations présentées en a) sont représentées par les points remarquables ( $\square$ ,  $\diamond$ ,  $\circ$  et  $\triangle$ ).

est courte, ainsi que le montre la figure 1.10-b).



**FIGURE 1.11** – Repris de [83] : a) Fréquence centrale du pic THz, en fonction de la durée d’impulsion, pour différentes températures. b) Efficacité de génération THz en fonction de la durée d’impulsion. Cette fois, la courbe tient compte de la réduction de l’absorption due au décalage du spectre THz vers les basses fréquences.

En revanche, si l’impulsion est très longue, la densité de porteurs libres créés par l’impulsion pompe augmente proportionnellement, ce qui conduit à un accroissement des pertes par absorption dans le cristal : on pourra se reporter à la section 1.2.1 et aux équations (1.3), (1.4) et (1.4). Au delà de  $\tau_0 = 350$  fs, la génération THz devient alors insuffisante pour compenser et dépasser les pertes par absorption (voir la figure 1.10-b)). Cependant, une étude plus poussée effectuée en 2011 a démontré que, plus la durée de l’impulsion pompe  $\tau_0$  est grande, plus la fréquence centrale du spectre généré dans le domaine THz est décalée vers les basses fréquences [83] (voir la figure 1.11). Ceci conduit à une réduction importante de l’absorption - on passe ainsi de  $\alpha = 18 \text{ cm}^{-1}$  à 1.1 THz à  $\alpha = 5.9 \text{ cm}^{-1}$  à 0.4 THz - et donc à une augmentation toute relative de la génération THz. En conclusion de ces différentes études, nous retiendrons que, à température ambiante, la durée d’impulsion optimale pour générer un champ THz intense par cette méthode est proche de 600 fs,

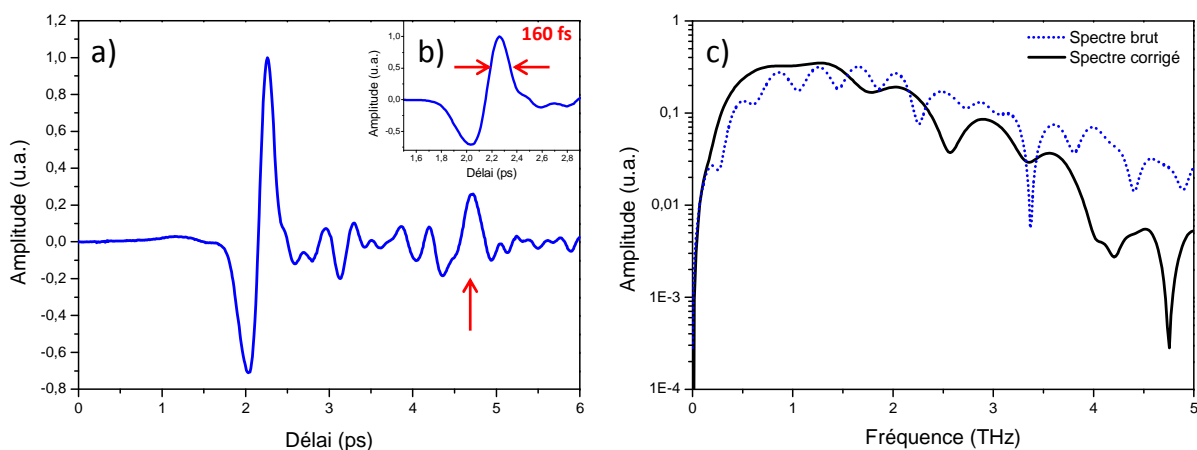


tout en soulignant le fait que cette durée a également une influence sur la forme du spectre THz.

Ainsi, la durée de l'impulsion pompe, de même que le système d'imagerie choisi pour injecter le faisceau pompe dans le cristal, sont des paramètres très influents qu'il faut absolument considérer, lors de la conception et du développement d'une source intense THz reposant sur la technique de l'inclinaison du front de l'impulsion.

### 1.2.3.4 Spécificités de la source

Après avoir examiné les différents paramètres permettant d'obtenir une génération THz optimale, nous présentons ici les caractéristiques de la source construite durant cette thèse, ainsi que les principales limitations que nous avons rencontrées. En premier lieu, nous présentons sur la figure 1.12 la forme temporelle et le spectre de l'onde THz générée dans le  $\text{LiNbO}_3$  et mesurée à l'aide d'une détection électro-optique conventionnelle [90]. Nous reviendrons par la suite sur le principe de cette détection.



**FIGURE 1.12** – a) Forme temporelle de l'impulsion THz générée par la méthode du front de l'impulsion incliné. La flèche rouge indique la présence d'une réplique, due aux réflexions de type Fabry-Pérot au sein du cristal de détection. b) Zoom sur le pic principal. La durée de l'impulsion THz à mi-hauteur du pic est de 160 fs. c) Spectre de l'impulsion obtenu par transformation de Fourier de a). Données brutes (en bleu) et données corrigées par suppression des répliques dues aux réflexions multiples (en noir).

La forme temporelle de l'impulsion THz, présentée sur la figure 1.12-a), a été enregistrée à l'aide d'un cristal électro-optique de tellure de zinc, de longueur  $L_c = 300 \mu\text{m}$ , le délai temporel correspondant au retard entre les impulsions sonde et THz. Elle est celle d'un quasi mono-cycle, de durée 360 fs à mi-hauteur du pic. On peut observer une réplique au niveau de la flèche rouge, due aux réflexions multiples à l'interface du cristal de ZnTe, que l'on peut considérer comme une cavité Fabry-Pérot. Les franges observées sur le spectre brut, représenté en pointillés bleus sur la figure 1.12-b), obtenu par transformation de Fourier du signal mesuré, sont également la manifestation de cet effet d'interférences entre le signal principal et ses répliques. Nous présentons en noir le spectre corrigé en supprimant les pics correspondants sur le signal temporel. Le spectre du signal THz généré par le front de l'impulsion incliné dans nos conditions expérimentales est compris entre 0.1 THz et 3.5 THz. Ceci s'explique notamment par l'absorption importante du cristal de  $\text{LiNbO}_3$

au-delà de 2 THz, et la présence d'un phonon optique vers 7.7 THz (on pourra se reporter à la section 1.2.1).

Nous rassemblons dans le tableau 1.3 les caractéristiques des impulsions générées par la source THz ainsi que celles de l'impulsion de pompe. Pour plus de détails sur les techniques utilisées pour mesurer les paramètres de l'impulsion THz, on pourra se reporter à la section 1.3.2.3.

	Puissance crête	Énergie	Intensité max.	Amplitude max.	Durée
<b>Laser de pompe</b>	$2.5 \times 10^{10}$ W	1.5 mJ	$1.3 \times 10^{15}$ W/cm <sup>2</sup>	$2.6 \times 10^6$ kV/cm	60 fs
<b>THz - LiNbO<sub>3</sub></b>	$1.1 \times 10^5$ W	40 nJ	$3.3 \times 10^6$ W/cm <sup>2</sup>	20 kV/cm	160 fs

**TABLE 1.3** – Métrologie du faisceau THz généré par la méthode du front de l'impulsion incliné. L'amplitude maximale est celle du champ électrique et la durée d'impulsion est déterminée comme la largeur à mi-hauteur. Tableau récapitulatif des différents paramètres mesurés.

L'efficacité de conversion énergétique  $\eta = \frac{\text{Énergie THz}}{\text{Énergie Laser}} = 2.5 \times 10^{-5}$  de notre dispositif n'est pas très élevée comparée aux performances actuelles obtenues par la méthode de l'inclinaison du front de l'impulsion (voir la figure 1.4). Plusieurs raisons, déjà évoquées précédemment, peuvent expliquer ces différences et nous donnons ici quelques pistes d'amélioration :

- Durant ce travail, nous avons restreint l'énergie envoyée sur le cristal à 1.5 mJ. Cependant, la source amplifiée nous permettrait, dans l'absolu, d'augmenter assez facilement cette énergie, au détriment des autres voies laser. Toutefois, une attention toute particulière devra être portée à ce réglage, afin de ne pas dépasser le seuil de dommage des optiques. En 2011, Hirori *et al.* ont ainsi utilisé une énergie de 4 mJ à une longueur d'onde de 800 nm, ce qui leur a permis de générer à l'aide du schéma du front de l'impulsion incliné un champ THz d'amplitude 1.2 MV/cm [20].
- Le système d'imagerie du faisceau pompe sur le cristal de LiNbO<sub>3</sub> peut causer d'importantes aberrations et erreurs, qui sont très préjudiciables à la génération THz, d'autant plus que la durée de l'impulsion pompe utilisée dans ce travail est très courte. Une solution à ce problème, envisagée dans [86], serait de graver le réseau de diffraction directement sur le cristal de LiNbO<sub>3</sub>, ce qui permettrait de complètement supprimer le dispositif d'imagerie. Cependant, elle a été réalisée récemment et ne s'est pas révélée très concluante [87].
- Le laser de pompe n'a pas une durée d'impulsion tout à fait appropriée pour la génération THz dans le LiNbO<sub>3</sub>, une alternative radicale serait donc d'en utiliser un autre, dont la durée d'impulsion serait de l'ordre de 600 fs. En outre, quitte à effectuer un tel changement, le passage à une longueur d'onde centrale de 1030 nm permettrait d'augmenter le rendement de conversion, en éliminant l'absorption à trois photons présente à 800 nm [75].
- Enfin, nous n'avons pas eu l'occasion d'utiliser un cryostat pour refroidir le cristal de LiNbO<sub>3</sub>, mais cela permettra très certainement d'augmenter l'intensité THz produite par la source.

---

Après avoir présenté et caractérisé cette première source de rayonnement THz intense, nous allons maintenant nous attacher à décrire le second dispositif développé au cours de cette thèse et basé sur la génération d'un plasma par interaction d'un champ intense bichromatique avec l'air ambiant.

## 1.3 La « source plasma » : génération THz intense par superposition et focalisation de l'onde de pompe et de son second harmonique

Le schéma de génération THz au sein d'un plasma induit par un champ à deux couleurs est aujourd'hui considéré comme la configuration optimale pour émettre des rayonnements THz intenses et à large bande spectrale, pouvant atteindre plusieurs centaines de kV/cm [62,64]. Dans la suite, nous nous intéresserons aux processus mis en jeu dans un plasma généré à partir d'impulsions femtosecondes et qui aboutissent à l'émission d'un rayonnement THz intense et très large bande.

### 1.3.1 Quelques considérations théoriques

#### 1.3.1.1 Formation d'un plasma à partir d'impulsions laser ultra-courtes

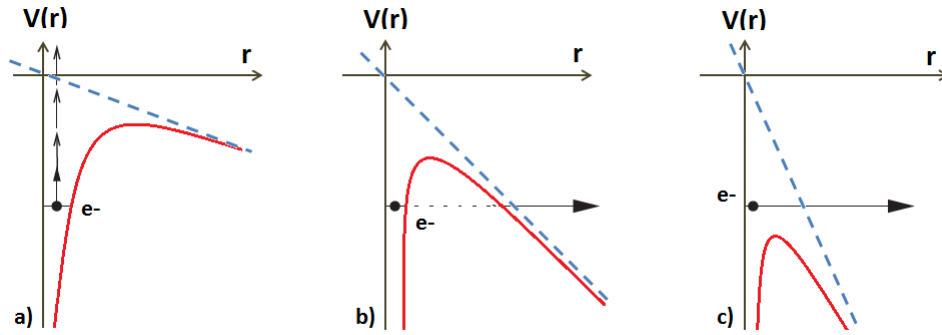
Selon l'amplitude du champ laser incident, la photo-ionisation d'un gaz par focalisation d'un laser femtoseconde peut être attribuée à une très grande variété de phénomènes physiques. En effet, si un atome est soumis à un champ électrique intense  $E$ , la barrière de potentiel qui lui est associée peut être fortement déformée : le potentiel total d'interaction noyau - électron  $V(r)$ , où  $r$  est la distance entre le noyau et l'électron, s'exprime alors en fonction du champ électrique appliqué, selon :  $V(r) = V_{\text{Coulomb}}(r) - erE$ . La hauteur et l'épaisseur de cette barrière que l'électron doit franchir pour s'échapper de l'atome sont donc modifiées, et il existe alors une probabilité non nulle que les électrons puissent quitter l'atome. Selon l'intensité du champ  $E$  ajouté, l'atome peut subir plusieurs types d'ionisations, dites multi-photoniques, tunnel ou encore par suppression de barrière et représentées sur la figure 1.13.

L'ionisation multi-photonique est prédominante aux intensités inférieures à  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, alors que les ionisations tunnel et par suppression de barrière prennent le pas à des intensités supérieures. Dans le cas de la génération THz, les intensités laser mises en jeu dépassent généralement  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et l'ionisation par effet tunnel est alors le modèle le plus approprié pour expliquer la formation d'un plasma [59].

Dans notre cas, au point de focalisation, l'intensité du laser de pompe est donnée par l'expression :

$$I = \frac{W}{S_{\text{eff}} \cdot \tau}, \quad (1.20)$$

avec  $W$  l'énergie d'une impulsion,  $\tau$  sa durée et  $S_{\text{eff}} = \pi w_0^2/2$  la surface effective du mode, avec  $w_0$  le diamètre ou « waist » du faisceau laser. Au point focal d'une lentille de focale 25 cm, on a



**FIGURE 1.13** – Processus d’ionisation d’un atome dont le potentiel d’interaction noyau - électron  $V(r)$  est plus ou moins déformé par l’application d’un champ électrique externe  $E$  : a) Ionisation multi-photonique, b) par effet tunnel et c) par suppression de barrière. Le terme de déformation dû au champ est représenté en pointillés bleus.

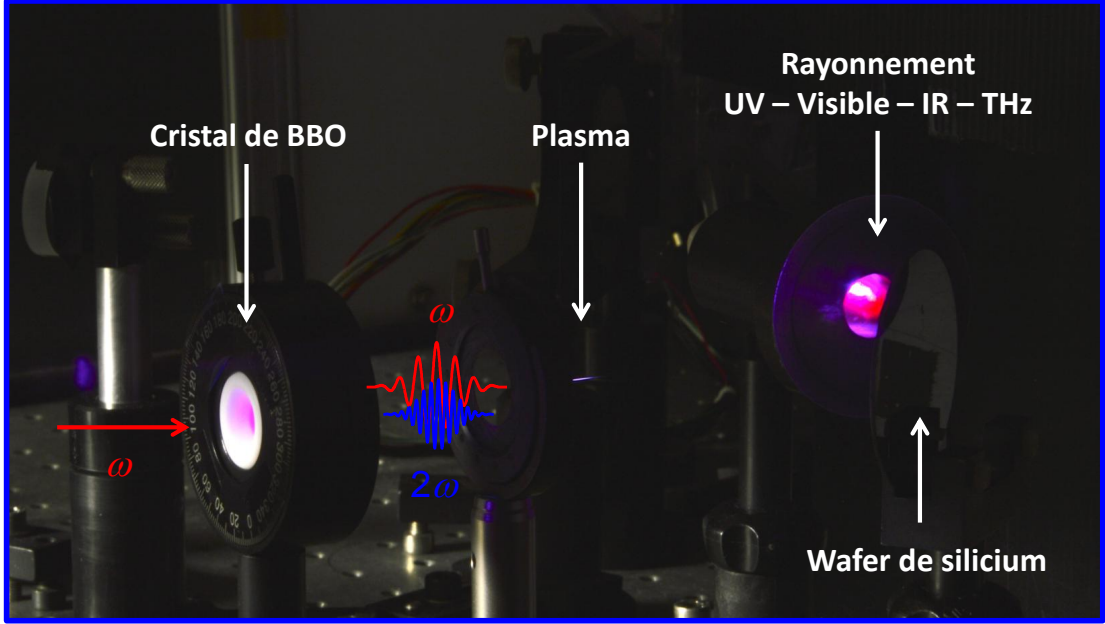
$w_0 \approx 25 \mu\text{m}$ , ce qui donne une intensité d’environ  $2.6 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  pour un laser centré à 800 nm, délivrant des impulsions d’énergie  $W = 1.5 \text{ mJ}$  et de durée  $\tau = 60 \text{ fs}$  (voir le tableau 1.2).

L’ionisation par effet tunnel a été décrite pour la première fois par Keldysh en 1961 [91] et sa théorie a ensuite été étendue par Ammosov, Delone et Krainov (ADK). Pour plus de détails, on pourra se reporter à [92]. Bien que la théorie ADK soit surtout utilisée pour les gaz rares, elle est également efficace pour décrire les molécules diatomiques comme le diazote  $\text{N}_2$ , principal constituant de l’air. Lorsqu’un champ électrique laser est appliqué à l’atome, son énergie potentielle d’interaction noyau - électron est modifiée et un électron d’énergie suffisante a une probabilité non nulle de traverser la barrière de potentiel qui le confine auprès du noyau (voir figure 1.13-b). Les électrons libérés oscillent alors dans le champ laser avant de rentrer en collision avec l’ion parent et de rayonner sur toute la gamme de longueurs d’ondes comprises entre l’ultra-violet lointain et le domaine THz (voir figure 1.14).

### 1.3.1.2 Aperçu des différents mécanismes envisagés pour la génération THz par plasma

L’une des méthodes les plus efficaces pour générer un rayonnement intense dans le domaine THz est de focaliser et mélanger un champ laser centré à la pulsation fondamentale  $\omega$  avec son second harmonique dans un gaz. Plusieurs modèles ont été introduits pour tenter d’expliquer cette émission cohérente de rayonnement THz. Initialement, Cook *et al.* [60] ont supposé que le rayonnement était dû au phénomène non-linéaire du troisième ordre de mélange à quatre ondes (Four Waves Difference Frequency Mixing - FWDM) [61, 62, 93] : deux photons aux fréquences  $\omega$  et  $\omega + \Delta\omega$  appartenant à l’onde fondamentale et un photon doublé à  $2\omega$  interagissent pour créer un photon, dont la fréquence  $\Delta\omega$  appartient au domaine THz.

Cependant, l’intensité du rayonnement THz observé expérimentalement est trop importante pour être expliquée uniquement par ce mélange à quatre ondes dans l’air pur, du fait de la valeur de la susceptibilité non-linéaire d’ordre trois,  $\chi^{(3)}$ , de l’air (pour le diazote,  $\chi^{(3)} \approx 1.7 \times 10^{-25} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$ ), trop faible pour induire une émission THz aussi importante [82]. De plus, Kress *et al.* [61] ont montré que la formation d’un plasma au point focal du laser est absolument nécessaire



**FIGURE 1.14** – Photographie du plasma (filament bleuté) généré au laboratoire par focalisation du champ obtenu par superposition des impulsions centrées à  $\omega$  et  $2\omega$ . Le rayonnement dans le domaine visible, réfléchi par le wafer de silicium dans le puits de lumière, est clairement perceptible.

pour l'émission THz. En effet, la génération n'est effective que si l'intensité d'une impulsion laser est supérieure au seuil d'ionisation de l'air, donné par :

$$I_{sat} = 3.8 \times 10^9 \cdot \frac{I_p^4}{Z^2}, \quad (1.21)$$

où  $I_{sat}$  est en  $\text{W.cm}^{-2}$ ,  $I_p$  est l'énergie d'ionisation en eV et  $Z$  est le nombre de charge de l'atome. Si on considère l'air comme constitué uniquement de diazote, la référence [94] donne une énergie d'ionisation pour  $\text{N}_2$  de 14.53 eV, ce qui se traduit par une intensité de saturation  $I_{sat, Air} \approx I_{sat, N_2} = 1.69 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ . Comme nous l'avons vu précédemment, l'intensité laser mise en jeu ici dépasse bien ce seuil.

Ces différentes observations remettaient donc en doute la validité du modèle FWDM. Toutefois, en 2006, des mesures d'énergie du champ THz effectuées par Xie *et al.* [93] et montrant sa proportionnalité à  $I_\omega^2 \cdot I_{2\omega}$  ont suggéré que le procédé FWDM était bien le mécanisme de génération, mais aussi confirmé l'existence d'un seuil en intensité. Malgré cela, l'étude concluait de nouveau que cette non-linéarité d'ordre trois, qu'elle soit due aux électrons liés des molécules du gaz, ou aux électrons libres du plasma, était trop faible pour induire des énergies THz telles que celles obtenues par exemple par Bartel *et al.* [62]. En outre, le modèle FWDM ne pouvait expliquer l'existence du seuil en intensité. Cependant, et malgré ces insuffisances, ce modèle prévoyait également la possibilité de détecter des ondes THz avec une impulsion laser par génération de second harmonique, phénomène inverse de la génération et développé avec succès sous l'appellation de détection ABCD (pour Air-Breakdown Coherent Detection) [95].

En parallèle [63], Kim *et al.* ont développé le modèle semi-classique de photo-courant transitoire (Asymmetric Transient Current - ATC), vérifié expérimentalement par la suite par plusieurs

équipes [65,96] et aujourd'hui couramment accepté par la communauté. Soulignons toutefois qu'en 2009, Karpowicz *et al.* adoptent un point de vue purement quantique pour affiner l'approche du photo-courant transitoire [97,98]. Cependant, pour des raisons de simplicité, nous ne développerons ici que le modèle du photo-courant, largement satisfaisant pour expliquer l'intensité des rayonnements THz observés. Dans ce schéma, la radiation THz est le résultat du mouvement unidirectionnel des électrons lors de leur ionisation par effet tunnel, induite par le champ laser asymétrique formé de la superposition des champs fondamental et doublé en fréquence, tous deux polarisés linéairement. Cette ionisation a lieu principalement aux abords des pics du champ laser asymétrique. Celui-ci s'exprime sous la forme :

$$\vec{E}_{as}(t) = E_{\omega}(t) \cos(\omega t) \cdot \vec{e}_x + E_{2\omega}(t) \cos(2\omega t + \theta) \cdot \vec{A}, \quad (1.22)$$

où  $E_{\omega}$  et  $E_{2\omega}$  sont respectivement les amplitudes du champ fondamental, polarisé selon la direction  $\vec{e}_x$ , et du champ doublé en fréquence.  $\theta$  désigne la phase relative entre les deux champs, et  $\vec{A} = \cos \psi \cdot \vec{e}_x + \sin \psi \cdot \vec{e}_y$ , avec  $\psi$  l'angle entre les directions de polarisation des champs à  $\omega$  et  $2\omega$ .

Le taux d'ionisation par effet tunnel est donné par l'expression [96] :

$$w(t) = 4 \omega_a \frac{E_a}{E_{as}(t)} \cdot \exp\left(-\frac{2}{3} \frac{E_a}{|\vec{E}_{as}(t)|}\right), \quad (1.23)$$

où  $\omega_a = 4.134 \times 10^{16}$  Hz est la fréquence atomique et  $E_a$  le champ atomique vu par l'électron de cœur dans un modèle de type atome d'hydrogène. La densité d'électrons dans le plasma,  $N_e(t)$ , s'obtient alors à partir du taux d'ionisation  $w(t)$  et permet d'exprimer le courant d'électrons  $\vec{J}(t)$  sous la forme :

$$\vec{J}(t) = \int_{-\infty}^t e N_e(t) \vec{v}_d(t), \quad (1.24)$$

avec  $e$  la charge élémentaire et  $\vec{v}_d(t)$  la vitesse de dérive des électrons de masse  $m_e$ , accélérés par le champ asymétrique  $\vec{E}_{as}$ . L'expression de cette vitesse est obtenue à l'aide de l'équation du mouvement (1.25), résolue ici de façon classique :

$$m_e \frac{\partial \vec{v}_d}{\partial t} = -e \cdot \vec{E}_{as} - e \cdot \vec{v}_d \times \vec{B}_{as} = -e \cdot \vec{E}_{as} - e \cdot \vec{v}_d \times \vec{E}_{as}/c, \quad (1.25)$$

où le terme dû au champ magnétique est négligeable car on considère que  $v_d \ll c$  [63].

En considérant que  $E_a \gg E_{\omega} > E_{2\omega}$  et que le nombre d'atomes ionisés est très inférieur au nombre total d'atomes, soit un degré d'ionisation inférieur à 1, le champ THz rayonné par les électrons accélérés s'exprime ensuite sous la forme :

$$E_{\text{THz}}(t) \propto \frac{\partial J}{\partial t} \propto f(E_{\omega}) \cdot E_{2\omega}(t) \sin \theta, \quad (1.26)$$

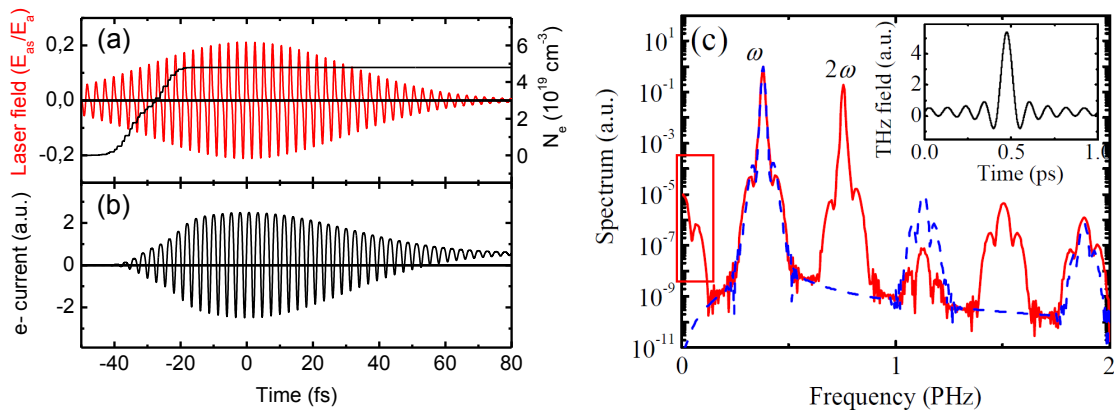
où le terme  $f(E_{\omega})$  est défini comme :

$$f(E_{\omega}) = \sqrt{\frac{E_{\omega}}{E_a}} \times \exp\left(-\frac{2}{3} \frac{E_a}{E_{\omega}} - \frac{3E_{\omega}}{E_a}\right). \quad (1.27)$$

Enfin, le spectre du champ THz s'obtient à l'aide de la transformation de Fourier, soit :

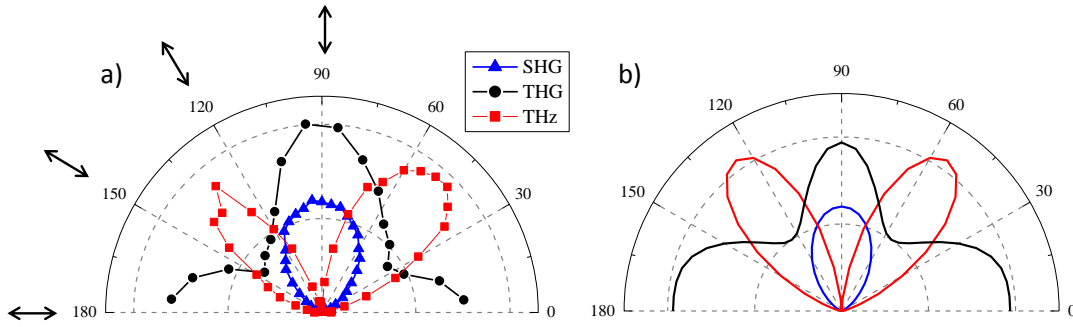
$$E_{\text{THz}}(\Omega) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial J(t)}{\partial t} \exp(i\Omega t) dt \quad (1.28)$$

Dans [63], Kim *et al.* ont effectué des simulations à partir de leur modèle, dont nous présentons ici quelques extraits, pour une meilleure compréhension du processus de génération THz intense par un plasma induit par un champ laser bichromatique. En considérant que les amplitudes des champs fondamental  $E_\omega$  et de second harmonique  $E_{2\omega}$  ne varient pas en fonction du temps, et en prenant  $E_\omega^2 = I_\omega = 1 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$  et  $E_{2\omega}^2 = I_{2\omega} = 2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ , ils ont pu calculer numériquement la densité électronique, issue de l'irradiation d'un gaz de diazote par des impulsions bicolores gaussiennes, de durée 50 fs et représentée sur la figure 1.15-a). Les auteurs ont également utilisé à la place de l'équation (1.23) une expression du taux d'ionisation plus complète, obtenue par la théorie ADK. Pour une phase relative entre les deux champs à  $\omega$  et  $2\omega$  égale à  $\theta = \pi/2$ , les figures 1.15-a) et b) présentent l'évolution en fonction du temps du champ laser asymétrique, en rouge, associée à celle du courant d'électrons en noir. On y observe l'existence d'une composante quasiment continue qui apparaît clairement à la fin de l'oscillation et qui se traduit spectralement par l'apparition d'une bande dans les basses fréquences, visible dans le rectangle rouge sur la figure 1.15-c) et couvrant le domaine fréquentiel de 0.1 à 10 THz. Par transformation de Fourier inverse, il est possible de simuler la forme temporelle du champ associé à cette bande spectrale. Celle-ci est présentée dans l'encart de la figure 1.15-c) et confirme la génération d'une impulsion d'une durée de quelques ps, induite par le plasma.



**FIGURE 1.15** – Repris de [96] : a) Densité électronique (en noir) d'un gaz de diazote ionisé par l'application du champ laser asymétrique  $E_{as}$ , ici représenté en le normalisant par rapport au champ atomique  $E_a$  (en rouge). b) Courant d'électrons  $J(t)$ , en fonction du temps. c) Spectre du champ induit par le courant électronique, à partir du champ asymétrique  $E_{as}$  (en rouge) ou d'un champ monochromatique centré à  $\omega$  (en bleu). Le rectangle rouge montre l'existence d'une composante très basse fréquence, très faible dans le cas du champ monochromatique. Enfin, l'encart représente l'évolution temporelle de cette composante basses fréquences, obtenue par transformation de Fourier inverse.

La comparaison des résultats numériques à l'expérience, développée dans la seconde partie de l'article [63] et également dans [96], démontre que le modèle du photo-courant transitoire permet d'expliquer très convenablement l'émission d'un rayonnement THz intense à partir d'un plasma induit par focalisation d'un laser femtoseconde à deux couleurs. Au contraire du modèle de FWDM, on prédit ici des énergies THz cohérentes avec ce qui est effectivement observé dans différents milieux gazeux (hélium, krypton, air...), ainsi qu'un effet de saturation de l'énergie THz avec l'augmentation de l'intensité du laser de pompe. Par ailleurs, les auteurs de [96] ont étudié la dépendance de l'émission THz en fonction de la phase relative  $\theta$  entre les deux impulsions à



**FIGURE 1.16** – Repris de [96] : Étude de l'émission THz, du second et du troisième harmoniques induits par le plasma, en fonction de l'angle de polarisation du faisceau de second harmonique de pompe, a) mesurées expérimentalement et b) simulées avec les paramètres  $I_{\omega} = 1 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} = 2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$  et  $\theta = \pi/2$ . La direction de polarisation du champ à  $2\omega$  est représentée par les flèches noires.

$\omega$  et  $2\omega$  et obtiennent des résultats cohérents avec l'expérience. Nous reviendrons rapidement sur ce point dans la section 1.3.2.2. Enfin, l'observation expérimentale de la dépendance de l'émission THz en fonction de la direction de polarisation du champ centré à  $2\omega$  lors de l'interaction des ondes au sein du plasma (voir la figure 1.16) est également très bien corrélée aux simulations numériques.

Nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental mis en place au laboratoire pour générer un champ intense THz à partir d'un plasma induit par un champ laser à deux couleurs.

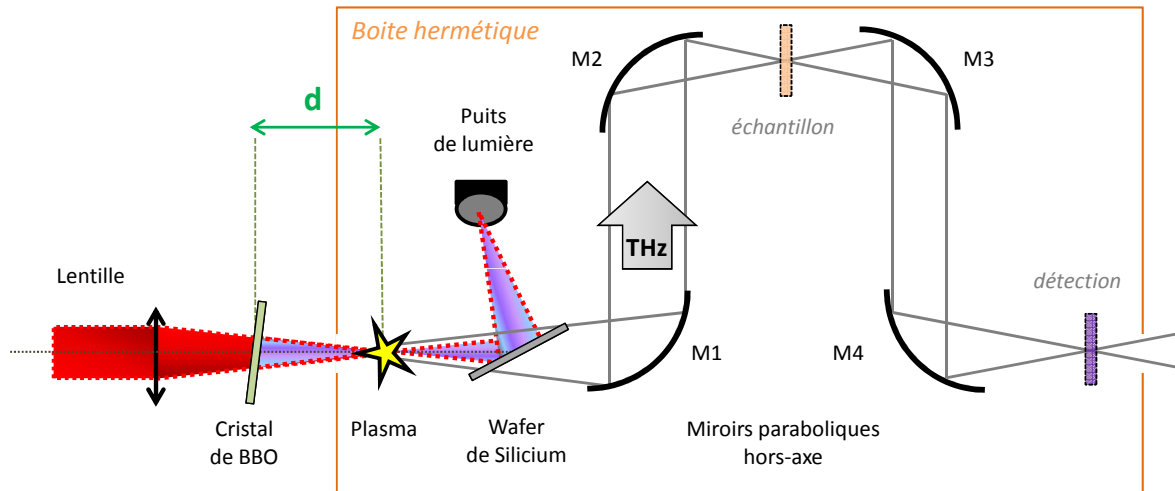
### 1.3.2 Dispositif expérimental de génération de rayonnement THz intense par plasma

#### 1.3.2.1 Montage expérimental

En sortie de l'amplificateur de la chaîne COLA, on prélève une fraction du faisceau laser : ces impulsions traversent alors une lame séparatrice 90/10 qui divise le faisceau en deux parties, respectivement appelées impulsion pompe et impulsion sonde. L'impulsion pompe, d'énergie 1.5 mJ, est focalisée par une lentille de distance focale 25 cm avant d'être doublée en fréquence par un cristal de  $\beta$ -borate de baryum (BBO), d'épaisseur égale à 100  $\mu\text{m}$ . Le mélange et la focalisation des deux ondes à  $\omega$  et  $2\omega$  génèrent alors un plasma, dont l'aspect est celui d'un filament blanc d'environ 5 mm de long, à l'origine du rayonnement THz.

Afin d'isoler le rayonnement THz de toutes les autres radiations générées lors de l'interaction laser - matière, nous avons placé après le filament un wafer de Silicium, à l'angle de Brewster, qui réfléchit les fréquences visibles et infrarouges, et laisse passer le rayonnement THz. Le faisceau ainsi produit étant divergent, il est nécessaire de le collimater et de le focaliser à l'aide de quatre miroirs paraboliques hors d'axe, de distance focale 15 cm, jusqu'au cristal de détection (voir figure 1.17). Ce montage peut être utilisé directement pour des applications en spectroscopie TDS-THz, en plaçant l'échantillon à étudier au point focal du deuxième miroir. Le dispositif tout entier est placé dans une caisse de plexiglas, alimentée par un flux stationnaire d'air sec. Ceci permet





**FIGURE 1.17** – Schéma de principe du dispositif expérimental de génération THz par mélange à deux couleurs et focalisation en atmosphère contrôlée (humidité inférieure à 0.1%).

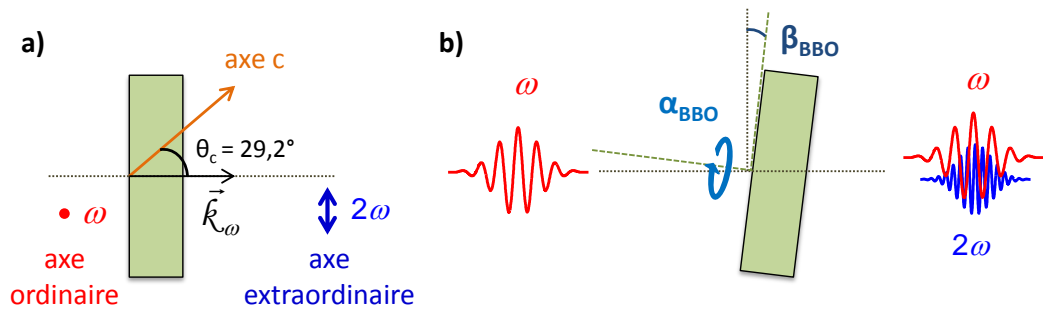
d'éliminer du large spectre THz de la source les raies d'absorption dues à la vapeur d'eau présente dans l'air ambiant.

### 1.3.2.2 Génération du second harmonique (SHG) par un cristal de BBO

Avant de générer le plasma, le faisceau laser femtoseconde à la pulsation  $\omega$ , polarisé linéairement et horizontalement, est doublé en fréquence par passage dans un cristal non-linéaire de BBO, de structure cristalline rhomboédrique et de groupe de symétrie 3m. Le BBO est transparent entre 200 nm et 3  $\mu\text{m}$ , possède une biréfringence axiale négative et est très largement utilisé pour le doublage en fréquence dans la gamme de longueur d'onde allant de 400 nm à 3500 nm. La génération du second harmonique que nous considérerons en premier lieu est de type I, *i.e.* deux ondes incidentes centrées à  $\omega$  et orientées selon l'axe ordinaire créent une onde à  $2\omega$  orientée selon l'axe extraordinaire (voir la figure 1.18). Le cristal de BBO est donc taillé à  $29.2^\circ$  par rapport à son axe  $c$  pour obtenir un accord de phase optimal à 800 nm. Cependant, optimiser la génération du champ THz intense nécessite de modifier l'orientation du cristal de BBO par rapport à l'axe de propagation de l'onde de pompe.

En pratique, trois paramètres (voir la figure 1.17) permettent d'optimiser la génération THz :

- la distance entre le cristal de BBO et le point focal de la lentille, notée  $d$ , contrôle le paramètre  $\theta$ , défini à la section 1.3.1.2 comme la phase relative entre les deux impulsions à  $\omega$  et  $2\omega$  au sein du plasma. L'influence de cette distance  $d$  sur l'intensité du rayonnement THz a été mesurée et calculée numériquement par Kim *et al.* dans [63] et nous la reproduisons sur la figure 1.19-a). Le comportement oscillatoire est dû à la dispersion de l'air pour les deux ondes à  $\omega$  et  $2\omega$  et est également observé dans [64]. En effet, la phase  $\theta$  dépend de la différence des indices de réfraction de l'air pour chacune des deux fréquences centrales, selon l'expression  $\theta = \omega(n_\omega - n_{2\omega})d/c + \theta_0$ , où  $\theta_0$  est le déphasage à la sortie du BBO. La distance  $d$  optimale est donc un compromis entre la conversion énergétique la plus efficace



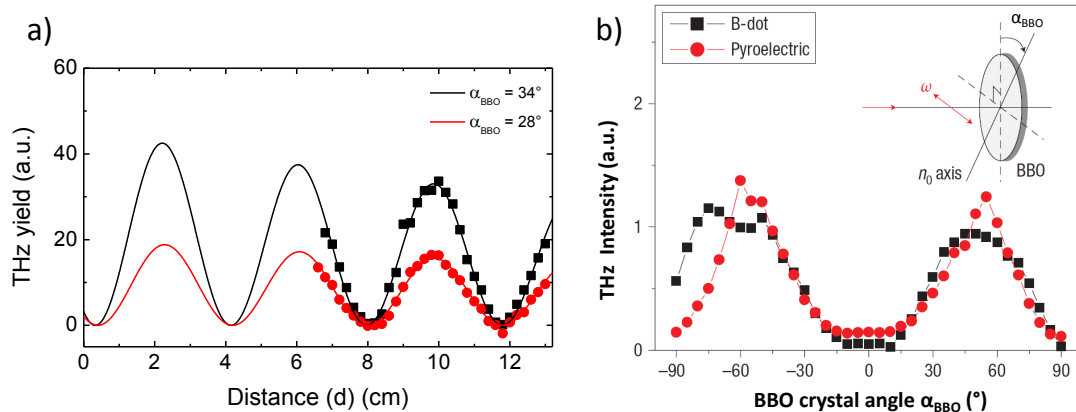
**FIGURE 1.18** – a) Géométrie du BBO, cristal uniaxe négatif : le cristal est taillé de façon à ce que l'angle  $\theta_c$  soit de  $29,2^\circ$  pour un accord de phase de type I optimal. b) On définit les paramètres  $\alpha_{BBO}$  et  $\beta_{BBO}$  permettant d'optimiser la génération THz induite par plasma.

et la nécessité de préserver l'état du cristal de BBO, qu'une intensité laser trop intense peut endommager. Dans notre cas, la distance  $d$  optimale est d'environ 4–5 cm. Le rayonnement THz généré est alors polarisé linéairement et horizontalement, comme l'impulsion à  $\omega$ .

- L'angle azimutal du cristal, noté  $\alpha_{BBO}$  et défini comme étant l'angle entre l'axe ordinaire du cristal de BBO et la direction de polarisation du faisceau pompe (voir la figure 1.19), permet d'ajuster le rapport des amplitudes des deux champs à  $\omega$  et  $2\omega$ , ainsi que la direction de polarisation du champ à  $2\omega$ . Son influence sur la génération THz est représentée sur la figure 1.19-b). La condition d'accord de phase de type I est réalisée lorsque l'onde fondamentale est polarisée selon l'axe ordinaire du cristal, soit  $\alpha_{BBO} = 90^\circ$ . La polarisation à  $2\omega$  générée en sortie du cristal est alors perpendiculaire à la polarisation de l'onde fondamentale. Cependant, le modèle du photo-courant et l'expérience de la référence [63] indiquent que la génération THz n'est pas optimale pour cette configuration, mais pour un angle  $\alpha_{BBO} = 55^\circ$ , ainsi qu'on peut le voir sur la figure 1.19-b).
- L'angle d'inclinaison du cristal de BBO par rapport à la perpendiculaire à l'axe optique, défini sur la figure 1.18 et noté  $\beta_{BBO}$ , permet enfin de contrôler l'efficacité de génération du second harmonique [64] : en effet, incliner le cristal affecte l'angle entre l'axe ordinaire du cristal et la direction de polarisation du champ de pompe à  $\omega$ , et donc la longueur d'onde pour laquelle la condition d'accord de phase pour la SHG est satisfaite. Kim *et al.* ont ainsi montré que la génération THz est maximisée lorsque le cristal est incliné d'un angle  $\beta_{BBO} = 1^\circ$ . Ce réglage est à la fois particulièrement efficace (augmentation de près de 60% de la génération THz) et très délicat, puisqu'il influe également sur l'efficacité de génération du second harmonique, ce qui peut conduire à une réduction drastique du rayonnement THz.

Ces trois paramètres sont malgré tout facilement ajustables expérimentalement. Notre dispositif peut également être amélioré en augmentant l'intensité du laser de pompe, jusqu'à un certain point puisque l'énergie THz atteint rapidement un seuil de saturation. Pour plus de détails sur cet effet, on pourra se reporter aux différentes publications [59–62, 67, 93].

Remarquons enfin que la plupart des dispositifs expérimentaux adoptent une configuration pour laquelle l'impulsion laser est alignée sur le cristal de BBO et le plasma (voir la figure 1.14). Ce schéma, où les directions de propagation de l'onde fondamentale et du second harmonique sont alignées avec celle de l'onde THz, ne permet de contrôler ni les polarisations des deux ondes à



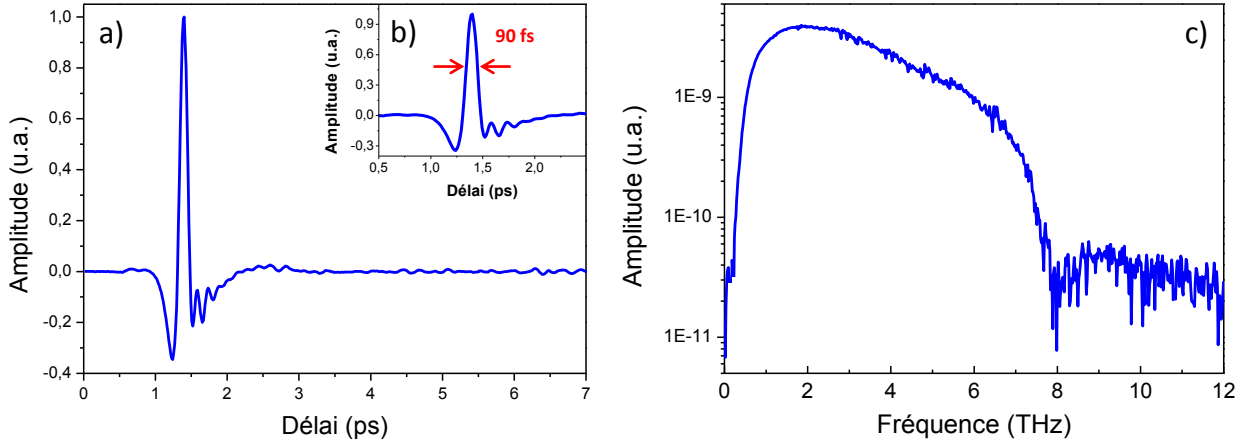
**FIGURE 1.19** – Extrait de [63] et [96] : a) Intensité THz en fonction de la distance  $d$  entre le plasma et le cristal de BBO, pour deux valeurs de l’angle  $\alpha_{\text{BBO}}$  fixées. b) Intensité du champ THz en fonction de l’angle  $\alpha_{\text{BBO}}$ , mesurée à l’aide soit d’un détecteur pyroélectrique (en rouge), soit d’une sonde à champ magnétique B-dot (en noir).

$\omega$  et  $2\omega$ , ni leur coïncidence temporelle, comme le ferait un système où la SHG serait produite indépendamment sur une voie puis recombinaison ensuite à la sortie du BBO avec l’onde fondamentale [93,99]. En revanche, le schéma linéaire n’est pas soumis aux instabilités micrométriques résultant des vibrations mécaniques incohérentes des deux voies, pouvant être à l’origine d’un retard de phase instable entre les deux ondes, affectant fortement la génération THz. D’autre part, Minami *et al.* ont récemment amélioré les performances de la génération THz au sein d’un plasma, en insérant une lame compensatrice après le BBO, qui permet de modifier l’état de polarisation de l’onde fondamentale, sans affecter celui de l’onde doublée en fréquence [67]. Remarquons enfin qu’il est envisageable de modifier la fréquence centrale du champ THz généré par le plasma, simplement en translatant celle du champ généré à  $2\omega$  dans le BBO. On pourra se référer à [64] pour plus de détails.

### 1.3.2.3 Spécificités de la « source plasma »

Dans le cadre de cette thèse, nous avons caractérisé notre source THz basée sur le plasma. Par détection électro-optique dans un cristal de phosphore de gallium (GaP) coupé selon l’axe  $\langle 110 \rangle$  et de longueur  $L_c = 200 \mu\text{m}$  (voir la section 1.4), nous avons mesuré la forme temporelle du signal THz, dont nous avons déduit le spectre par une transformation de Fourier.

Les signaux obtenus, où l’on remarque de faibles oscillations, signe de la présence résiduelle des raies d’absorption de l’eau, sont représentés sur la figure 1.20. On constate que le spectre s’interrompt brusquement pour des fréquences supérieures à 8 THz : ceci est dû à l’existence d’un phonon centré à 11 THz, présent dans le cristal de détection, qui absorbe fortement le rayonnement THz (voir la section 1.4). Cependant, il est bien connu que le spectre des sources intenses générées par plasma peut s’étendre jusqu’à environ 100 THz [64]. Pour les études menées dans le cadre de cette thèse, on considérera que la source plasma développée au laboratoire a une bande spectrale continue de 0.1 THz jusqu’à environ 8 THz, avec une durée d’impulsion à mi-hauteur d’environ 90 fs.



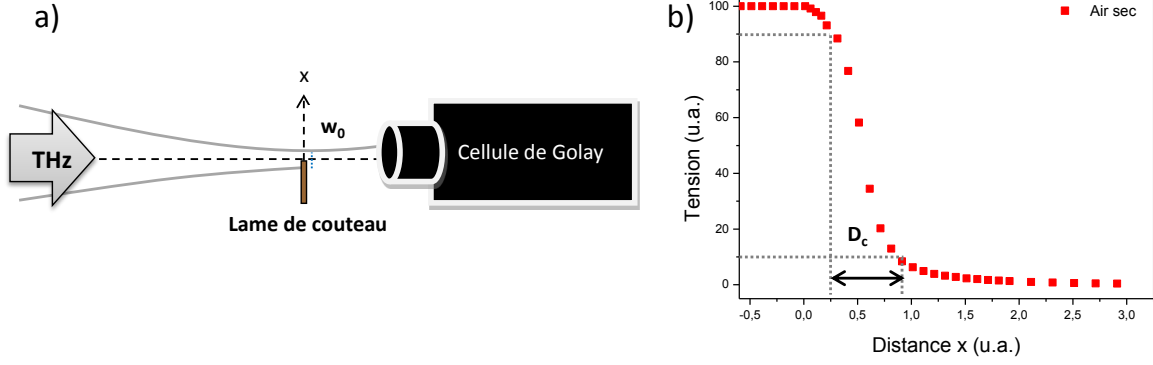
**FIGURE 1.20** – a) Forme temporelle de l’impulsion THz mesurée par détection électro-optique. b) Zoom sur le pic principal, de durée à mi-hauteur 90 fs. c) Spectre de l’impulsion déduit par transformation de Fourier de a).

	Puissance crête	Énergie	Intensité	Amplitude	Durée
<b>Laser de pompe</b>	$2.5 \times 10^{10}$ W	1.5 mJ	$2.6 \times 10^{15}$ W/cm <sup>2</sup>	$2.6 \times 10^6$ kV/cm	60 fs
<b>THz / Plasma</b>	$2 \times 10^6$ W	180 nJ	$5.7 \times 10^7$ W/cm <sup>2</sup>	80 kV/cm	90 fs

**TABLE 1.4** – Métrologie du faisceau THz généré par focalisation et doublage en fréquence d’un faisceau pompe centré à 800 nm. L’amplitude correspond à l’amplitude du champ électrique et la puissance crête est égale à la valeur maximale de la puissance instantanée, définie à l’équation (1.31). La durée est, quant à elle, définie comme la largeur à mi-hauteur de l’impulsion. Tableau récapitulatif des différents paramètres mesurés.

Le tableau 1.4 rassemble les différents paramètres caractéristiques de cette source, estimés dans le GaP, au point focal du miroir M4. On y rappelle également à titre de comparaison les caractéristiques du laser de pompe. Pour le champ THz, les valeurs des différents paramètres ont été obtenus de la façon suivante :

- Un détecteur pyroélectrique calibré a permis de mesurer directement la puissance moyenne du faisceau THz et d’en déduire l’énergie de celui-ci.
- Au point focal, la méthode de la lame de couteau [100] a permis d’estimer le diamètre moyen du faisceau THz à environ  $w_0 \approx 1.5$  mm. Elle consiste à balayer une lame de couteau au travers du faisceau tout en détectant l’intensité de celui-ci à l’aide d’un détecteur, ici une cellule de Golay (voir la figure 1.21-a)). En considérant les seuils standards de 10% et 90% du signal maximal [101], le profil transverse de l’intensité, présenté sur la figure 1.21-b), permet alors d’accéder directement au waist du faisceau  $w_0$ , à l’aide de la relation  $w_0 \approx 0.78 \cdot D_c$ , où  $D_c = |x_{90\%} - x_{10\%}|$ . Pour plus de détails, on se référera à [102].
- À partir de la valeur de l’énergie obtenue précédemment et de la forme temporelle du champ THz, il est possible de déduire l’amplitude maximale du champ électrique [103]. On écrit



**FIGURE 1.21** – Illustration de la mesure du diamètre d'un faisceau laser par la méthode de la lame de couteau, tirée de [102]. a) La lame de couteau est déplacée dans la direction transverse au faisceau pendant que l'intensité transmise est mesurée avec une cellule de Golay. b) Profil d'intensité transverse lorsque la lame est placée au point focal du miroir M4.

mathématiquement le champ THz sous la forme :

$$E(r, t) = E_0 \cdot g(t) \cdot e^{-r^2/w_0^2}, \quad (1.29)$$

où  $g(t)$  est la forme temporelle du champ THz normalisée par son maximum  $E_0$ . Le vecteur de Poynting s'exprime alors sous la forme :

$$\Pi(r, t) = \epsilon_0 c n E^2(r, t), \quad (1.30)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction du milieu. La puissance instantanée est égale au flux du vecteur de Poynting,  $\Pi(r, t)$ , à travers la surface du faisceau :

$$P(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi(r, t) \cdot dS = \int_0^{2\pi} d\theta \cdot \int_0^{+\infty} r \cdot dr \cdot \Pi(r, t) = \frac{\pi \omega_0^2}{2} \cdot \epsilon_0 c n E_0^2 g^2(t), \quad (1.31)$$

et finalement, l'énergie par impulsion  $W$  du faisceau est égale à :

$$W = \int_{-\infty}^{+\infty} P(t) \cdot dt. \quad (1.32)$$

Après calculs, on obtient l'expression :

$$E_0 = \sqrt{\frac{2 \cdot Z_0 W}{\pi \cdot n \cdot w_0^2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} g^2(t) dt}}, \quad (1.33)$$

où  $Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}$  est l'impédance caractéristique du vide. On soulignera également la possibilité de mesurer directement l'amplitude du champ électrique THz à l'aide de la détection électrooptique, technique que nous aborderons plus précisément à la section suivante et dont les résultats sont cohérents avec cette méthode.

– Enfin, l'intensité du champ électrique THz se déduit de l'équation précédente à l'aide de :

$$I = \epsilon_0 \cdot c \cdot n \cdot E_0^2.$$

---

Ainsi, cette source de rayonnement intense THz, développée au laboratoire, possède une efficacité énergétique de conversion  $\eta = \frac{\text{Énergie THz}}{\text{Énergie Laser}} = 1.2 \times 10^{-4}$ . Elle se situe donc dans la moyenne des performances généralement obtenues avec cette technique.

Après avoir illustré et caractérisé les deux sources d'impulsions THz intenses développées au cours de la première partie de cette thèse, nous allons décrire le principe de la détection de ces impulsions par effet électro-optique.

## 1.4 Détection d'un champ THz par ellipsométrie

Lorsqu'un champ statique ou quasi-statique externe se propage dans un matériau, il peut être à l'origine d'une polarisation non-linéaire, qui modifie les propriétés optiques du milieu. Lorsque la biréfringence induite est directement linéaire par rapport au champ externe, ce phénomène non-linéaire du second ordre est dit effet Pockels, du nom du physicien qui l'a longuement étudié dès 1893. Avec l'avènement de la génération de rayonnements d'une durée de quelques picosecondes dans les années 80 [104], cette caractéristique particulière a fait de l'effet Pockels l'un des fondamentaux de la détection d'impulsions THz générées par lasers à impulsions ultracourtes.

Après un bref état de l'art des techniques de détection d'un champ THz, nous aborderons, en premier lieu, la description mathématique de l'effet Pockels induit par un champ THz dans des cristaux électro-optiques de type zinc-blende. Nous décrirons ensuite l'une des techniques usuelles permettant d'extraire l'évolution temporelle du champ THz, en l'occurrence l'ellipsométrie. Nous la désignerons par la suite sous l'acronyme DEOC, pour détection électro-optique conventionnelle.

### 1.4.1 État de l'art de la détection d'une impulsion THz

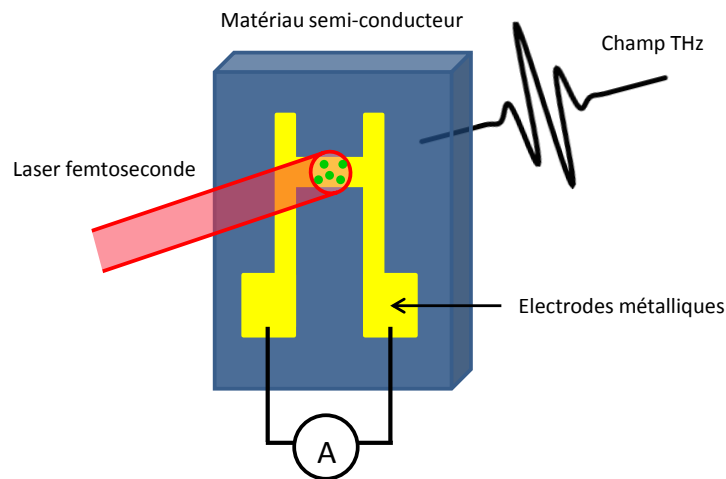
On dispose aujourd'hui de différentes méthodes qui permettent de détecter avec succès un rayonnement du domaine THz. Un premier type d'instruments, auquel appartiennent par exemple les détecteurs thermiques, pyroélectriques, les bolomètres [105, 106] ou encore les cellules de Gollay [107], permet d'enregistrer en continu la puissance transportée par le rayonnement électromagnétique. Toutefois, les mesures intensimétriques effectuées avec ces outils impliquent, par définition, une perte de l'information sur la forme temporelle du champ électrique THz.

Actuellement, l'usage des lasers impulsions ultracourts pour la génération et la détection d'impulsions THz permet d'obtenir l'information à la fois sur la phase et l'amplitude du champ. L'utilisation d'une impulsion femtoseconde décalée spatialement par rapport à l'impulsion à l'origine du champ THz permet en effet d'échantillonner celui-ci sur une fenêtre temporelle de détection bien définie. En règle générale, cette technique, à la base de la spectroscopie résolue en temps, est implémentée de la manière suivante. Le faisceau laser est tout d'abord séparé en deux parties. La première est appliquée à la génération du faisceau THz (on se reportera aux sections précédentes pour plus de détails) alors que la seconde portion du faisceau, dit faisceau sonde, est décalée au moyen d'une ligne à retard. Á un déplacement de la ligne de  $2 \mu\text{m}$  correspond ainsi un décalage temporel de 13.33 fs entre deux points de mesures successifs. Une transformation de Fourier permet ensuite d'obtenir l'information sur le spectre. En résumé, il est donc possible de résoudre

---

l'évolution de l'onde THz au cours du temps, à l'aide d'un récepteur pertinemment choisi.

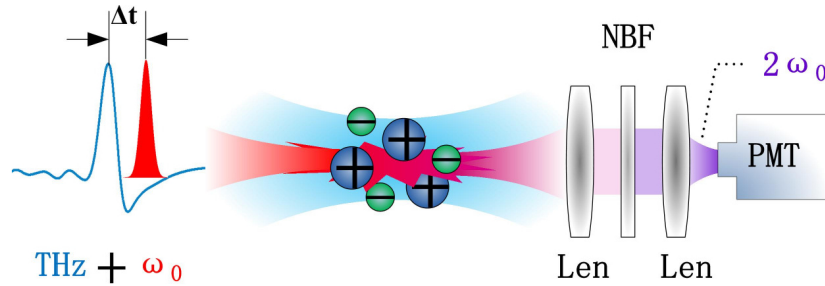
Parmi les systèmes permettant d'acquérir la forme temporelle d'un champ THz, les antennes photoconductrices (PCA) [108] sont très souvent utilisées comme récepteurs. Il est à noter qu'elles sont utilisées avec des oscillateurs lasers non amplifiés, et ne sont généralement pas aptes à détecter des champs THz intenses. Nous présentons le schéma de principe de ce dispositif sur la figure 1.22. Elles sont constituées de différentes couches de matériau semi-conducteur, sur lequel sont gravées des électrodes métalliques (en jaune). Le faisceau optique de sonde, incident sur la région active de la PCA, entraîne la création de porteurs de charge (en vert) qui sont accélérés par le champ THz. La mesure de ce courant électrique, dont l'amplitude est directement proportionnelle à celle du champ THz incident, permet alors de reconstruire directement la forme temporelle du champ, une ligne à retard permettant de décaler les impulsions sonde et THz au fur et à mesure de l'acquisition. Pendant un temps, la bande spectrale des PCA est restée relativement limitée par la durée de vie des porteurs, mais aujourd'hui, il est possible d'effectuer une détection très large bande à l'aide d'un tel dispositif [109].



**FIGURE 1.22** – Schéma de principe d'une antenne photoconductrice utilisée pour la détection d'un champ THz : les porteurs de charge créés par le laser incident sont accélérés par le champ THz et le courant électrique généré est proportionnel à ce dernier.

Par ailleurs, la technique dite ABCD pour « Air Biased Coherent Detection » est également très performante pour la détection résolue en temps d'un champ THz [110]. Son principe est représenté sur la figure 1.23. En 2006, Dai *et al.* démontrent que le procédé qui mène à la génération d'un champ THz intense à partir d'un plasma peut être utilisé en sens inverse pour la détection d'un champ THz [95]. Un signal de second harmonique, proportionnel à l'amplitude du champ THz, est généré par l'interaction non-linéaire du champ THz avec le champ sonde à la pulsation  $\omega_0$ , dans un plasma induit par ce dernier. Mesuré à l'aide d'un détecteur en intensité comme, par exemple, un tube photomultiplicateur, le signal détecté sera proportionnel à l'intensité THz. Dans ce cas, la détection est incohérente et il n'est pas possible d'obtenir l'information à la fois sur la phase et l'amplitude. Toutefois, dès lors qu'on introduit dans le dispositif un champ, dit oscillateur local, dont la fréquence est peu éloignée de celle du signal de second harmonique, tous deux peuvent interférer entre eux. Mathématiquement, cette approche hétérodyne se traduit alors par l'apparition d'un terme croisé dans l'expression de l'intensité de second harmonique, proportionnel au champ THz et dont la mesure permet à la détection de devenir cohérente. Lors

de la première démonstration expérimentale du procédé, pour laquelle la longueur d'onde de sonde était de 800 nm, le rôle de l'oscillateur local était joué par la composante optique centrée à 400 nm, appartenant au continuum de lumière blanche généré par auto-modulation de phase en sortie du plasma. En pratique, l'oscillateur local provient plus généralement de l'application d'un champ électrique externe au point focal de l'impulsion sonde, qui induit la génération d'un champ de second harmonique [111]. La bande spectrale de détection de la technique ABCD peut atteindre la centaine de THz pour des impulsions extrêmement courtes, et elle est uniquement limitée par la durée de l'impulsion optique [59, 98]. Cependant, la méthode requiert d'utiliser une intensité de sonde plutôt élevée, en comparaison des antennes photoconductrices par exemple.



**FIGURE 1.23** – Schéma de principe de la détection d'un champ THz par la méthode ABCD, extrait de [112]. L'interaction non-linéaire du champ THz et de l'impulsion sonde au sein du plasma génère un champ de second harmonique. Son intensité est proportionnelle au champ THz et le faisceau à  $2\omega_0$ , après avoir été collimaté par les lentilles et filtré, est détecté par le tube photomultiplicateur (PMT). Les lentilles sont désignées par « Len » et le filtre à bande passante étroite est désigné par l'acronyme NBF, pour « Narrow Band Filter ».

Enfin, une dernière méthode est celle de la détection électro-optique, très performante dans le domaine des hautes fréquences [113] et largement mise en œuvre au cours de cette thèse. La technique de détection électro-optique peut être réalisée de différentes manières [90, 114, 115], à l'aide d'impulsions étirées ou non [44, 116], mais elle repose toujours sur le même principe : le passage du champ THz dans un matériau électro-optique induit, par effet Pockels, une biréfringence d'autant plus forte que le champ THz est intense. C'est cette variation de l'indice de réfraction du milieu qui sera ensuite détectée par l'intermédiaire d'un faisceau optique, dit faisceau sonde.

## 1.4.2 Action d'un champ électrique sur un milieu matériel

Le vecteur déplacement électrique  $\vec{D}$ , qui apparaît dans les équations de Maxwell au sein d'un milieu matériel, décrit les effets d'un champ électrique  $\vec{E}$  sur la matière. Dans [15], on définit le tenseur de permittivité  $\hat{\epsilon}$  du milieu par la relation :

$$\vec{D} = \hat{\epsilon} : \vec{E} = \epsilon_0 \cdot \hat{\epsilon}_r : \vec{E}, \quad (1.34)$$

où  $\vec{E}$  représente le champ électrique,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide et  $\hat{\epsilon}_r$  le tenseur de permittivité diélectrique relative. Il existe une base orthonormée  $(\vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$ , dite principale, dans laquelle cette équation peut s'exprimer sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_3 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix}.$$



À partir de  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$ , on peut définir l'équation dite de l'ellipsoïde des indices, à laquelle satisfont les composantes de  $\vec{D}$  et qui s'écrit sous la forme [117] :

$$\frac{u_1^2}{n_1^2} + \frac{u_2^2}{n_2^2} + \frac{u_3^2}{n_3^2} = 1,$$

où

$$\vec{u} = \sum_i u_i \vec{e}_i = n \cdot \frac{\vec{D}}{\|\vec{D}\|},$$

avec  $n = \sqrt{n_1^2 + n_2^2 + n_3^2}$  et  $n_i = \sqrt{\epsilon_{r,i}}$  est l'indice de réfraction du milieu selon la direction  $\vec{e}_k$ . En définissant le tenseur d'imperméabilité par l'expression  $\hat{\eta} = \epsilon_r^{-1}$ , l'ellipsoïde des indices peut alors s'écrire sous la forme :

$$\vec{u} \cdot \hat{\eta} \cdot \vec{u} = 1.$$

Remarquons que, dans le cas d'un milieu isotrope et homogène, et en l'absence d'un champ électrique, on a égalité des  $\epsilon_{r,i}$ , et le tenseur d'imperméabilité,  $\hat{\eta}$ , peut être remplacé par le scalaire  $\epsilon_r^{-1}$ , soit :

$$\hat{\eta} = \epsilon_r^{-1} \cdot \mathbf{I}, \quad (1.35)$$

où  $\mathbf{I}$  est la matrice unité. Cependant, dans le cas où une impulsion appartenant au domaine THz, de champ électrique  $\vec{E}_{\text{THz}}$ , se propage à travers ce milieu, son action se traduit par une modification des composantes du tenseur d'imperméabilité  $\hat{\eta}$  du milieu. Les effets électro-optiques restant assez faibles, l'expression de  $\hat{\eta}$  devient alors, à l'ordre 2 :

$$\hat{\eta}(\vec{E}_{\text{THz}}) = \epsilon_r^{-1} \cdot \mathbf{I} + \hat{r} \cdot \vec{E}_{\text{THz}} + \hat{s} \cdot \vec{E}_{\text{THz}} \cdot \vec{E}_{\text{THz}}, \quad (1.36)$$

où l'on a introduit les tenseurs électro-optiques linéaire  $\hat{r}$  et non-linéaire  $\hat{s}$ , correspondant respectivement à l'effet Pockels et à l'effet Kerr. Remarquons que, selon [118–120], les liens entre les différents tenseurs  $\hat{r}$ ,  $\hat{d}$  et  $\hat{\chi}^{(2)}$  sont donnés par :

$$\hat{d} = \frac{1}{2} \chi^{(2)} \iff \hat{d}_{ijk} = \frac{1}{2} \chi^{(2)}_{ijk},$$

et

$$\hat{d}_{ijk} = -\frac{1}{4} n_i^2 n_j^2 r_{ijk}.$$

On a donc finalement :

$$r_{ijk} = -\frac{2\chi_{ijk}^{(2)}}{n_i^2 n_j^2} = -\frac{2\chi_{ijk}^{(2)}}{n_s^4}, \quad (1.37)$$

où, comme le milieu est isotrope,  $n_i = n_j = n_s$ .

L'effet quadratique a été observé pour la première fois en 1873 par J. Kerr dans le verre et les liquides, alors que l'effet linéaire ne sera observé dans le quartz que quelques 20 années plus tard par W. C. Roentgen et A. Kundt, avant d'être largement étudié par F. Pockels. Dans le cadre de ce chapitre, on négligera l'effet Kerr, qui sera largement étudié par la suite. L'équation de l'ellipsoïde des indices devient alors :

$$\vec{u} \cdot \hat{\eta}(\vec{E}_{\text{THz}}) \cdot \vec{u} = \sum_{i,j=1,2,3} \left( \epsilon^{-1} \delta_{ij} + \sum_{k=1,2,3} r_{ijk} E_{\text{THz},k} \right) u_i \cdot u_j = 1. \quad (1.38)$$

Il y a donc 27 composantes possibles pour le tenseur  $\hat{r}$ . Cependant, les matériaux électro-optiques présentent de nombreuses symétries cristallines, en particulier dans le cas d'un tenseur symétrique où  $r_{ijk} = r_{jik}$ , et il est donc possible de remplacer les deux premiers indices  $i, j$  par un indice unique. Cette transformation, dite « contraction des indices de Voigt », réduit le nombre de composantes à 18. Elle est présentée dans le tableau 1.5.

Contraction des indices	Changement de notation
$(1, 1) \rightarrow 1$	$r_{11k} \rightarrow r_{1k}$
$(2, 2) \rightarrow 2$	$r_{22k} \rightarrow r_{2k}$
$(3, 3) \rightarrow 3$	$r_{33k} \rightarrow r_{3k}$
$(2, 3) \rightarrow 4$	$r_{23k} = r_{32k} \rightarrow r_{4k}$
$(1, 3) \rightarrow 5$	$r_{13k} = r_{31k} \rightarrow r_{5k}$
$(1, 2) \rightarrow 6$	$r_{12k} = r_{21k} \rightarrow r_{6k}$

**TABLE 1.5** – Convention d'écriture de Voigt pour les coefficients du tenseur électro-optique : remplacement des deux premiers indices  $i, j$  du tenseur électro-optique par un indice unique.

En remplaçant la notation  $l = 1, 2$  et  $3$  par  $l = x, y$  et  $z$  et en notant  $x, y$  et  $z$  les composantes  $u_x, u_y$  et  $u_z$  du vecteur  $\vec{u}$ , l'équation de l'ellipsoïde des indices devient :

$$\left(\frac{1}{n_x^2} + \Delta\eta_1\right) \cdot x^2 + \left(\frac{1}{n_y^2} + \Delta\eta_2\right) \cdot y^2 + \left(\frac{1}{n_z^2} + \Delta\eta_3\right) \cdot z^2 + 2xy\Delta\eta_4 + 2yz\Delta\eta_5 + 2xz\Delta\eta_6 = 1.$$

où  $\Delta\eta_i = r_{ij} \cdot E_{\text{THz},j}$  et  $j = x, y$  ou  $z$ . En l'absence de champ THz, l'équation s'écrit simplement :

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1.$$

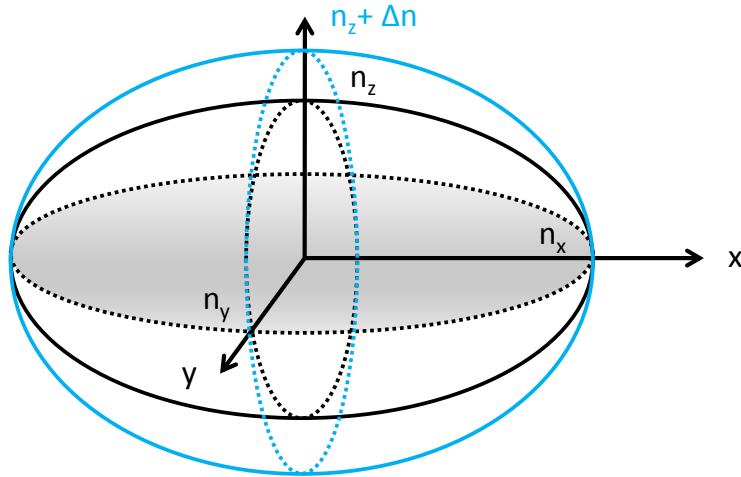
L'application du champ THz se traduit donc par une déformation de l'ellipsoïde des indices (voir la figure 1.24).

L'effet Pockels apparaît uniquement dans les matériaux non centro-symétriques, et la forme du tenseur  $\hat{r}$  est déterminée par le groupe de symétries ponctuelles du cristal utilisé. Nous allons à présent aborder le choix du cristal électro-optique.

### 1.4.3 Cristaux électro-optiques : le choix du GaP et du ZnTe

Pour détecter efficacement une onde THz, le cristal électro-optique doit remplir certaines conditions.

En première approximation, l'action du champ THz sur le cristal est considérée comme instantanée : ainsi, dans la pratique, les impulsions pompe et sonde doivent être superposées spatialement et synchronisées temporellement dans le cristal. Il faut donc tenir compte de la différence



**FIGURE 1.24** – Représentation de l’ellipsoïde des indices d’un matériau anisotrope (en noir) : la longueur du demi-axe associé à chaque direction principale correspond à l’indice de réfraction du milieu dans cette direction. En parallèle, est représentée en bleu la situation où seul l’indice de réfraction selon la direction  $\vec{e}_z$  est modifié par l’application du champ THz. L’ellipsoïde sera alors déformé.

des vitesses, et donc des indices entre les deux impulsions (voir les figures 1.25-a) et 1.26-a)). Les cristaux présentant les plus gros coefficients électro-optiques ne sont donc pas nécessairement les plus adaptés pour l’échantillonnage d’impulsions THz : dans un schéma colinéaire, la détection sera efficace si la condition d’accord de phase correspondant à l’égalité de la vitesse de phase de l’impulsion THz et de la vitesse de groupe de l’impulsion sonde est respectée. Ainsi, par exemple pour le ZnTe, l’accord de phase à 1 THz sera obtenu pour une impulsion sonde de longueur d’onde égale à 780 nm.

Pour pouvoir juger de l’efficacité des matériaux électro-optiques pour la détection, Q. Wu et X.-C. Zhang [121] ont défini un coefficient de mérite  $\eta_c$ , sous la forme :

$$\eta_c = \frac{2n^3 \times r_{ij}}{\sqrt{1 + \epsilon_r}}, \quad (1.39)$$

où  $n$  est l’indice de réfraction pour l’onde optique,  $\epsilon_r$  la permittivité diélectrique du cristal dans le domaine THz et  $r_{ij}$  le coefficient non nul du tenseur électro-optique. Les valeurs de  $\eta_c$  pour différents cristaux couramment utilisés dans le domaine THz sont données dans le tableau 1.6.

Dans l’idéal, un bon matériau électro-optique doit donc avoir un grand coefficient de mérite  $\eta_c$  et une faible dispersion de la vitesse de groupe (DVG). Ainsi, par exemple, le DAST possède un excellent coefficient  $\eta_c$  et sa DVG est relativement faible. Cependant,  $\eta_c$  ne prend pas en compte l’absorption éventuelle des cristaux dans le domaine THz. Celle-ci est due aux phonons présents dans le matériau : pour le ZnTe et le GaP, voir le tableau 1.7. Le DAST présente ainsi une importante résonance autour de 1.1 THz [122], ce qui le rend inadapté à une bonne détection électro-optique.

Au contraire, les cristaux cubiques tels que le ZnTe ou le GaP apparaissent comme de bons

choix, malgré des coefficients de mérite  $\eta_c$  relativement faibles. Dans le cadre de cette thèse, nous avons donc utilisé ces deux matériaux en fonction des besoins de la détection. En effet, dans le GaP, la principale résonance gênante pour la détection provient du phonon transverse optique centré à 11 THz, ce qui nous permet de détecter dans ce matériau des signaux THz relativement large-bande (de 0.1 à 8 THz), malgré sa faible valeur de  $r_{41}$ . Ce cristal est donc bien adapté pour la source plasma, à large spectre et très intense. En comparaison, le ZnTe convient mieux pour la détection électro-optique associée à la source à front de l'impulsion incliné, moins intense et dont le spectre s'étend entre 0.1 et 3.5 THz. En effet, la résonance la plus forte de ce matériau se situe aux alentours de 5 THz, ce qui est largement supérieur au maximum de l'émission spectrale de la source, alors que son coefficient  $r_{41}$ , de valeur supérieure à celui du GaP, permet d'obtenir un signal électro-optique de plus grande amplitude.

<b>Cristal</b>	$r_{ij}$ (pm/V)	<b>n</b>	$\epsilon_r$	$\eta_c$ (pm/V)	<b>DVG</b> (ps/mm)
ZnTe	$r_{41} = 3.9$ à 800 nm	2.853 à 800 nm	10.1	51.7	1.1
GaP	$r_{41} = 0.88$ à 633 nm	3.18 à 800 nm	11.1	17.9	0.88
CdTe	$r_{41} = 4.5$ à 1000 nm	2.84 à 800 nm	9.4	50.9	0.75
GaAs	$r_{41} = 1.5$ à 1150 nm	3.61 à 886 nm	13	24.9	0.015
DAST	$r_{11} = 160$ à 820 nm	$n_o = 2.46$ $n_e = 1.70$ à 820 nm	8 2.9	max 633	1.22
LiNbO <sub>3</sub>	$r_{33} = 30.09$ $r_{51} = 32.6$ à 633 nm	$n_o = 2.29$ $n_e = 2.20$ à 633 nm	$\epsilon_{1,2} = 43$ $\epsilon_3 = 28$	max 110	14.2

**TABLE 1.6** – Paramètres optiques des principaux matériaux utilisés en détection électro-optique et extraits de [13]. La permittivité relative,  $\epsilon_r$ , est considérée comme constante et égale à sa valeur statique sauf au voisinage des phonons. La différence entre la vitesse de groupe de l'onde optique et la vitesse de phase de l'onde THz est notée « DVG ».

Du point de vue mathématique, on peut décrire le phénomène physique d'absorption dans le domaine THz à partir d'un modèle de Drude-Lorentz. La permittivité relative est alors donnée par l'expression suivante :

$$\tilde{\epsilon}_r(\Omega) = \epsilon_\infty + \sum_n \frac{A_n \Omega_n^2}{\Omega_n^2 - \Omega^2 + 2i\gamma_n \Omega}, \quad (1.40)$$

où  $\epsilon_\infty$  est la constante diélectrique pour le matériau à basse fréquence ( $\epsilon_\infty = 7.4$  pour le ZnTe [123] et  $\epsilon_\infty = 8.46$  pour le GaP [124]) et  $A_n$ ,  $\Omega_n$ ,  $\gamma_n$  sont respectivement le poids, la pulsation et la

bande passante des différents phonons associés au milieu dans le domaine THz. Les paramètres relatifs au ZnTe [125] et au GaP [124] sont regroupés dans le tableau 1.7.

	$A_n$	$\Omega_n/2\pi$ (THz)	$\gamma_n/2\pi$ (THz)	Type
<i>ZnTe</i>	0.030	1.6	0.290	TA
	0.088	3.7	0.470	LA
	2.765	5.32	0.022	TO
<i>GaP</i>	1.72	10.972	0.087	TO

**TABLE 1.7** – Paramètres d’ajustement de l’équation (1.40), pour le ZnTe et le GaP. La nature des phonons est également précisée : *TA* pour transverse acoustique, *LA* pour longitudinal acoustique et *TO* pour transverse optique.

De l’équation (1.40), on peut ensuite déduire l’indice de réfraction à l’aide de :

$$\tilde{n}(\Omega) = \sqrt{\tilde{\epsilon}_r(\Omega)} = n_{\text{THz}}(\Omega) + i\kappa_{\text{THz}}(\Omega), \quad (1.41)$$

où  $n_{\text{THz}}$  est l’indice de réfraction et  $\kappa_{\text{THz}}$  le coefficient d’atténuation.

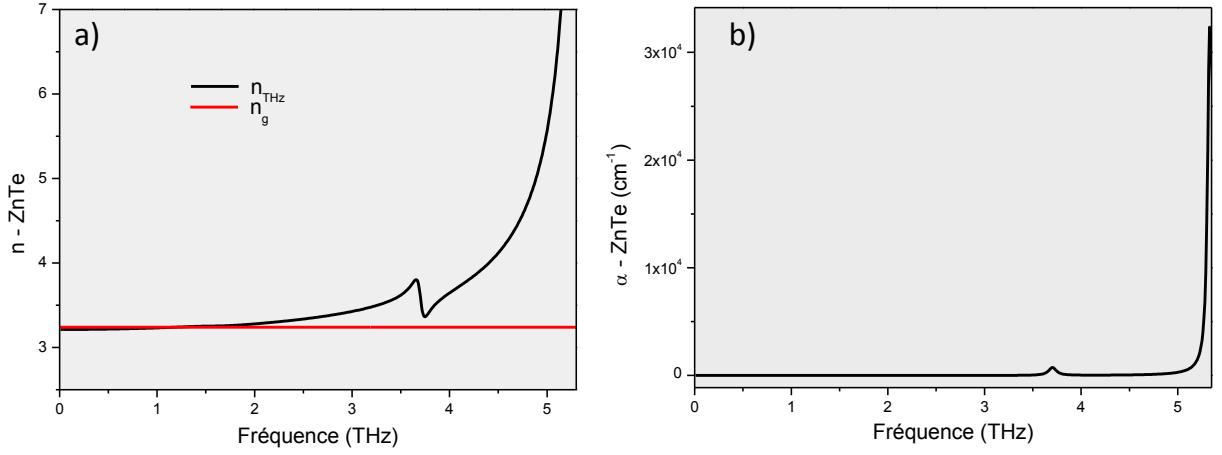
L’équation  $\alpha(\Omega) = \frac{2\Omega \cdot \kappa_{\text{THz}}(\Omega)}{c}$  nous donne ensuite l’évolution du coefficient d’absorption  $\alpha$  en fonction de la fréquence. Ce dernier et l’indice de réfraction  $n_{\text{THz}}$  sont représentés en fonction de la fréquence sur les figures 1.25 pour le ZnTe et 1.26 pour le GaP. Pour le ZnTe, Gallot *et al.* ont démontré [126] que les deux phonons à 1.6 et 3.7 THz ne perturbent pas l’efficacité de la détection électro-optique. Cependant, le phonon transverse optique à 5.3 THz rend le ZnTe inadéquat pour une détection électro-optique au dessus de 5 THz. Le GaP sera donc plus adapté pour une détection large bande.

En parallèle, on a également tracé en rouge sur les figures 1.25-a) et 1.26-a) l’indice de groupe  $n_g$  à une longueur d’onde égale à 800 nm. Celui-ci coupe la courbe de l’indice  $n_{\text{THz}}$  autour de 1.5 THz pour le ZnTe et 8.6 THz pour le GaP. Ainsi, dans le cas d’une impulsion sonde centrée à 800 nm, les ondes THz et sonde se propagent globalement à la même vitesse dans le ZnTe (voir également la dernière colonne du tableau 1.6), ce qui permet une bonne détection du champ THz, même pour des cristaux de grande épaisseur,  $L_c$ , pouvant aller jusqu’à plusieurs mm. Au contraire, pour le GaP, l’accord de phase a lieu vers 8.6 THz, et, à 800 nm, l’écart entre les vitesses de chacune des ondes est beaucoup plus important que dans le ZnTe : celles-ci se décalent donc l’une par rapport à l’autre au cours de la propagation, c’est pourquoi l’on préférera employer des cristaux plus fins pour la détection, avec  $L_c$  de l’ordre de quelques centaines de  $\mu\text{m}$ .

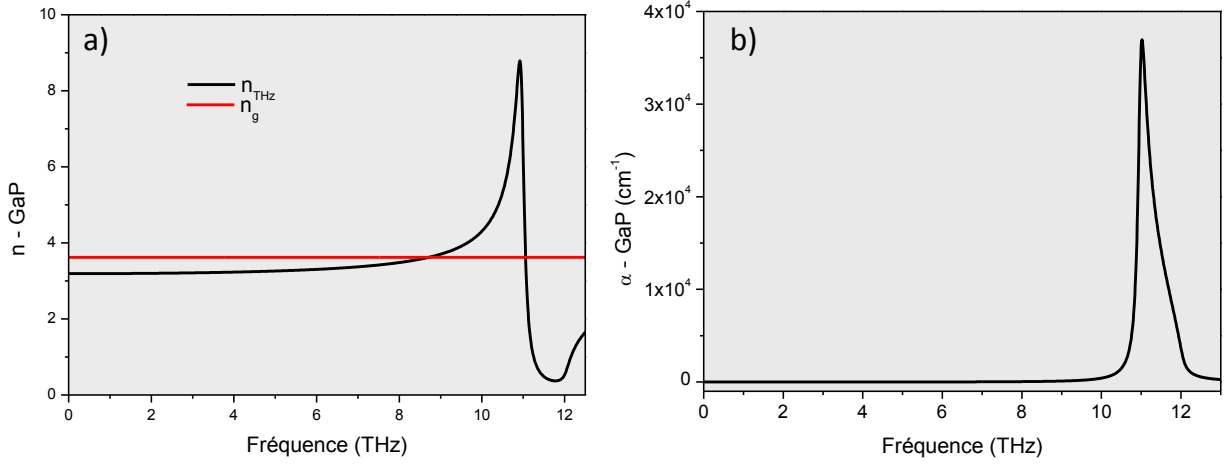
D’autre part, les cristaux de GaP et ZnTe ont une structure cristalline de type zinc-blende  $\bar{4}3m$ . Cette symétrie implique que la susceptibilité non-linéaire d’ordre 2 n’aura donc que 6 coefficients non nuls, à savoir :

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} = \chi_{jik}^{(2)} = \chi_{jki}^{(2)} = \chi_{kij}^{(2)} = \chi_{kji}^{(2)}. \quad (1.42)$$

En outre, compte tenu des symétries, seul l’un des coefficients du tenseur d’imperméabilité  $\hat{\eta}$  est non nul et indépendant, soit :  $r_{41} = r_{52} = r_{63}$ .



**FIGURE 1.25** – a) Indice de groupe (en rouge) à 800 nm,  $n_g = 3.24$  selon [127], et indice de phase THz (en noir) et b) Coefficient d'absorption pour le ZnTe dans le domaine THz [126].



**FIGURE 1.26** – a) Indice de groupe (en rouge) à 800 nm,  $n_g = 3.62$  selon [128], et indice de phase THz (en noir) et b) Coefficient d'absorption pour le GaP dans le domaine THz [129].

L'expression du tenseur devient finalement :

$$\hat{r} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{bmatrix} \quad (1.43)$$

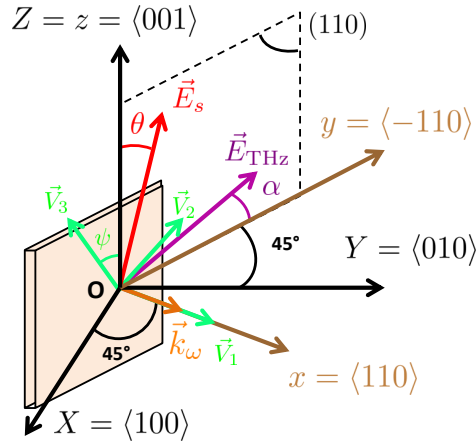
et l'équation de l'ellipsoïde des indices (1.39) dans le repère du cristal prend la forme :

$$\frac{1}{n_s^2}(x^2 + y^2 + z^2) + 2r_{41}(E_{\text{THz},x}yz + E_{\text{THz},y}xz + E_{\text{THz},z}xy) = 1. \quad (1.44)$$

Enfin, ces deux matériaux sont transparents autour de la longueur d'onde centrale de l'impulsion sonde, égale à 800 nm [130, 131].

Le GaP et le ZnTe présentent donc de nombreux avantages, qui les rendent tout à fait adéquats pour la détection électro-optique des champs THz générés à partir des sources mises en place au sein du laboratoire. Nous allons à présent décrire mathématiquement l'effet Pockels dans un cristal de structure zinc-blende. Toutefois, pour des raisons de simplicité, cette analyse ne tiendra tout d'abord pas compte de la dépendance temporelle du champ THz. Celle-ci sera abordée en détails à la section 2.1 du chapitre suivant.

#### 1.4.4 Description mathématique de l'effet Pockels induit par un champ THz dans un cristal de structure zinc-blende



**FIGURE 1.27** – Le repère cristallin ( $\vec{e}_X, \vec{e}_Y, \vec{e}_Z$ ) est représenté en noir par le système d'axes  $OX, OY, OZ$ . Le repère du laboratoire ( $\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z$ ) est, quant à lui, défini par les axes  $Ox, Oy, Oz$  et représenté en marron. Enfin, le repère formé par les vecteurs propres du tenseur d'imperméabilité  $\vec{V}_1, \vec{V}_2$  et  $\vec{V}_3$  est représenté en vert. Les directions de polarisation des champ sonde et THz font respectivement un angle  $\theta$  avec la direction  $\langle 001 \rangle$  et un angle  $\alpha$  avec la direction  $\langle -110 \rangle$ .

On s'intéresse à un cristal électro-optique taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Dans la suite, on notera  $\vec{e}_i$  le vecteur unitaire associé à la direction  $Oi$ . La figure 1.27 présente les systèmes de coordonnées et l'orientation des axes cristallins utilisés par la suite. Dans le repère du laboratoire ( $\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z$ ), le champ électrique THz fait un angle  $\alpha$  avec le vecteur  $\vec{e}_y$  et s'exprime selon :

$$\vec{E}_{\text{THz}} = E_{\text{THz}} \cos \alpha \cdot \vec{e}_y + E_{\text{THz}} \sin \alpha \cdot \vec{e}_z, \quad (1.45)$$

et dans le repère cristallin ( $\vec{e}_X, \vec{e}_Y, \vec{e}_Z$ ) :

$$\vec{E}_{\text{THz}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \alpha E_{\text{THz}} \cdot (-\vec{e}_X + \vec{e}_Y) + \sin \alpha E_{\text{THz}} \cdot \vec{e}_Z \quad (1.46)$$

$$= \underbrace{E_{\text{THz},X}}_{=-\cos \alpha E_{\text{THz}}/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_X + \underbrace{E_{\text{THz},Y}}_{=\cos \alpha E_{\text{THz}}/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_Y + \underbrace{E_{\text{THz},Z}}_{=\sin \alpha E_{\text{THz}}} \cdot \vec{e}_Z. \quad (1.47)$$

Le tenseur d'imperméabilité (voir éq. (1.38)) s'exprime alors à l'aide de la convention de Voigt :

$$\hat{\eta}(E_{\text{THz}}) = \frac{1}{n_s^2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ r_{41}E_{\text{THz},X} \\ r_{41}E_{\text{THz},Y} \\ r_{41}E_{\text{THz},Z} \end{bmatrix},$$

où  $n_s$  est l'indice de réfraction dans le domaine optique.

En revenant à une notation matricielle plus familière [120], on obtient :

$$\hat{\eta}(E_{\text{THz}}) = \frac{1}{n_s^2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} + r_{41} \begin{bmatrix} 0 & E_{\text{THz},Z} & E_{\text{THz},Y} \\ E_{\text{THz},Z} & 0 & E_{\text{THz},X} \\ E_{\text{THz},X} & E_{\text{THz},Y} & 0 \end{bmatrix}, \quad (1.48)$$

soit :

$$\hat{\eta}(E_{\text{THz}}) = \frac{1}{n_s^2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} + r_{41}E_{\text{THz}} \begin{bmatrix} 0 & \sin \alpha & \cos \alpha/\sqrt{2} \\ \sin \alpha & 0 & -\cos \alpha/\sqrt{2} \\ \cos \alpha/\sqrt{2} & -\cos \alpha/\sqrt{2} & 0 \end{bmatrix}. \quad (1.49)$$

Pour déterminer les indices de réfraction modifiés par l'application du champ électrique THz, nous déterminons les valeurs propres, notées  $\lambda_i$ , et les vecteurs propres normalisés, notés  $\vec{V}_i$ , associés au tenseur  $\hat{\eta}$  [15] :

$$\begin{cases} \lambda_1 = 1/n_s^2 + r_{41} E_{\text{THz}} \sin \alpha \\ \lambda_2 = 1/n_s^2 - \frac{r_{41}E_{\text{THz}}}{2} \left( \sin \alpha + \sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} \right) \\ \lambda_3 = 1/n_s^2 - \frac{r_{41}E_{\text{THz}}}{2} \left( \sin \alpha - \sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} \right) \end{cases} \quad (1.50)$$

et

$$\begin{cases} \vec{V}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{bmatrix} \\ \vec{V}_2 = \frac{1}{2} \sqrt{1 - \frac{\sin \alpha}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha}}} \begin{bmatrix} -1 \\ 1 \\ \frac{2\sqrt{2} \cos \alpha}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} + \sin \alpha} \end{bmatrix} \\ \vec{V}_3 = \frac{1}{2} \sqrt{1 + \frac{\sin \alpha}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha}}} \begin{bmatrix} 1 \\ -1 \\ \frac{2\sqrt{2} \cos \alpha}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} + \sin \alpha} \end{bmatrix} \end{cases} \quad (1.51)$$

Les axes principaux de l'ellipsoïde des indices sont donc déterminés par les vecteurs  $\vec{V}_1$ ,  $\vec{V}_2$  et  $\vec{V}_3$ , exprimés dans le repère cristallin et qui dépendent de l'angle  $\alpha$  que fait le champ THz avec l'axe  $Oy$ . Ils sont représentés en vert sur la figure 1.27. Le vecteur  $\vec{V}_1$  est dirigé selon l'axe



crystallographique  $\langle 110 \rangle$  alors que les deux vecteurs  $\vec{V}_2$  et  $\vec{V}_3$  sont orthogonaux, et situés dans le plan  $(110)$ . [15] donne l'expression de l'angle  $\psi$  entre  $\vec{V}_2$  et  $\vec{e}_y$  en fonction de  $\alpha$  :

$$\cos(2\psi) = \frac{\sin \alpha}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha}}. \quad (1.52)$$

Ainsi, on voit que l'application d'un champ THz faisant un angle  $\alpha$  avec l'axe  $\langle -110 \rangle$  du cristal rend celui-ci biréfringent : le champ induit une modification des indices de réfraction du cristal, proportionnelle à son amplitude  $E_{\text{THz}}$  et au coefficient  $r_{41}$  du tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 du matériau. Si  $r_{41}E_{\text{THz}} \ll 1$ , un nouvel indice de réfraction  $n_i$  est alors associé à chaque direction de la base de vecteurs propres :

$$\begin{cases} n_1 = n_s + \frac{n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{2} \sin \alpha \\ n_2 = n_s + \frac{n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{4} \left( \sin \alpha + \sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} \right) \\ n_3 = n_s + \frac{n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{4} \left( \sin \alpha - \sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha} \right) \end{cases} \quad (1.53)$$

Ainsi, si une onde optique, de champ électrique  $\vec{E}_s$ , se propage simultanément avec l'onde THz dans la direction  $\langle 110 \rangle$ , chacune de ses composantes dans la base de vecteurs propres subira un déphasage proportionnel à l'indice de réfraction calculé précédemment. Ce déphasage, proportionnel au champ THz, peut être mesuré de différentes manières, afin de déterminer la forme temporelle et le spectre du champ THz.

#### 1.4.5 Détection de la biréfringence induite par l'effet Pockels par ellipsométrie

Nous avons vu précédemment à la partie 1.4.4 qu'un cristal électro-optique taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$  voit ses indices de réfraction modifiés lors du passage du champ THz. Cette biréfringence induite modifie l'état de polarisation d'un faisceau sonde envoyé simultanément à travers le cristal de longueur  $L_c$ , en imposant une différence de phase  $\Gamma(\alpha) \times L_c$  entre ses composantes, avec :

$$\Gamma(\alpha) = \Gamma_{\langle 110 \rangle}(\alpha) = \frac{2\pi}{\lambda_s} (n_2 - n_3) = \frac{\pi n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{\lambda_s} \sqrt{1 + 3 \cos^2 \alpha}, \quad (1.54)$$

où  $\lambda_s = 800$  nm et  $n_s$  sont respectivement la longueur d'onde et l'indice de réfraction de la sonde.

Le calcul peut être mené de façon similaire lorsque le cristal électro-optique est taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$ . On a alors [132] :

$$\Gamma_{\langle 100 \rangle} = 0. \quad (1.55)$$

Ainsi, lors du passage d'un champ THz à travers un cristal de GaP ou de ZnTe, la taille de celui-ci selon la direction  $\langle 100 \rangle$  permet donc d'éliminer toute biréfringence due à l'effet Pockels, et ce, pour n'importe quelle orientation des champs sondes et THz. Nous reviendrons sur ce point au chapitre 4.

---

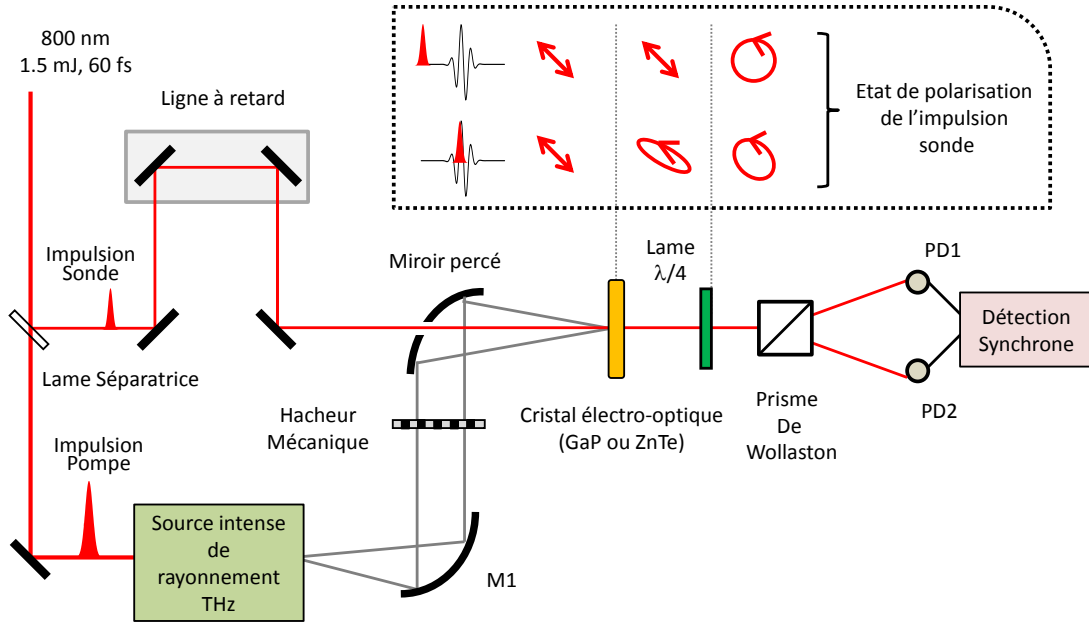
Différents systèmes optiques introduits à la suite du cristal électro-optique permettent ensuite de mesurer le changement de polarisation induit et de déterminer la forme de l'impulsion THz dans le domaine temporel. S'inspirant de ce qui avait été démontré précédemment par Auston *et al.* en 1988 pour mesurer le courant électrique Cherenkov généré par redressement optique d'impulsions ultra-courtes dans du tantalate de lithium  $\text{LiTaO}_3$  [104], Zhang *et al.* ont réalisé une détection électro-optique d'un champ THz pour la première fois en 1995 [133]. Dans leur expérience, effectuée en réflexion, le cristal électro-optique de  $\text{LiTaO}_3$  était suivi d'un compensateur, un polariseur et un photo-détecteur. Ce système, qui permet de transformer l'état de polarisation elliptique du faisceau sonde induit par le champ THz en une modulation en intensité, sera ensuite largement supplanté par la configuration en transmission, dans laquelle les faisceaux sonde et THz sont colinéaires. En effet, cette dernière autorise une sensibilité et une résolution temporelle bien supérieures aux systèmes précédents. Rappelons que, par la suite, cette méthode sera désignée sous l'appellation « détection électro-optique conventionnelle » (DEOC). Elle repose sur un triplet d'éléments optiques, à savoir une lame quart d'onde, un prisme de Wollaston et un photo-détecteur équilibré. Associée à un modulateur électro-optique, cette technique permet également de mesurer la direction de polarisation du champ THz [134].

Enfin, ce dispositif de détection électro-optique d'un champ THz est parmi les plus communément utilisés et documentés [15, 20, 90, 113, 121, 135–140], et c'est celui que nous avons généralement mis en œuvre lors de cette thèse, sauf indication contraire. Nous allons donc en détailler le fonctionnement dans la partie suivante.

#### 1.4.5.1 Présentation du dispositif expérimental conventionnel

Le dispositif utilisé pour la DEOC d'un champ THz est présenté sur la figure 1.28. Les ondes THz et optique se propagent de façon colinéaire dans le cristal détecteur, ceci afin d'optimiser leur recouvrement et d'augmenter l'efficacité de la détection. À cet effet, le faisceau THz est focalisé au sein du cristal de détection à l'aide d'un miroir percé permettant de transmettre le faisceau sonde. En parallèle, l'impulsion sonde peut être synchronisée avec l'impulsion THz à l'aide d'une ligne à retard commandée par une interface Labview®. En modifiant la position des miroirs intégrés sur la ligne, l'instant de recouvrement entre l'impulsion sonde de durée femtoseconde et l'impulsion THz de durée picoseconde change. Il est alors possible d'en déduire la forme temporelle de l'impulsion THz. Enfin, afin d'améliorer le rapport signal sur bruit de la détection, on module le faisceau THz à une fréquence de 500 Hz grâce à un hacheur mécanique, placé entre les miroirs paraboliques. Cet outil module donc le signal de détection électro-optique et l'utilisation d'une détection synchrone (Stanford Research Systems SR 830) permet alors de l'isoler du bruit ambiant.

Initialement, en l'absence de rayonnement THz, le faisceau sonde est polarisé linéairement et à  $45^\circ$  des axes neutres de la lame quart d'onde (voir l'encart de la figure 1.28). À la sortie de celle-ci, la sonde est donc polarisée circulairement. Le passage par le prisme de Wollaston permet alors de séparer chacune des deux composantes s et p du faisceau optique, dont les intensités respectives  $I_1$  et  $I_2$  sont égales et détectées chacune par une photodiode. Le signal  $\Delta I = I_1 - I_2$  est donc nul, les photodiodes sont équilibrées. À l'inverse, au passage du faisceau THz, l'effet Pockels rend légèrement elliptique l'état de polarisation du faisceau sonde. À son passage dans la lame quart d'onde, la polarisation du champ sonde n'est donc plus parfaitement circulaire, ce qui donne lieu à un déséquilibre entre les intensités optiques mesurées sur chaque photodiode :  $\Delta I$  devient non nul



**FIGURE 1.28** – Schéma du dispositif expérimental de détection ellipsométrique conventionnel. Le détecteur est constitué de deux photodiodes, respectivement notées PD1 et PD2. L’encart présente l’état de polarisation du champ de sonde en l’absence et en présence du champ THz.

et sa mesure en fonction du retard entre les impulsions sonde et THz permet d’obtenir l’évolution du champ électrique THz au cours du temps.

#### 1.4.5.2 Mise en équation du signal électro-optique dans le cas conventionnel

Cette partie vise à décrire mathématiquement le système de détection constitué par une lame quart d’onde associé à un prisme de Wollaston et deux photodiodes balancées. On se reportera à la figure 1.27 pour les notations. L’utilisation du formalisme de Jones [141] permet de donner l’expression du signal mesuré avec le dispositif précédent à travers différentes étapes de calcul :

1. Tout d’abord, à l’entrée du cristal, le champ sonde s’exprime dans le plan  $yOz$  du repère du laboratoire à l’aide du formalisme de Jones selon :

$$\vec{E}_s = E_s \begin{bmatrix} \sin \theta \\ \cos \theta \end{bmatrix}. \quad (1.56)$$

2. Dans la base  $(\vec{V}_2, \vec{V}_3)$ , le déphasage induit par le champ THz se traduit par la matrice :

$$A = \begin{bmatrix} e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_2(\alpha)} & 0 \\ 0 & e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_3(\alpha)} \end{bmatrix},$$

ce qui donne :

$$A = e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_3(\alpha)} \times \begin{bmatrix} e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c (n_2(\alpha) - n_3(\alpha))} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_3(\alpha)} \times \begin{bmatrix} e^{i\Gamma(\alpha) \cdot L_c} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix},$$

soit :

$$A = e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_3} \cdot e^{i\Gamma(\alpha) \cdot \frac{L_c}{2}} \times \begin{bmatrix} e^{i\Gamma(\alpha) \cdot L_c/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Gamma(\alpha) \cdot L_c/2} \end{bmatrix}. \quad (1.57)$$

Pour simplifier les calculs à venir, le facteur de phase global  $e^{i\frac{2\pi}{\lambda_s} L_c n_3} \cdot e^{i\Gamma \cdot \frac{L_c}{2}}$  présent dans l'expression de  $A$  ne sera pas pris en compte dans la suite.

3. Au cours de leur traversée du cristal électro-optique, chaque composante du champ sonde est donc déphasée l'une par rapport à l'autre, et le champ électrique s'exprime donc à travers la succession de matrices :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha, \theta) \propto E_s \cdot R(-\psi) \times \begin{bmatrix} e^{i\Gamma(\alpha) \cdot L_c/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\Gamma(\alpha) \cdot L_c/2} \end{bmatrix} \times R(\psi) \times \vec{E}_s, \quad (1.58)$$

où  $R(\psi) = \begin{bmatrix} \cos \psi & \sin \psi \\ -\sin \psi & \cos \psi \end{bmatrix}$  est la matrice de rotation permettant le passage du repère du laboratoire au repère principal de l'ellipsoïde des indices (voir la section 1.4.4).

On a donc, dans le cas général :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha, \theta) \propto E_s \cdot \begin{bmatrix} \cos \psi \cdot e^{i\Gamma(\alpha)L_c/2} & -\sin \psi \cdot e^{-i\Gamma(\alpha)L_c/2} \\ \sin \psi \cdot e^{i\Gamma(\alpha)L_c/2} & \cos \psi \cdot e^{-i\Gamma(\alpha)L_c/2} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \sin(\theta + \psi) \\ \cos(\theta + \psi) \end{bmatrix},$$

soit :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha, \theta) \propto E_s \cdot \begin{bmatrix} \cos(\Gamma(\alpha)L_c/2) \cdot \sin \theta + i \sin(\Gamma(\alpha)L_c/2) \cdot \sin(\theta + 2\psi) \\ \cos(\Gamma(\alpha)L_c/2) \cdot \cos \theta - i \sin(\Gamma(\alpha)L_c/2) \cdot \cos(\theta + 2\psi) \end{bmatrix}. \quad (1.59)$$

Le champ sonde peut ainsi être modulé par l'impulsion THz. Dans la suite, on notera  $\Gamma(0) = \Gamma$  pour alléger les notation. Soulignons également que, selon la configuration géométrique adoptée, cette modulation n'aura pas la même incidence sur l'impulsion optique :

- (a) Si le champ THz est orienté selon la direction  $\langle -110 \rangle$ , on a  $\alpha = 0$  et  $\psi = \pi/4$  d'après l'éq. (1.52). L'expression du champ sonde à la sortie du cristal est donc :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha = 0, \theta, L_c) \propto E_s \cdot \begin{bmatrix} i \sin(\Gamma L_c/2) \cos \theta + \cos(\Gamma L_c/2) \sin(\theta) \\ \cos(\Gamma L_c/2) \cos \theta + i \sin(\Gamma L_c/2) \sin(\theta) \end{bmatrix},$$

soit, si  $\Gamma L_c \ll 1$  :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha = 0, \theta, L_c) \approx E_s \cdot \left( i \frac{\Gamma L_c}{2} \cdot \cos \theta + \sin \theta \right) \cdot \vec{e}_y + E_s \cdot \left( \cos \theta + i \frac{\Gamma L_c}{2} \sin \theta \right) \cdot \vec{e}_z. \quad (1.60)$$

On constate donc que, dans la configuration  $\alpha = 0^\circ$ , c'est l'amplitude du champ électrique de l'impulsion sonde qui sera modulée par le champ THz. De même, si le champ sonde se propage selon la direction  $\vec{e}_z$ , *i.e.* pour un angle  $\theta = 0^\circ$ , l'expression précédente se simplifie en :

$$\vec{E}_{s1}(\alpha = 0, \theta = 0, L_c) \approx E_s \cdot i \frac{\Gamma L_c}{2} \cdot \vec{e}_y + E_s \cdot \vec{e}_z. \quad (1.61)$$

Ainsi, cette configuration bien spécifique des champs permet de générer sur l'axe  $y$  une composante déphasée de  $\pi/2$  et dont l'amplitude est proportionnelle à  $\Gamma$  *i.e.* à  $E_{\text{THz}}$ . Par la suite, on notera cette composante sous la forme  $\vec{E}_{\text{EO}}$ . Dans cette situation, le champ THz module donc l'amplitude du champ sonde.

- (b) En parallèle, si on envisage la situation où le champ THz est orienté selon la direction  $\langle 001 \rangle$ , *i.e.* pour  $\alpha = \pi/2$  et  $\psi = 0^\circ$ , le champ sonde à la sortie du cristal s'écrira sous la forme :

$$\vec{E}_{s1} \left( \alpha = \frac{\pi}{2}, \theta, L_c \right) \propto E_s \cdot \begin{bmatrix} e^{i\Gamma L_c/2} \cdot \sin \theta \\ e^{-i\Gamma L_c/2} \cdot \cos \theta \end{bmatrix},$$

soit, pour une impulsion sonde polarisée selon  $\vec{e}_y$ , *i.e.*  $\theta = \pi/2$  :

$$\vec{E}_{s1} \left( \alpha = \frac{\pi}{2}, \theta = \frac{\pi}{2}, L_c \right) \propto E_s \cdot e^{i\Gamma L_c/2} \cdot \vec{e}_y. \quad (1.62)$$

Ainsi, le champ THz polarisé selon la direction  $z$  du cristal impose une modulation de la phase de l'impulsion sonde polarisée selon la direction  $y$ , et non de son amplitude. La configuration géométrique des directions de polarisation des champs sonde et THz permet donc de modifier soit la phase, soit l'amplitude de l'impulsion optique. Cette remarque prend tout son sens dans la partie 2.3.

Pour revenir à la détection de la biréfringence induite par effet Pockels, qui est l'objet de cette section, notons qu'à l'heure actuelle, les détecteurs usuels ne permettent pas de mesurer directement le champ électrique  $E_s$ , mais seulement son intensité  $|E_s|^2$ . Ceci implique qu'un tel système, s'il est placé directement après le cristal, ne permettra pas de mesurer la forme du champ THz mais simplement son module. C'est la raison pour laquelle la technique d'ellipsométrie est communément utilisée, mais nous verrons à la section 2.2 que d'autres moyens, comme l'hétérodynage, sont envisageables pour obtenir l'information sur l'amplitude et la phase du champ THz.

4. Lors du passage par la lame quart d'onde imposant un déphasage de  $\pi/4$ , et dont les axes neutres sont tournés de  $45^\circ$  par rapport à la direction de polarisation initiale de la sonde, on obtient de la même manière :

$$\vec{E}_{s2}(\alpha, \theta) \propto R\left(-\frac{3\pi}{4} + \theta\right) \times \begin{bmatrix} e^{i\pi/4} & 0 \\ 0 & e^{-i\pi/4} \end{bmatrix} \times R\left(\frac{3\pi}{4} - \theta\right) \times \vec{E}_{s1}(\alpha),$$

ce qui donne :

$$\vec{E}_{s2}(\alpha, \theta) \propto \frac{\sqrt{2}}{2} \begin{bmatrix} \cos(2\beta) + i & -\sin(2\beta) \\ \sin(2\beta) & \cos(2\beta) - i \end{bmatrix} \times \vec{E}_{s1}(\alpha), \quad (1.63)$$

où  $\beta = \frac{3\pi}{4} - \theta$ .

5. Finalement, la séparation du faisceau à l'aide du prisme de Wollaston, dont l'un des axes est ici parallèle à la direction de polarisation initiale du champ sonde, et l'autre orthogonal, permet de mesurer les deux contributions au signal,  $E_{\text{PD}_1}$  et  $E_{\text{PD}_2}$  :

$$\begin{cases} E_{\text{PD}_1}(\alpha, \theta) = [-\cos \theta & \sin \theta] \times \vec{E}_{s2}(\alpha), \\ E_{\text{PD}_2}(\alpha, \theta) = [\sin \theta & \cos \theta] \times \vec{E}_{s2}(\alpha), \end{cases} \quad (1.64)$$

et le signal total, détecté par les photodiodes balancées, s'écrit simplement sous la forme :

$$\Delta I(\alpha, \theta) = I_1(\alpha, \theta) - I_2(\alpha, \theta) = |E_{PD_1}(\alpha, \theta)|^2 - |E_{PD_2}(\alpha, \theta)|^2. \quad (1.65)$$

Ce résultat est valable quelle que soit la configuration géométrique des champs de sonde et de pompe dans un cristal orienté selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . On pourra se référer à [90] pour plus de détails. Pour des raisons de simplicité et de commodité, on considérera ici le cas où le champ THz est orienté selon l'axe  $Oy$ , *i.e.*  $\alpha = 0^\circ$  et le champ sonde est perpendiculaire au champ THz, *i.e.*  $\theta = 0^\circ$ . Les expressions précédentes se simplifient et on peut alors exprimer le signal,  $S_{\text{DEOC}}$ , mesuré par les photodiodes :

$$S_{\text{DEOC}} = \Delta I(\alpha = 0, \theta = 0) = E_s^2 \cdot \sin(\Gamma L_c) = E_s^2 \cdot \sin\left(\frac{2\pi L_c n_s^3 r_{41} \cdot E_{\text{THz}}}{\lambda_s}\right). \quad (1.66)$$

Par ailleurs, lorsque le champ THz n'est pas trop intense, on peut considérer que  $\Gamma \cdot L_c \ll 1$ , donc  $\sin(\Gamma \cdot L_c) \approx \Gamma \cdot L_c$ . Dans ce cas, le signal mesuré par ellipsométrie permet de mesurer directement l'amplitude du champ électrique,  $E_{\text{THz}}$  :

$$E_{\text{THz}} \approx \frac{\Delta I / E_s^2}{\frac{2\pi}{\lambda_s} n_s^3 r_{41} t_c L_c}. \quad (1.67)$$

où  $t_c$  est le coefficient de transmission en amplitude du cristal de détection. Il permet de tenir compte du fait que l'amplitude du champ THz est diminuée par réflexion sur la face avant du cristal électro-optique. D'autre part, lorsque le signal THz est très intense, l'approximation  $\sin(\Gamma \cdot L_c) \approx \Gamma \cdot L_c$  n'est plus valide et la détection électro-optique ne peut donc plus être considérée comme linéaire. On atténue alors le faisceau avec  $k$  wafers de silicium, ce qui introduit un terme supplémentaire,  $(t_{Si})^k$ , dans le dénominateur de l'équation (1.67), où  $t_{Si} = 0.7$  est le coefficient de transmission en amplitude du silicium. Pour finir, la valeur de l'intensité de la sonde  $I_s = E_s^2$  s'obtient, en pratique, en multipliant par deux la mesure de l'intensité reçue par une seule photodiode en l'absence de champ THz. Les valeurs utilisées tout au long de ce travail pour la mesure des champs électriques THz sont rassemblées dans le tableau 1.8. Ainsi, ce type de détection électro-optique par ellipsométrie permet à la fois de mesurer la forme temporelle d'une impulsion THz et de mesurer l'amplitude maximale du champ électrique.

Cristal	$n_s$	$t_c$	$r_{41}$ (pm/V)
ZnTe	2.85	0.48	3.9
GaP	3.19	0.46	0.88

**TABLE 1.8** – Caractéristiques nécessaires à la mesure de l'amplitude d'un champ THz détecté dans des cristaux de tellure de zinc ou de phosphore de gallium [20, 113].

Après avoir décrit les différentes manières de générer un rayonnement THz intense et les caractéristiques de sa détection par ellipsométrie conventionnelle, nous allons à présent mettre en évidence certains processus d'optique non-linéaire dans le domaine THz, étudiés lors de ce travail de thèse.



# Chapitre 2

## Non-linéarités du second ordre dans le domaine THz : effet Pockels

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Analyse mathématique complète de l'effet Pockels</b>	<b>59</b>
2.1.1	Équation de propagation non-linéaire pour l'effet Pockels	59
2.1.2	Polarisation non-linéaire pour l'effet Pockels	60
2.1.3	Résolution du système d'équations couplées	63
<b>2.2</b>	<b>Nouvelle détection intensimétrique d'un champ THz : une alternative à la détection électro-optique conventionnelle</b>	<b>65</b>
2.2.1	Etude préliminaire en configuration homodyne	66
2.2.2	Détection hétérodyne	69
2.2.2.1	Dispositif expérimental	70
2.2.2.2	Mise en équation du signal électro-optique mesuré par détection hétérodyne intensimétrique	71
2.2.2.3	Détection hétérodyne intensimétrique : résultats expérimentaux	72
<b>2.3</b>	<b>Évolution du spectre d'une impulsion optique générée par effet Pockels : application à la mesure de la dérive de fréquence de cette dernière</b>	<b>74</b>
2.3.1	Modèle analytique de l'évolution du spectre de l'impulsion optique générée par effet Pockels	78
2.3.1.1	Établissement de l'expression mathématique du spectre en l'absence de dispersion de la vitesse de groupe (GVD) pour l'impulsion sonde	78
2.3.1.2	Prise en compte de la dispersion de la vitesse de groupe pour l'impulsion optique	80
2.3.1.3	Modèle théorique	81
2.3.2	Dispositif expérimental	83
2.3.3	Résultats expérimentaux	85
2.3.3.1	Évolution du spectre de l'impulsion optique générée par somme et différence de fréquences	85
2.3.3.2	Amplification de la dérive de fréquence de l'impulsion optique et conséquences	93



---

2.3.3.3	Comparaison des résultats expérimentaux et des simulations . . . . .	96
2.3.4	Limitations du modèle et perspectives . . . . .	99

---

Comme nous l'avons vu précédemment, l'effet Pockels est très souvent utilisé dans le domaine THz pour mesurer la forme temporelle d'un champ électrique THz en échantillonnant ce dernier à l'aide d'une impulsion ultracourte, située dans le domaine optique. En règle générale, on s'attache simplement à décrire l'effet Pockels comme une biréfringence induite par le champ THz et proportionnelle à celui-ci, sans s'intéresser à l'expression mathématique du champ généré par l'interaction non-linéaire associée. Ainsi, toute l'analyse mathématique de l'effet Pockels rapportée dans la section 1.4.5.2 de ce manuscrit est, *a priori*, suffisante pour bien appréhender le principe de la détection d'un champ THz par effet électro-optique. Toutefois, elle a été considérablement simplifiée, dans le sens où l'on n'a tenu aucun compte des évolutions temporelle et spectrale des champs sonde et THz. En effet, d'un point de vue mathématique, la polarisation non-linéaire associée à l'effet Pockels s'écrit, dans le domaine temporel, sous la forme :

$$\vec{P}^{(2)}(t, \vec{x}) = \epsilon_0 \hat{\chi}^{(2)} : \vec{E}_\omega(t, \vec{x}) \vec{E}_{\text{THz}}(t, \vec{x}). \quad (2.1)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide,  $\hat{\chi}^{(2)}$  est le tenseur de susceptibilité non-linéaire du second ordre du milieu électro-optique, et  $\vec{E}_\omega(t, \vec{x})$  et  $\vec{E}_{\text{THz}}(t, \vec{x})$  correspondent respectivement aux impulsions optique et THz.

Par ailleurs, il est clair que l'évolution du signal généré par échantillonnage électro-optique du champ THz par l'impulsion optique dépend du retard  $\tau$  entre les deux impulsions. Ce dernier va également affecter le spectre de l'impulsion sonde puisque, d'après l'équation (2.1), l'effet Pockels apparaît comme un processus de sommation et de différence de fréquences. Cependant, dans la majorité des expériences effectuées sur le sujet (voir la partie 1.4.5), les détecteurs qui permettent d'enregistrer la modulation de phase ou d'amplitude de l'impulsion sonde se propageant dans le cristal sont des photodiodes, et celles-ci intègrent toutes les composantes fréquentielles de l'impulsion sans tenir compte d'une éventuelle évolution de leur distribution dans le spectre. En réalité, à notre connaissance, très peu d'études se sont intéressées à l'évolution du spectre de l'impulsion optique au fur et à mesure de son interaction par effet Pockels avec le champ THz dans un cristal électro-optique, alors que ce procédé est fondamental pour la détection du champ THz. De plus, il pourrait permettre de mesurer et/ou contrôler certaines caractéristiques du spectre (par exemple sa forme ou sa dérive de fréquence) de l'impulsion optique de façon relativement simple.

D'autre part, dans le cadre des études d'optique non-linéaire effectuées pendant cette thèse, nous avons été amenés à étudier, entre autres, une cascade d'effets non-linéaires, dénotée sous l'acronyme « PISH » pour « Pockels-induced second harmonic generation » et faisant intervenir l'effet Pockels. Ce phénomène du PISH, qui sera abordé en totalité au chapitre suivant, nous a rétrospectivement permis de poser un nouveau regard sur l'effet Pockels. En effet, lors de cette étude, nous nous sommes placés dans une configuration bien particulière, que nous décrirons ci-après et pour laquelle la manifestation du PISH était la plus simple à observer : c'est elle qui nous a conduits à reconsidérer l'effet Pockels et ses conséquences dans le domaine spectral. Parmi celles-ci, nous allons démontrer, d'une part, que le champ THz peut être mesuré à l'aide d'une détection hétérodyne sans mettre en œuvre de technique d'ellipsométrie, et, d'autre part, que le champ THz peut être utilisé pour mesurer certaines caractéristiques spectrales du champ optique co-propagatif.

Dans un premier temps, nous allons donc nous consacrer à analyser l'effet Pockels d'un point

---

de vue mathématique plus complet que ce qui a été effectué dans les rappels du chapitre précédent. Nous démontrerons que, pour une certaine configuration, l'interaction non-linéaire par effet Pockels mène à la création d'une composante du champ électrique optique, dite composante électro-optique. Cette dernière nous amènera alors à décrire un nouveau dispositif de détection de la forme temporelle du champ THz et les performances associées. La dernière partie sera enfin consacrée à l'étude expérimentale et théorique, dans un cristal de ZnTe, du spectre de cette composante électro-optique. Nous montrerons qu'il est possible de développer, avec une impulsion THz, une technique équivalente au « cross-correlation FROG » ou X-FROG, et qui permet par exemple de mesurer la phase spectrale de l'impulsion sonde.

## 2.1 Analyse mathématique complète de l'effet Pockels

Pour déterminer la dépendance temporelle théorique de l'effet Pockels, il est *a priori* nécessaire de résoudre les équations d'onde couplées pour l'impulsion sonde et THz. Cependant, lorsque l'impulsion sonde est de faible intensité, on peut considérer qu'elle n'affecte pas le champ THz. Celui-ci est donc simplement modifié au cours de sa propagation par l'absorption et la dispersion du milieu dans le domaine THz. De plus, le champ THz lui-même n'a pas une intensité suffisante pour induire dans le cristal des effets non-linéaires du troisième ordre comme la modulation de phase croisée (XPM) via l'effet Kerr. On pourra donc négliger ce dernier effet dans l'équation de propagation du champ sonde. Nous allons maintenant établir l'équation de propagation non-linéaire pour l'impulsion optique soumise à l'effet Pockels induit par l'impulsion THz.

### 2.1.1 Équation de propagation non-linéaire pour l'effet Pockels

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, valable ici puisque la largeur spectrale de l'impulsion est largement inférieure à la pulsation centrale de l'onde, *i.e.*  $\Delta\omega_s \ll \omega_s$ , le champ électrique de l'impulsion sonde peut s'écrire sous la forme :

$$\vec{E}_s(t, x) = \frac{1}{2} \left[ \vec{E}_{\omega_s}(t, x) \cdot e^{-i\omega_s t} + c.c. \right] = E_s(t, x) \cdot \vec{e}_z, \quad (2.2)$$

avec

$$\vec{E}_{\omega_s}(t, x) = \vec{\mathcal{E}}_s(t, x) \cdot e^{ik_s x}. \quad (2.3)$$

Considérant, d'autre part, que la polarisation non-linéaire du second ordre associée à l'effet Pockels s'exprime sous la forme :

$$\vec{P}_s(t, x) = \frac{1}{2} \left[ \vec{P}_{\omega_s}^{(2)}(x, t) \cdot e^{-i\omega_s t} + c.c. \right], \quad (2.4)$$

avec  $\vec{P}_{\omega_s}^{(2)}(t, x)$  tel que :

$$\vec{P}_{\omega_s}^{(2)}(x, t) = \vec{\mathcal{P}}_s^{(2)}(t, x) \cdot e^{ik_s x},$$

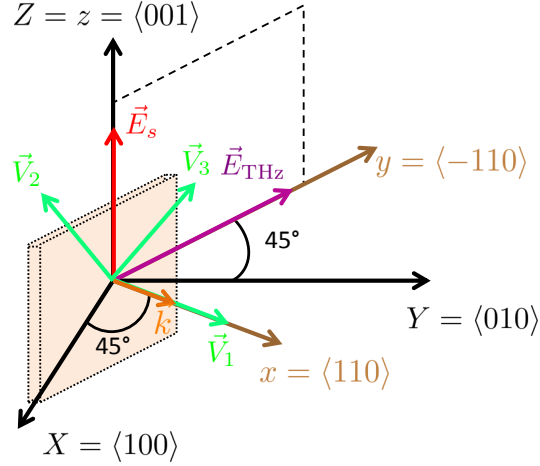
l'équation de propagation non-linéaire pour l'enveloppe  $\vec{\mathcal{E}}_s(t, x)$  dans le repère du laboratoire s'écrit alors, d'après l'annexe A, en se plaçant dans le référentiel se mouvant avec l'impulsion sonde :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,\mu}(x, t')}{\partial x} = \frac{i\omega_s^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \mathcal{P}_{s,\mu}^{(2)}(x, t'),$$

où  $\mu = y, z, t' = t - x/v_g$ , avec  $v_g$  la vitesse de groupe de l'impulsion sonde, soit :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,\mu}(x, t')}{\partial x} = \frac{i\pi}{\lambda_s n_s \epsilon_0} \mathcal{P}_{s,\mu}^{(2)}(x, t'). \quad (2.5)$$

### 2.1.2 Polarisation non-linéaire pour l'effet Pockels



**FIGURE 2.1** – Configuration géométrique des champs électriques à l'entrée du cristal : le champ THz est polarisé selon la direction  $\vec{e}_y$  et le champ sonde selon la direction  $\vec{e}_z$  du cristal.

Nous allons à présent déterminer la polarisation non-linéaire associée à l'effet Pockels,  $\vec{P}_s^{(2)}(t, x)$ . Pour cela, nous nous plaçons dans la configuration où le champ THz est polarisé selon la direction  $\vec{e}_y$  (voir la figure 2.1). Dans le domaine temporel, on peut écrire ce dernier sous la forme :

$$\vec{E}_{\text{THz}}(t, x) = \frac{1}{2} \left[ \vec{E}_{\Omega}(t, x) + c.c. \right] = E_{\text{THz}}(t, x) \cdot \vec{e}_y. \quad (2.6)$$

Notons que, dans le repère du cristal, le champ électrique THz s'exprime sous la forme :

$$\vec{E}_{\text{THz}}(t, x) = \frac{E_{\text{THz}}(t, x)}{\sqrt{2}} \cdot (-\vec{e}_X + \vec{e}_Y) = \underbrace{E_{\text{THz},X}(t, x)}_{=-E_{\text{THz}}(t,x)/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_X + \underbrace{E_{\text{THz},Y}(t, x)}_{=E_{\text{THz}}(t,x)/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_Y. \quad (2.7)$$

La polarisation totale du second ordre s'écrit, sous forme tensorielle :

$$\vec{P}_s^{(2)}(t, x) = \epsilon_0 \hat{\chi}^{(2)} : \vec{E}_{\text{THz}}(t, x) \cdot \vec{E}_s(t, x), \quad (2.8)$$

soit, pour chaque composante  $i$  dans le repère du cristal ( $\vec{e}_X, \vec{e}_Y, \vec{e}_Z$ ) :

$$\begin{aligned} \vec{P}_{\omega_s, i}^{(2)}(t, x) = \epsilon_0 \left[ K(-(\omega_s + \Omega); \omega_s, \Omega) \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(-(\omega_s + \Omega); \omega_s, \Omega) E_{\omega_s, j}(t, x) \cdot E_{\Omega, k}(t, x) \right. \\ \left. + K(-(\omega_s - \Omega); \omega_s, -\Omega) \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(-(\omega_s - \Omega); \omega_s, -\Omega) E_{\omega_s, j}(t, x) \cdot E_{\Omega, k}^*(t, x) \right], \quad (2.9) \end{aligned}$$

où le facteur de dégénérescence  $K$  est donné par l'expression [142] :

$$K(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) = 2^{l+m+n} \cdot p, \quad (2.10)$$

avec  $p$  le nombre distinct de permutations de  $\omega_1, \dots, \omega_n$ ,  $n$  l'ordre de la non-linéarité,  $l = 1$  si  $\omega_\sigma = 0$  et  $l = 0$  sinon, et enfin  $m$  égal au nombre de champs continus. Dans le cas présent, on a donc  $n = 2$ ,  $m = 0$ ,  $l = 0$  et  $p = 1$ . On obtient finalement  $K = 1$  et l'expression de la polarisation non-linéaire devient :

$$\begin{aligned} \vec{P}_{\omega_s, i}^{(2)}(t, x) &= \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_{\omega_s, j}(t, x) \cdot [E_{\Omega, k}(t, x) + E_{\Omega, k}^*(t, x)] \\ &= 2\epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_{\omega_s, j}(t, x) \cdot E_{\text{THz}, k}(t, x), \end{aligned} \quad (2.11)$$

où l'on a négligé la dispersion pour la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2. En repassant en écriture tensorielle, on obtient :

$$\vec{P}_{\omega_s}^{(2)}(t, x) = 2\epsilon_0 \hat{\chi}^{(2)} : \vec{E}_{\text{THz}}(t, x) \cdot \vec{E}_{\omega_s}(t, x), \quad (2.12)$$

D'après les expressions (1.37) et (1.42), on obtient finalement :

$$\vec{P}_{\omega_s}^{(2)}(t, x) = -\epsilon_0 n_s^4 \hat{r} : \vec{E}_{\omega_s}(t, x) \cdot \vec{E}_{\text{THz}}(t, x), \quad (2.13)$$

avec, selon la convention de Voigt (voir le tableau 1.5) :

$$\begin{aligned} r_{41} &= r_{YZX} = r_{ZYX} \neq 0 \\ &= r_{52} = r_{XZY} = r_{ZXY} \\ &= r_{63} = r_{XYZ} = r_{YXZ} \end{aligned} \quad (2.14)$$

et

$$\chi_{YZX}^{(2)} = \chi_{ZYX}^{(2)} = \chi_{XZY}^{(2)} = \chi_{ZXY}^{(2)} = \chi_{XYZ}^{(2)} = \chi_{YXZ}^{(2)} = -\frac{1}{2} n_s^4 r_{41}.$$

On obtient finalement l'expression du terme  $\vec{\mathcal{P}}_s^{(2)}$  :

$$\vec{\mathcal{P}}_s^{(2)}(t, x) = -\epsilon_0 n_s^4 \hat{r} : \vec{\mathcal{E}}_s(t, x) \cdot \vec{E}_{\text{THz}}(t, x), \quad (2.15)$$

soit, en projection dans le repère du cristal :

$$\begin{cases} \mathcal{P}_{s, X}^{(2)}(t, x) = -\epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot \mathcal{E}_{s, Z}(t, x) \cdot E_{\text{THz}, Y}(t, x) \\ \mathcal{P}_{s, Y}^{(2)}(t, x) = -\epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot \mathcal{E}_{s, Z}(t, x) \cdot E_{\text{THz}, X}(t, x). \\ \mathcal{P}_{s, Z}^{(2)}(t, x) = 0 \end{cases} \quad (2.16)$$

Sachant que  $\mathcal{E}_{s, Z}(t, x) = \mathcal{E}_{s, z}(t, x) = \mathcal{E}_s(t, x)$  et  $E_{\text{THz}, X}(t, x) = -E_{\text{THz}, Y}(t, x) = -\frac{1}{\sqrt{2}} E_{\text{THz}}(t, x)$  (voir l'équation (2.7)), il vient :

$$\begin{cases} \mathcal{P}_{s, X}^{(2)}(t, x) = -\frac{\epsilon_0 n_s^4 r_{41}}{\sqrt{2}} \cdot \mathcal{E}_{s, z}(t, x) \cdot E_{\text{THz}}(t, x) \\ \mathcal{P}_{s, Y}^{(2)}(t, x) = \frac{\epsilon_0 n_s^4 r_{41}}{\sqrt{2}} \cdot \mathcal{E}_{s, z}(t, x) \cdot E_{\text{THz}}(t, x) \\ \mathcal{P}_{s, Z}^{(2)}(t, x) = 0 \end{cases}$$

Le passage dans le repère du laboratoire se fait ensuite simplement grâce aux relations de passage entre les repères du cristal et du laboratoire données par :

$$\begin{cases} P_x^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(P_X^{(2)} + P_Y^{(2)}) \\ P_y^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{2}}(-P_X^{(2)} + P_Y^{(2)}), \\ P_z^{(2)} = P_Z^{(2)} \end{cases}$$

ce qui donne enfin :

$$\begin{cases} \mathcal{P}_{s,x}^{(2)}(t, x) = 0 \\ \mathcal{P}_{s,y}^{(2)}(t, x) = \epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot \mathcal{E}_{s,z}(t, x) \cdot E_{\text{THz}}(t, x). \\ \mathcal{P}_{s,z}^{(2)}(t, x) = 0 \end{cases} \quad (2.17)$$

L'équation de propagation devient donc, pour chaque composante de l'impulsion sonde dans le plan  $xOy$  :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,x}(t', x)}{\partial x} = 0 \quad (2.18)$$

et

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,y}(t', x)}{\partial x} = i \frac{\pi}{\lambda_s} n_s^3 r_{41} \cdot \mathcal{E}_{s,z}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \frac{x}{v_g}, x \right). \quad (2.19)$$

Ainsi, comme prévu dans cette configuration géométrique (voir le chapitre 1), l'effet Pockels engendre une composante optique centrée à  $\omega_s$  le long de l'axe  $\vec{e}_y$ . Soulignons que celle-ci sera employée un peu plus tard pour effectuer une détection hétérodyne du champ THz.

Cependant, pour décrire correctement l'évolution de  $\vec{E}_{s,y}(t, x)$ , il faut tenir compte du fait que cette onde se couple par effet Pockels avec l'onde THz pour agir rétrospectivement sur l'impulsion initiale polarisée suivant l'axe  $\vec{e}_z$ . La polarisation non-linéaire associée à ce processus du second ordre s'écrit sous une forme équivalente à l'équation (2.12), à savoir :

$$\vec{P}'_s{}^{(2)}(t, x) = 2\epsilon_0 \hat{\chi}^{(2)} : \vec{E}_{\omega_s,y}(t, x) \cdot \vec{E}_{\text{THz}}(t, x), \quad (2.20)$$

ou encore :

$$\vec{P}'_s{}^{(2)}(t, x) = -\epsilon_0 n_s^4 \hat{r} : \vec{E}_{\omega_s,y}(t, x) \cdot \vec{E}_{\text{THz}}(t, x). \quad (2.21)$$

De même que pour l'impulsion optique initiale  $\vec{E}_s$ , la composante  $\vec{E}_{\omega_s,y}$  peut s'écrire sous la forme du produit d'une fonction enveloppe et d'une onde plane monochromatique, à savoir :

$$\vec{E}_{\omega_s,y}(t, x) = \mathcal{E}_{s,y}(t, x) \cdot e^{ik_s x} \vec{e}_y. \quad (2.22)$$

Un raisonnement équivalent appliqué à la polarisation  $\vec{P}'_s{}^{(2)}$  permet enfin d'obtenir les expressions suivantes pour les composantes de  $\vec{P}'_s{}^{(2)}$  dans le repère du cristal :

$$\mathcal{P}'_{s,X}{}^{(2)}(t, x) = 0$$

$$\mathcal{P}'_{s,Y}(2)(t, x) = 0$$

et

$$\begin{aligned} \mathcal{P}'_{s,Z}(2)(t, x) &= -\epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot [\mathcal{E}_{s,Y}(t, x) \cdot E_{\text{THz},X}(t, x) + \mathcal{E}_{s,X}(t, x) \cdot E_{\text{THz},Y}(t, x)] \\ &= -\epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot \left[ \frac{\mathcal{E}_{s,y}(t, x)}{\sqrt{2}} \cdot \frac{-E_{\text{THz}}(t, x)}{\sqrt{2}} + \frac{-\mathcal{E}_{s,y}(t, x)}{\sqrt{2}} \cdot \frac{E_{\text{THz}}(t, x)}{\sqrt{2}} \right] \\ &= \epsilon_0 n_s^4 r_{41} \cdot \mathcal{E}_{s,y}(t, x) \cdot E_{\text{THz}}(t, x) = \mathcal{P}'_{s,z}(2)(t, x). \end{aligned}$$

L'équation de propagation non-linéaire associée s'écrit alors :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,z}(t', x)}{\partial x} = i \frac{\pi}{\lambda_s} n_s^3 r_{41} \mathcal{E}_{s,y}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \frac{x}{v_g}, x \right), \quad (2.23)$$

et le système d'équations couplées à résoudre s'écrit enfin sous la forme :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_{s,y}(t', x)}{\partial x} = i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_{s,z}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \frac{x}{v_g}, x \right) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_{s,z}(t', x)}{\partial x} = i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_{s,y}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \frac{x}{v_g}, x \right) \end{cases}$$

avec  $Q = \frac{\pi}{\lambda_s} \cdot n_s^3 r_{41}$ .

En faisant intervenir  $\tau$  le retard de l'impulsion sonde par rapport au champ THz, on obtient pour finir :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_{s,y}(t', x)}{\partial x} = i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_{s,z}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_{s,z}(t', x)}{\partial x} = i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_{s,y}(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) \end{cases} \quad (2.24)$$

### 2.1.3 Résolution du système d'équations couplées

Pour résoudre le système d'équations couplées (2.24), on pose :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_+(t', x) = \mathcal{E}_{s,y}(t', x) + \mathcal{E}_{s,z}(t', x) \\ \mathcal{E}_-(t', x) = \mathcal{E}_{s,y}(t', x) - \mathcal{E}_{s,z}(t', x). \end{cases}$$

En effectuant la somme ou la différence des équations du système (2.24), celui-ci se transforme alors en :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_+(t', x)}{\partial x} = i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_+(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_-(t', x)}{\partial x} = -i \cdot Q \cdot \mathcal{E}_-(t', x) \cdot E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) \end{cases} \quad (2.25)$$

ce qui s'intègre simplement en :

$$\mathcal{E}_+(t', x) = \mathcal{E}_+(t', 0) \cdot \exp \left\{ i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\},$$

et

$$\mathcal{E}_-(t', x) = \mathcal{E}_-(t', 0) \cdot \exp \left\{ -i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\}.$$

On en déduit alors l'expression des composantes de l'enveloppe de l'impulsion :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{s,y}(t', x) &= \frac{1}{2} [\mathcal{E}_+(t', x) + \mathcal{E}_-(t', x)] \\ &= \frac{1}{2} \left[ \mathcal{E}_+(t', 0) \cdot \exp \left\{ i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\} \right. \\ &\quad \left. + \mathcal{E}_-(t', 0) \cdot \exp \left\{ -i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\} \right] \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{s,z}(t', x) &= \frac{1}{2} [\mathcal{E}_+(t', x) - \mathcal{E}_-(t', x)] \\ &= \frac{1}{2} \left[ \mathcal{E}_+(t', 0) \cdot \exp \left\{ i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\} \right. \\ &\quad \left. - \mathcal{E}_-(t', 0) \cdot \exp \left\{ -i \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right\} \right] \end{aligned}$$

avec, puisque le champ sonde initial est orienté selon la direction  $\vec{e}_z$  :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_+(t', 0) = \mathcal{E}_y(t', 0) + \mathcal{E}_z(t', 0) = \mathcal{E}_z(t', 0) \\ \mathcal{E}_-(t', 0) = \mathcal{E}_y(t', 0) - \mathcal{E}_z(t', 0) = -\mathcal{E}_z(t', 0) \end{cases}$$

Au final, les composantes du champ sonde modulé par l'impulsion THz s'expriment sous la forme :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_{s,y}(t', L_c) = i\mathcal{E}_z(t', 0) \cdot \sin \left[ Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right] \\ \mathcal{E}_{s,z}(t', L_c) = \mathcal{E}_z(t', 0) \cdot \cos \left[ Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \right]. \end{cases} \quad (2.26)$$

Remarquons que ces équations traduisent bien la conservation de l'énergie pour l'onde centrée à  $\omega_s$ . En effet, on a :

$$|\mathcal{E}_{s,y}(t', L_c)|^2 + |\mathcal{E}_{s,z}(t', L_c)|^2 = |\mathcal{E}_{s,z}(t', 0)|^2, \quad (2.27)$$

ce qui signifie que, en sortie du cristal, la somme de l'énergie transportée par l'impulsion signal générée par effet Pockels dans la direction  $\vec{e}_y$  et de celle transportée par la composante orientée selon la direction  $\vec{e}_z$  sont bien égales à l'énergie totale transportée par l'impulsion sonde incidente sur le cristal et dirigée selon  $\vec{e}_z$ .

Dans l'hypothèse où le déphasage induit par l'impulsion THz est faible, *i.e.* :

$$\frac{\pi}{\lambda_s} \cdot n_s^3 r_{41} \times \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \ll 1, \quad (2.28)$$

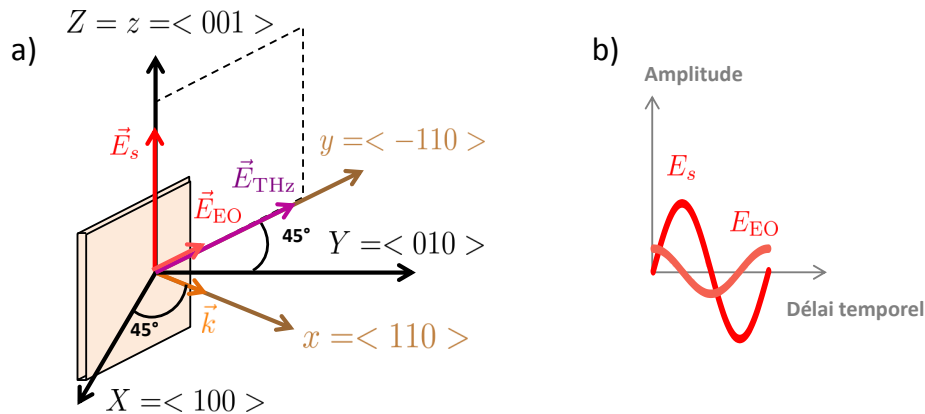
ce qui est le cas dans nos expériences, on a alors :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_{s,y}(t', \tau, L_c) = i \mathcal{E}_{s,z}(t, 0) \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx \\ \mathcal{E}_{s,z}(t', L_c) \approx \mathcal{E}_{s,z}(t', 0). \end{cases} \quad (2.29)$$

Ainsi, nous avons démontré mathématiquement que, au sein d'un cristal de structure zincblende taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ , l'interaction non-linéaire par effet Pockels d'une impulsion THz et d'une impulsion optique, respectivement polarisées selon les axes  $\langle 001 \rangle$  et  $\langle -110 \rangle$ , modifie l'état de polarisation de cette dernière de façon singulière : l'interaction non-linéaire génère en effet une composante, dite électro-optique, polarisée selon la direction  $\langle -110 \rangle$  et déphasée de  $\pi/2$  par rapport à l'impulsion optique initiale (voir l'équation (2.28) et la figure 2.2). De plus, dans la limite où le déphasage donné par l'équation (2.28) est petit devant 1, la composante électro-optique voit son amplitude modulée linéairement par le champ THz, et elle contient donc toute l'information relative à l'amplitude et à la phase de ce dernier, au contraire de l'impulsion optique orientée selon la direction perpendiculaire, qui n'est pas modifiée par son passage dans le cristal (voir l'équation (2.29)).

Dans la partie suivante, nous proposons une méthode alternative à la DEOC, s'appuyant sur ces caractéristiques remarquables pour détecter la forme temporelle du champ électrique THz et mesurer son amplitude.

## 2.2 Nouvelle détection intensimétrique d'un champ THz : une alternative à la détection électro-optique conventionnelle



**FIGURE 2.2** – a) Schéma de principe de la création, par effet Pockels, d'une composante optique selon l'axe  $\vec{e}_y$  lorsque le champ sonde est polarisé linéairement dans la direction  $z$ , et orthogonalement au champ THz. b) La composante optique générée par effet Pockels, d'amplitude  $E_{\text{EO}}$ , est déphasée de  $\pi/2$  par rapport au champ optique initial  $E_s$ .



Nous avons démontré que, dans les conditions particulières où le champ THz et l'impulsion sonde sont polarisées respectivement selon les directions  $\langle -110 \rangle = \vec{e}_y$  et  $\langle 001 \rangle = \vec{e}_z$ , une nouvelle composante optique apparaît orthogonalement à la direction du champ sonde d'origine. Si l'on fait abstraction de la dépendance temporelle pour alléger les notations et retrouver les conventions adoptées au chapitre précédent (voir la partie 1.4.5.2), dès lors que le déphasage introduit par l'effet Pockels  $\Gamma \cdot L_c \ll 1$ , le champ optique total à la sortie du cristal,  $\vec{E}_{s1}$ , s'écrit sous la forme :

$$\vec{E}_{s1} \approx E_s \begin{bmatrix} i\Gamma \cdot L_c/2 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (2.30)$$

où  $\vec{E}_{s1}$  correspond au champ optique total à la sortie du cristal et  $E_s$  est l'amplitude du champ sonde à l'entrée du cristal. Cette notation fait apparaître d'autant mieux l'existence de la composante  $\vec{E}_{s,y} = i E_s \frac{\Gamma L_c}{2} \cdot \vec{e}_y$ , notée  $\vec{E}_{EO}$  dans la suite et déphasée de  $\pi/2$  par rapport à la composante  $\vec{E}_{s,z} = E_s \cdot \vec{e}_z$  correspondant à l'onde optique initiale. Le schéma de principe de ce changement de polarisation de l'impulsion sonde initiale, induit par l'effet Pockels, est représenté sur la figure 2.2. L'information sur le champ THz, contenue dans le terme  $\Gamma$ , est donc accessible si l'on parvient à mesurer uniquement la partie utile du signal, *i.e.* la composante  $\vec{E}_{EO} = \vec{E}_{s,y}$ .

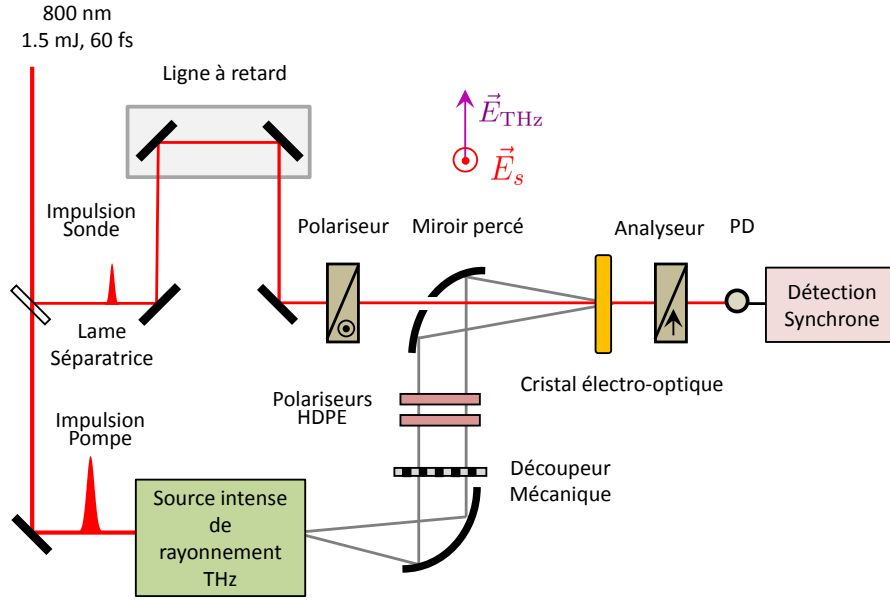
Une première démarche pour mesurer le champ électrique THz consiste, en premier lieu, à placer derrière le cristal un analyseur, orienté orthogonalement à la direction de polarisation initiale du champ sonde, et à enregistrer le signal ainsi isolé à l'aide d'une photodiode. Cette situation sera étudiée au paragraphe 2.2.1. Toutefois, les photodiodes étant des détecteurs en intensité, le signal ainsi mesuré ne sera pas proportionnel à  $\Gamma$  mais à  $\Gamma^2 \propto E_{\text{THz}}^2$ . L'information relative à la phase du champ THz n'est donc *a priori* pas accessible dans ce cas. Pour recouvrer et extraire l'information sur l'amplitude et sur la phase du champ, nous proposons, en second lieu, d'effectuer une détection hétérodyne du champ  $\vec{E}_{EO}$ , stratégie qui sera détaillée au paragraphe 2.2.2. Remarquons qu'il s'agit d'une démarche différente de celle de la DEOC, dans le sens où celle-ci a recours à l'ellipsométrie pour détecter le champ THz, *i.e.* à une mesure de la *variation de l'état de polarisation* du faisceau sonde. L'alternative hétérodyne s'appuie, quant à elle, sur une mesure de *modulation d'amplitude* du champ optique généré par l'effet Pockels.

Avant de présenter la technique de détection électro-optique hétérodyne mise en place au sein du laboratoire, nous présentons une étude préliminaire du champ  $\vec{E}_{EO}$ , afin de vérifier la validité de ce qui a été démontré mathématiquement auparavant (voir l'équation (2.30)). Dans la suite, cette étude sera dénotée comme la configuration « homodyne », du fait qu'aucun signal n'est visible en l'absence du champ THz et que la détection s'effectue donc sur fond noir.

### 2.2.1 Etude préliminaire en configuration homodyne

Si le cristal électro-optique est simplement placé entre deux polariseurs croisés, configuration représentée sur la figure 2.3, le signal mesuré à l'aide d'une simple photodiode est proportionnel à l'intensité du champ THz. En effet, le champ optique transmis au travers de l'analyseur situé juste avant le détecteur est proportionnel au déphasage induit par effet Pockels, lui-même proportionnel au champ THz. Le signal détecté par la photodiode est, quant à lui, proportionnel au carré du champ optique transmis, donc à l'intensité THz.

La figure 2.4-a) présente, en bleu, l'évolution du signal  $S_{\text{hom}} = E_{EO}^2$  en fonction du délai



**FIGURE 2.3** – Détection électro-optique homodyne dans un cristal électro-optique, entre polariseur et analyseur croisés. Les polariseurs en polyéthylène haute densité (HDPE) permettent de faire varier l'amplitude du champ THz.

temporel  $\tau$  entre le champ sonde et le champ THz. La courbe est superposée à l'intensité du champ THz,  $S_{\text{DEOC}}^2$ , mesurée grâce à la DEOC, et montre de grandes similitudes avec cette dernière, comme prévu par l'équation (2.33). On peut cependant remarquer que le signal  $S_{\text{hom}}$  n'atteint pas une valeur nulle lorsque c'est le cas pour le signal  $S_{\text{DEOC}}^2$ , par exemple à  $\tau = 2.3$  ps et  $\tau = 2.6$  ps. Pour expliquer ces différences, nous avons représenté les deux situations de détection, conventionnelle et homodyne, sur la figure 2.5. Le signal mesuré à la DEOC fait intervenir la corrélation entre l'intensité du champ sonde et l'amplitude du champ THz, soit :

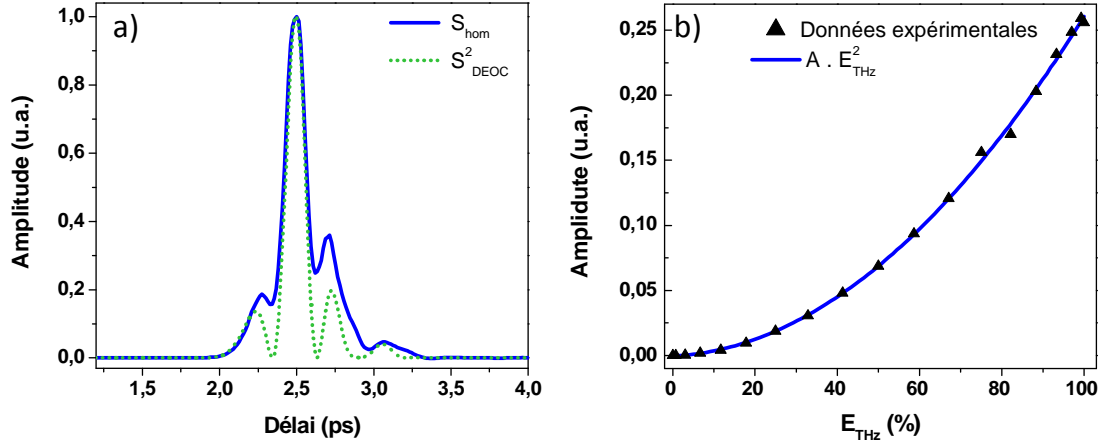
$$S_{\text{DEOC}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\text{THz}}(t) I_s(t - \tau) dt. \quad (2.31)$$

Cette situation est schématisée sur la figure 2.5-a) : l'impulsion sonde, représentée en rouge, se superpose au champ électrique réel de l'impulsion THz (en noir), pour donner un signal  $S_{\text{DEOC}}$  moyenné sur le temps (non montré ici). Aux points d'intérêt  $\tau = 2.3$  ps et  $\tau = 2.6$  ps, le champ THz change de signe tandis que l'intensité du champ sonde reste positive. Le signal résultant,  $S_{\text{DEOC}}^2$ , (en vert) pourra donc prendre une valeur nulle en ces points. Dans la seconde situation, schématisée sur la figure 2.5-b), le signal mesuré par la détection homodyne fait intervenir cette fois l'intensité du champ THz réel. Il va donc s'exprimer sous la forme :

$$S_{\text{hom}}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{THz}}(t) I_s(t - \tau) dt. \quad (2.32)$$

Ainsi, l'intensité sonde étant corrélée à l'intensité du champ THz, l'intégration sur le temps du produit de ces deux signaux positifs donnera un signal moyenné non nul au niveau des zéros de  $I_{\text{THz}}$ , ce qui explique la forme de  $S_{\text{hom}}$ .

Par ailleurs, nous avons mesuré la dépendance de l'amplitude du signal détecté par la méthode homodyne,  $S_{\text{hom}}$ , en fonction de l'amplitude du champ THz,  $E_{\text{THz}}$ . Le résultat est présenté sur la



**FIGURE 2.4** – Etude du signal mesuré dans un cristal de ZnTe de longueur  $L_c = 300 \mu\text{m}$ , à l’aide de la configuration homodyne entre polariseur et analyseur croisés. a) Forme temporelle du signal  $S_{\text{hom}}$  normalisé (en bleu) en fonction du retard entre le champ sonde et le champ THz. La courbe en pointillés verts correspond au signal électro-optique  $S_{\text{DEOC}}$  mesuré par la DEOC, normalisé et mis au carré. b) Dépendance du signal  $S_{\text{hom}}$  en fonction de l’amplitude,  $E_{\text{THz}}$ , du champ THz, dont la valeur est imposée à l’aide de deux polariseurs placés sur le trajet du faisceau THz.

figure 2.4-b) et l’on constate que les données expérimentales peuvent être ajustées à l’aide d’une fonction de la forme  $A \times E_{\text{THz}}^2$ , où  $A$  est une constante. Le signal mesuré à l’aide de la détection homodyne est donc proportionnel à l’intensité du champ THz, ce qui est en accord avec l’équation (2.29) et confirme l’absence d’effet Kerr THz dans nos conditions expérimentales.

Enfin, d’un point de vue mathématique, l’expression du champ  $\vec{E}_{s1}$  a été calculée précédemment à l’aide du formalisme de Jones (voir l’équation (2.30)) et le passage à travers l’analyseur et la photodiode permet d’écrire l’amplitude du signal détecté comme :

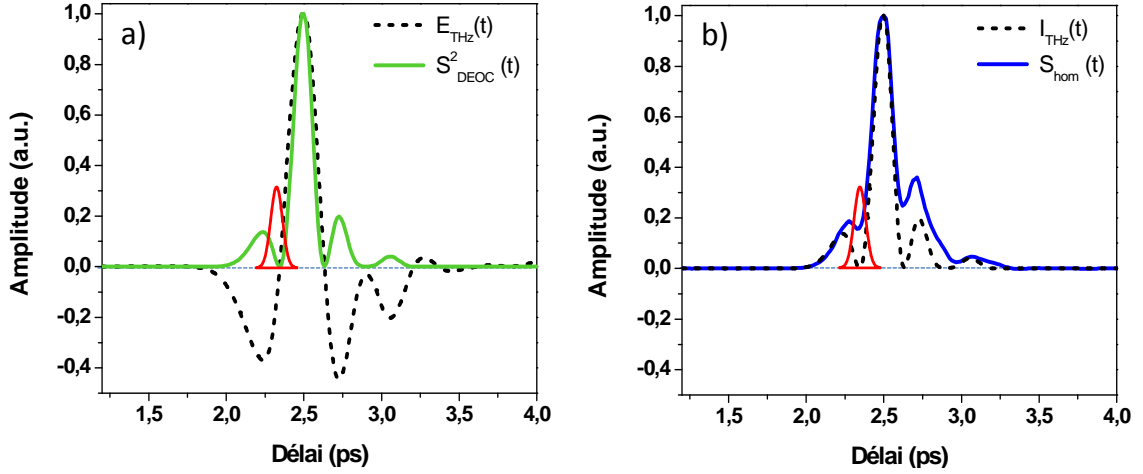
$$S_{\text{hom}} \propto E_{\text{EO}}^2 \propto E_s^2 \left\{ \frac{\pi L_c n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{\lambda_0} \right\}^2. \quad (2.33)$$

Il est ainsi possible de mesurer directement le carré du champ THz,  $E_{\text{THz}}^2$ , et d’en déduire son module. L’information sur la phase du champ THz est cependant perdue. Les paramètres  $L_c$ ,  $n_s$  et  $r_{41}$  sont les mêmes que pour la DEOC (voir la section 1.4.5.2) et, dans la pratique, la mesure du terme  $E_s^2$  s’effectue en l’absence de champ THz, avec l’analyseur orienté parallèlement à la direction de polarisation du champ sonde. Le rapport des deux signaux permet alors d’obtenir la valeur de  $E_{\text{THz}}^2$ , et donc le module du champ THz :

$$|E_{\text{THz}}| \approx \frac{\sqrt{S_{\text{hom}}/E_s^2}}{\frac{\pi}{\lambda_0} n_s^3 r_{41} t_c L_c}. \quad (2.34)$$

où  $t_c$  permet de tenir compte des pertes par réflexion du faisceau THz à la traversée de la face avant du cristal.

Remarquons que cette méthode, testée sur la source de rayonnement THz généré par le plasma, a permis d’obtenir une valeur de champ électrique  $E_{\text{THz}} \approx 74 \text{ kV/cm}$ , sensiblement identique à celle



**FIGURE 2.5** – Représentation schématique du principe des différentes détections électro-optiques conventionnelle et homodyne. Le faisceau sonde, d’une durée de quelques dizaines de femtosecondes, est représenté par le lobe rouge alors que le champ THz réellement généré par la source est représenté en noir. a) Détection électro-optique conventionnelle. b) Détection électro-optique homodyne. La courbe résultant de la corrélation entre l’impulsion sonde et le champ THz (respectivement l’intensité THz) est représentée en vert (respectivement en bleu).

mesurée en parallèle par la DEOC, à savoir  $E_{\text{THz}} \approx 70 \text{ kV/cm}$ . Malgré cela, l’absence d’information relative à la phase empêche la mise en œuvre de la technique homodyne pour caractériser en totalité la forme temporelle du champ THz.

Aussi, nous allons à présent détailler la stratégie que nous avons envisagée pour extraire à la fois l’information sur la phase et sur l’amplitude de l’onde THz, à savoir la mise en œuvre d’une détection hétérodyne.

## 2.2.2 Détection hétérodyne

S’inspirant des expériences de spectroscopie par effet Kerr optique résolue en temps [143,144], la technique hétérodyne consiste à mélanger au signal à détecter  $E_{\text{EO}}$ , de faible amplitude, un champ  $E_{\text{OL}}$ , appelé oscillateur local, en phase avec  $E_{\text{EO}}$ . D’un point de vue mathématique, le signal résultant de ce mélange peut s’écrire sous la forme :

$$S^{(+\beta)} \propto (E_{\text{OL}} + E_{\text{EO}})^2 = I_{\text{OL}} + I_{\text{EO}} + 2 \cdot E_{\text{OL}} \times E_{\text{EO}}, \quad (2.35)$$

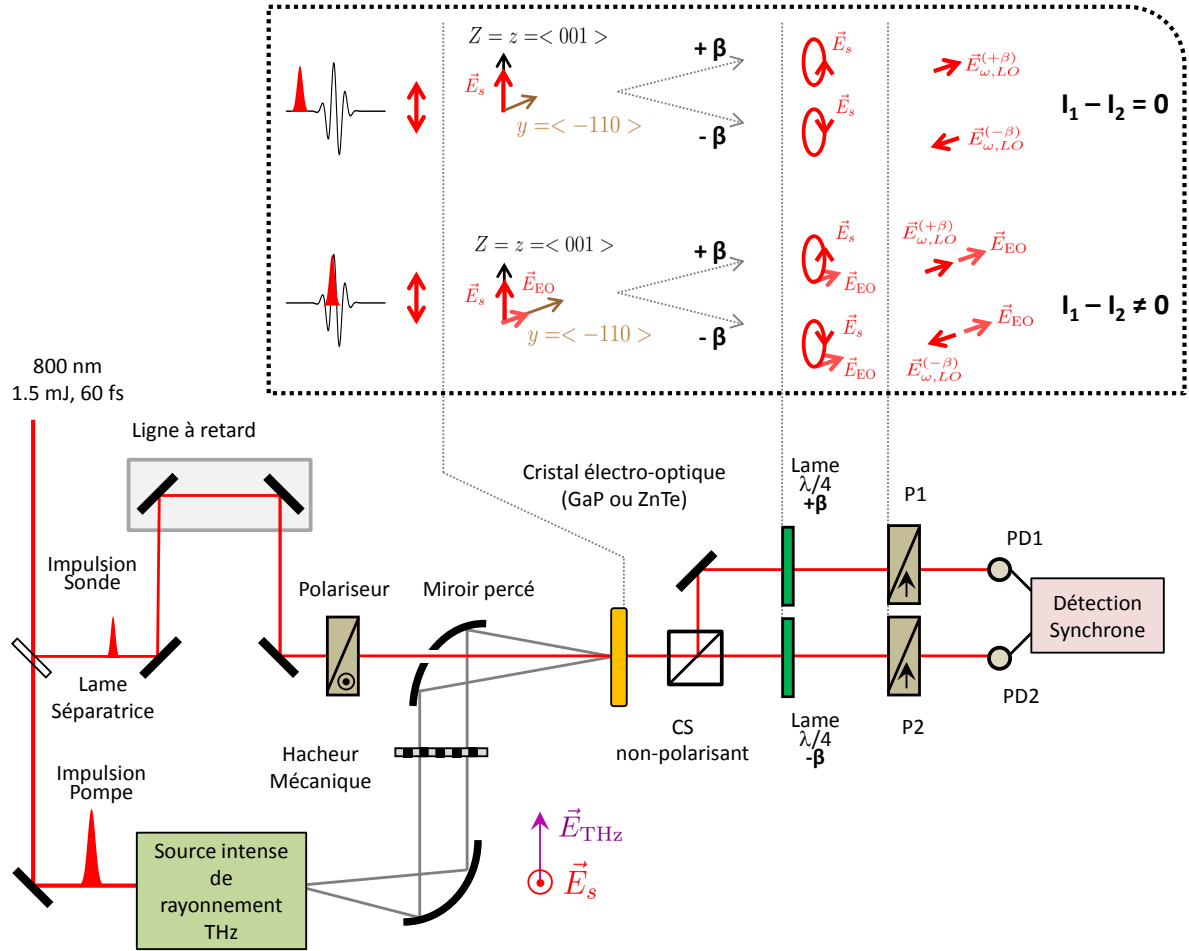
avec  $E_{\text{OL}}^2 = I_{\text{OL}}$  et  $E_{\text{EO}}^2 = I_{\text{EO}}$  et où l’on a considéré que  $E_{\text{OL}}$  et  $E_{\text{EO}}$  sont réels.

Le terme d’intensité dû à l’oscillateur local  $I_{\text{OL}}$  peut ensuite être filtré, de même que le terme d’intensité homodyne  $I_{\text{EO}}$ , afin que seul le terme croisé puisse être détecté. Dans le cas présent, le filtrage des termes  $I_{\text{OL}}$  et  $I_{\text{EO}}$  peut être réalisé simplement en soustrayant au signal total  $S^{(+\beta)}$  son antonyme  $S^{(-\beta)}$ , obtenu lorsque l’oscillateur local est en opposition de phase avec le signal à détecter :

$$S^{(-\beta)} \propto (E_{\text{OL}} - E_{\text{EO}})^2 = I_{\text{OL}} + I_{\text{EO}} - 2 \cdot E_{\text{OL}} \times E_{\text{EO}}. \quad (2.36)$$

La différence des deux signaux sera alors proportionnelle à l'amplitude du champ électro-optique, qui, dans notre cas, est proportionnel au déphasage  $\Gamma \cdot L_c$ , lui-même proportionnel au champ électrique THz. Nous présentons tout d'abord le dispositif expérimental réalisé pour effectuer la détection hétérodyne du champ THz.

### 2.2.2.1 Dispositif expérimental



**FIGURE 2.6** – Schéma du dispositif expérimental de détection hétérodyne intensimétrique. Le détecteur est constitué de deux photodiodes balancées, respectivement notées PD1 et PD2, le signal mesuré est donc égal à la différence entre les intensités de chacune de ces photodiodes. Les polariseurs sont notés P1 et P2, et le cube séparateur non polarisant qui partage le faisceau sonde en deux parties d'égales intensités est noté CS. L'encart présente les changements de polarisation du faisceau sonde, selon que les impulsions sonde et THz se recouvrent temporellement ou non.

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 2.6 et a été testé expérimentalement dans la configuration où les champs sonde et THz sont polarisés respectivement selon les axes  $\langle 001 \rangle$  et  $\langle -110 \rangle$  du cristal (voir la figure 2.2-a)). Après le passage dans le cristal, le champ sonde voit sa polarisation devenir légèrement elliptique. Notre objectif est de mesurer la composante de cette polarisation dans la direction orthogonale à la direction de polarisation initiale, soit selon l'axe  $Oy$ .

Nous proposons de séparer le faisceau sonde en deux parties d'égales intensités, à l'aide d'un cube séparateur non polarisant. L'ajout de filtres neutres de densités variables peut être nécessaire pour s'assurer que les intensités de chaque branche sont bien égales. Chacun des deux faisceaux est ensuite envoyé à travers un couple constitué d'une lame  $\lambda/4$  et d'un polariseur de Glan, et son intensité est mesurée à l'aide d'une photodiode.

Le dispositif fonctionne de la manière suivante : en l'absence de rayonnement THz, les deux polariseurs de Glan sont réglés de façon à supprimer tout passage du faisceau sonde, leur axe est donc orthogonal à la direction de polarisation de l'onde incidente  $\vec{e}_y$ . Des lames quart d'onde sont ensuite disposées devant les polariseurs, avec l'un des axes neutres parallèle à la direction  $\vec{e}_y$  et sont respectivement tournées d'un angle  $\pm\beta$  par rapport à ce dernier. Elles produisent ainsi deux oscillateurs locaux en opposition de phase et de même amplitude, orientés parallèlement au vecteur  $\vec{e}_y$ . Comme on peut le voir dans l'encart de la figure 2.6, en l'absence de champ THz, la différence des intensités mesurées par chacune des photodiodes est nulle. Au contraire, lorsque le champ THz est synchronisé avec l'impulsion sonde, leur interaction dans le cristal génère une modification de la polarisation du faisceau sonde. Le champ optique  $\vec{E}_{EO}$  induit par effet Pockels interfère alors avec l'oscillateur local dû à la présence de la lame d'onde. Selon le signe de l'angle  $\beta$ , les deux champs seront soit en phase, soit en opposition de phase : le signal dû à la différence des intensités mesurées par chaque photodiode sera donc non nul et proportionnel au module du champ THz, d'après les équations (2.35) et (2.36).

### 2.2.2.2 Mise en équation du signal électro-optique mesuré par détection hétérodyne intensimétrique

De même que précédemment, le formalisme de Jones permet de calculer l'expression du signal  $\Delta I_{\text{het}}$  détecté par le schéma hétérodyne intensimétrique.

1. Les coordonnées dans le repère du laboratoire du champ sonde ont été calculées précédemment et sont données par l'équation (2.26). Le passage de la sonde par le séparateur de faisceau divise l'amplitude  $E_s$  du champ par  $\sqrt{2}$  sans modifier l'état de polarisation, puis les deux lames quart d'onde modifient l'expression de chacun des faisceaux les traversant. Après la traversée de la lame dont l'axe neutre fait un angle  $+\beta$  avec la direction  $\vec{e}_y$ , le champ a pour expression :

$$\vec{E}_s^{(+\beta)} \propto R(-\beta) \times \begin{bmatrix} e^{i\pi/4} & 0 \\ 0 & e^{-i\pi/4} \end{bmatrix} \times R(\beta) \times \vec{E}_{s1}, \quad (2.37)$$

alors qu'après la lame dont l'axe neutre fait un angle  $-\beta$  avec  $\vec{e}_y$ , le champ a pour expression :

$$\vec{E}_s^{(-\beta)} \propto R(\beta) \times \begin{bmatrix} e^{i\pi/4} & 0 \\ 0 & e^{-i\pi/4} \end{bmatrix} \times R(-\beta) \times \vec{E}_{s1}. \quad (2.38)$$

2. En considérant comme précédemment la configuration où le champ sonde est orthogonal au champ THz orienté selon l'axe  $\vec{e}_y$ , le passage de chacun des deux faisceaux par le polariseur croisé nous donne uniquement les composantes selon la direction  $\vec{e}_y$ , ayant pour expression :

$$E_{s,y}^{(+\beta)} = -E_s \cdot \left\{ \sin\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) \cos(2\beta) - i \left[ \sin\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) + \sin(2\beta) \cos\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) \right] \right\}, \quad (2.39)$$

et

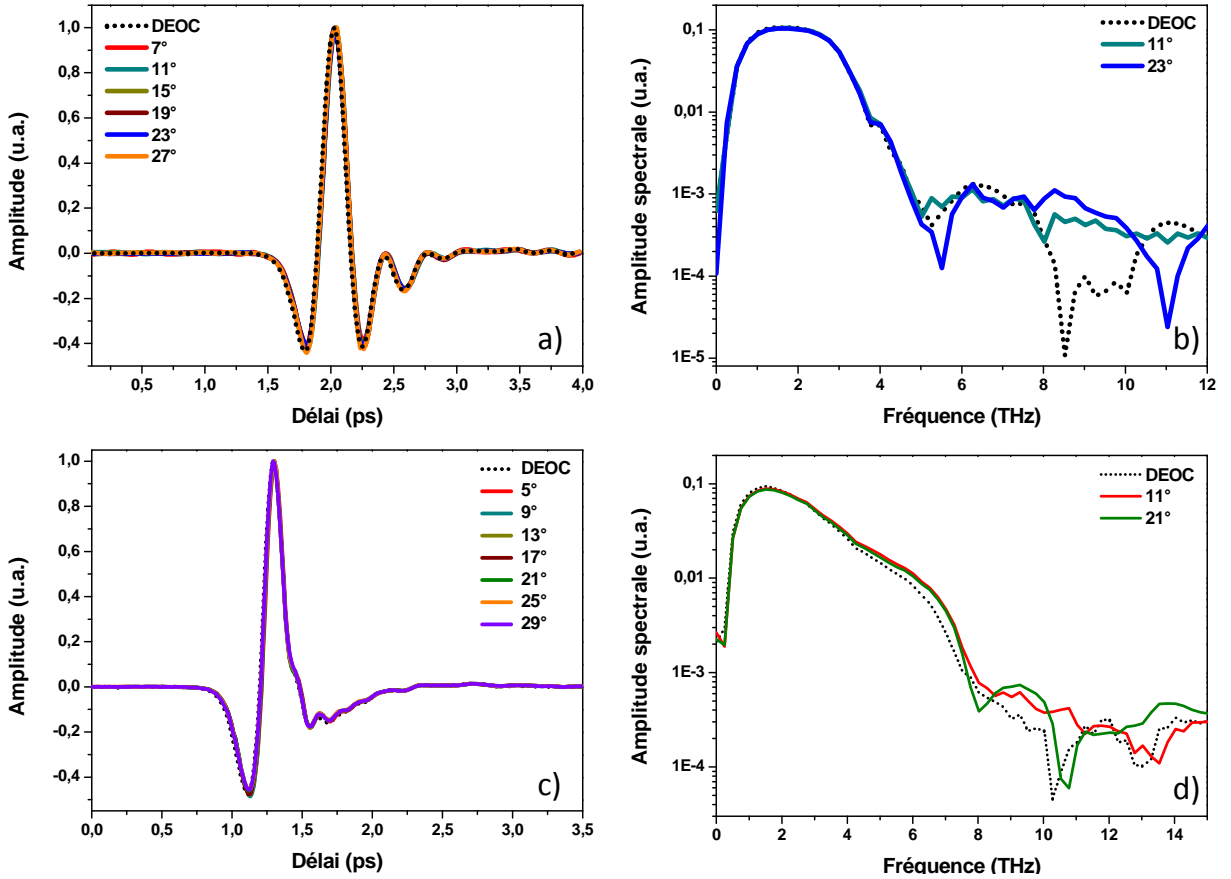
$$E_{s,y}^{(-\beta)} = -E_s \cdot \left\{ \sin\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) \cos(2\beta) - i \left[ \sin\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) - \sin(2\beta) \cos\left(\frac{\Gamma \cdot L_c}{2}\right) \right] \right\}. \quad (2.40)$$

Finalement, le signal mesuré à l'aide des deux photodiodes s'exprime selon :

$$\Delta I_{\text{het}} = |E_{s,y}^{(+\beta)}|^2 - |E_{s,y}^{(-\beta)}|^2 \propto E_s^2 \cdot \sin(2\beta) \cdot \sin(\Gamma \cdot L_c). \quad (2.41)$$

Ainsi, on retrouve la dépendance en  $\sin(\Gamma \cdot L_c)$  qui permet, puisque le déphasage induit par le champ THz est suffisamment faible devant 1, de mesurer directement la forme temporelle du champ THz en utilisant cette configuration. Un intérêt particulier sera porté aux valeurs de l'angle  $\pm\beta$  dont sont tournées les deux lames quart d'onde.

### 2.2.2.3 Détection hétérodyne intensimétrique : résultats expérimentaux

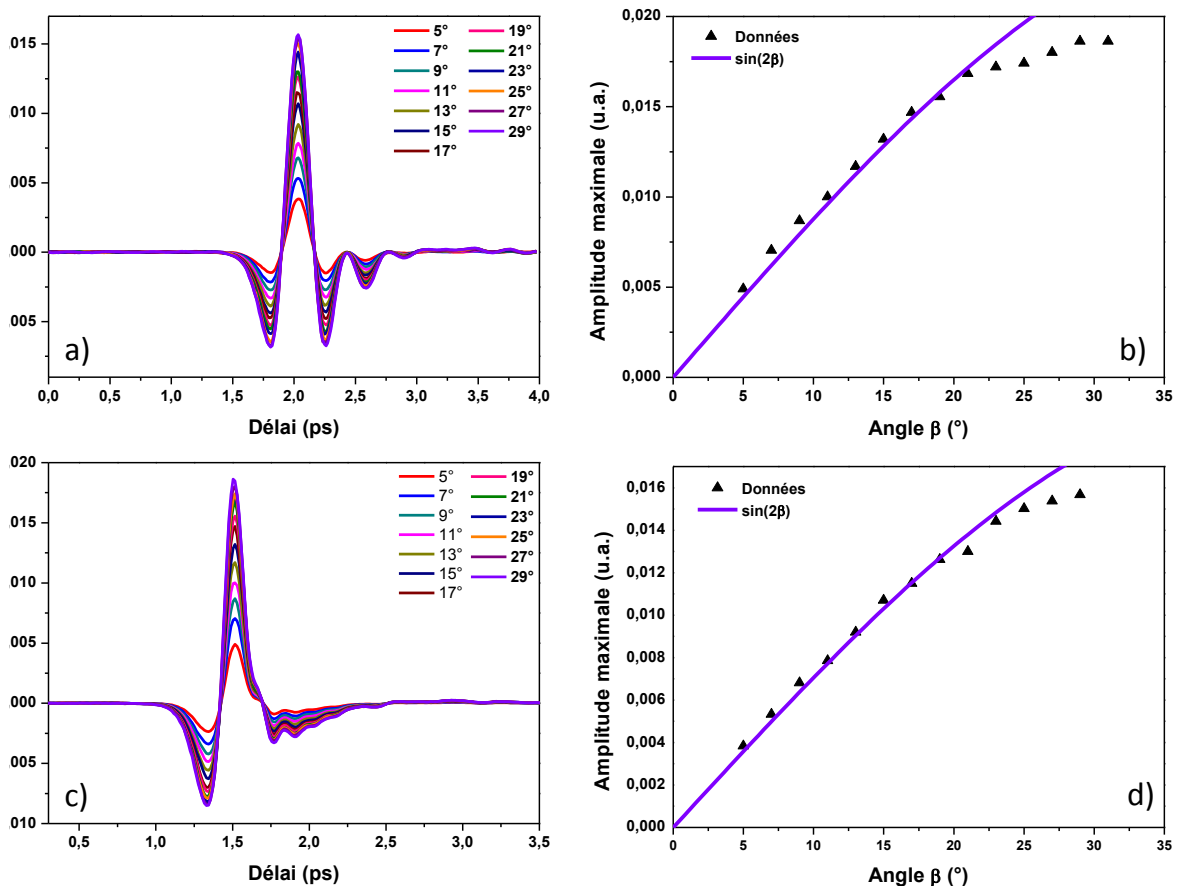


**FIGURE 2.7** – Détection hétérodyne intensimétrique effectuée dans des cristaux de ZnTe (a-b) et de GaP (c-d) : a - c) Amplitude du champ THz, normalisée par son maximum, mesurée pour différents angles  $\beta$  en fonction du délai temporel entre l'impulsion THz et l'impulsion sonde, et comparaison avec le signal mesuré par DEOC. b-d) Comparaison des spectres associés, obtenus par transformation de Fourier.

Nous présentons sur les figures 2.7 et 2.8 les résultats expérimentaux obtenus par la détection hétérodyne intensimétrique. Sur la figure 2.7, les signaux sont normalisés par leur maximum et

mesurés pour des angles  $\pm\beta$  appliqués aux lames à retard situés entre  $5^\circ$  et  $30^\circ$ . Les mesures ont été effectuées dans deux cristaux distincts de GaP et de ZnTe, taillés selon l'axe  $\langle 110 \rangle$  et de longueurs respectives  $L_c = 220 \mu\text{m}$  et  $L_c = 300 \mu\text{m}$ .

Le champ électrique THz a également été mesuré, en parallèle, à l'aide de la détection EO conventionnelle et est représenté en pointillés noirs. Les signaux temporels, présentés sur la figure 2.7-a) et c), montrent une très grande similarité, ce qui confirme la validité de la nouvelle détection hétérodyne intensimétrique que nous avons développée. Les faibles différences visibles au niveau des deux oscillations entourant le pic principal peuvent être expliquées de la manière suivante : si les angles d'hétérodynage de chaque lame ne sont pas exactement égaux en valeur absolue, la contribution homodyne,  $I_{EO}$ , qui est *a priori* éliminée par la soustraction des signaux (voir les équations (2.35) et (2.36)), est susceptible d'influer sur l'apparence des signaux. D'autre part, la comparaison des spectres (voir les figures 2.7-b) et d)) montre que les deux détections ont des performances équivalentes, avec des rapports signal sur bruit très proches, de l'ordre de  $10^3$ .



**FIGURE 2.8** – Détection hétérodyne intensimétrique effectuée dans des cristaux de ZnTe (a-b) et de GaP (c-d) : a - c) Amplitude du champ THz mesurée pour différents angles  $\beta$  en fonction du délai temporel entre l'impulsion THz et l'impulsion sonde. b-d) Maximum de l'amplitude du signal, en fonction de l'angle  $\beta$  de la lame quart d'onde. La courbe d'ajustement (en violet) correspond à la fonction  $\beta \rightarrow \sin(2\beta)$ .

Une observation un peu plus attentive des signaux temporels, présentés par ailleurs sans être normalisés sur les figures 2.8-a) et c), révèle cependant quelques petites différences, visibles en particulier lorsque l'angle  $\beta$  dépasse la vingtaine de degrés. Les figures 2.8-b) et d) permettent de



---

quantifier ces variations : elles représentent le maximum de l'amplitude du champ électrique THz en fonction de l'angle de la lame quart d'onde  $\beta$ . Selon l'expression (2.41), cette variation doit suivre la fonction  $\beta \rightarrow \sin(2\beta)$ , et ce quel que soit *a priori* l'angle  $\beta$ . On constate effectivement que, pour chacun des deux cristaux, les résultats expérimentaux sont cohérents avec la courbe d'ajustement (en violet) issue de la fonction  $\beta \rightarrow \sin(2\beta)$ , pour des angles inférieurs à  $\beta_0 = 20^\circ$ . Mais, à partir de  $\beta_0$ , un comportement de saturation est observé : la détection hétérodyne intensimétrique ne peut plus être considérée comme linéaire. Ceci peut s'expliquer par le fait que, lorsque l'angle  $\beta$  augmente, la contribution homodyne,  $I_{EO}$ , devient de plus en plus importante et peut conduire à la saturation des photodiodes. Remarquons enfin que, en règle générale, les expériences équivalentes en terme d'hétérodynage et qui sont décrites dans la littérature sont effectuées pour des angles  $\beta$  petits [145, 146].

Nous avons donc conçu et expérimenté une nouvelle façon de détecter un champ THz qui ne nécessite pas d'employer un prisme de Wollaston et dont l'alignement est donc simplifié. Il faut s'assurer cependant qu'on reste bien dans un régime linéaire et qu'on garde un angle d'hétérodynage  $\beta$  suffisamment petit. La comparaison de cette détection avec la DEOC montre que nous obtenons les mêmes performances, que ce soit du point de vue du rapport signal sur bruit ou de celui des formes temporelle et spectrale du champ THz.

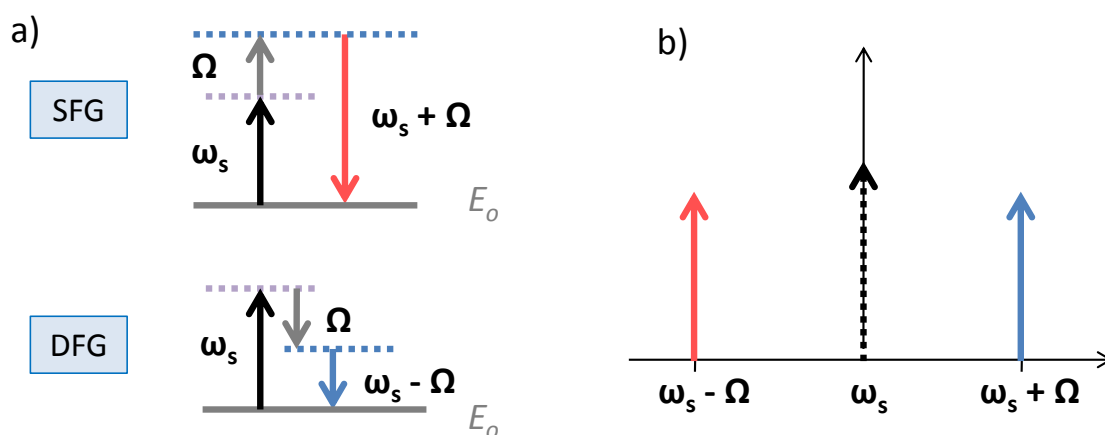
Par ailleurs, nous verrons une mise en œuvre de cette alternative à la détection électro-optique ellipsométrique dans le chapitre suivant.

## 2.3 Évolution du spectre d'une impulsion optique générée par effet Pockels : application à la mesure de la dérive de fréquence de cette dernière

Nous avons vu précédemment que l'effet Pockels induit par un champ THz dans un cristal de type zinc-blende peut induire une modulation de l'amplitude ou de la phase de l'impulsion sonde (voir la remarque faite au point 3b de la section 1.4.5.2). Mais qu'en est-il de son spectre ?

D'un point de vue spectral, l'effet Pockels induit par un champ THz dans un cristal de structure zinc-blende a été décrit par Gallot *et al.* en 1999 comme un processus non-linéaire de sommation (SFG) et de différence (DFG) de fréquences, comme le montre la figure 2.9-a) [90]. Aussi le spectre généré par la polarisation non-linéaire correspondant à l'effet Pockels peut-il être schématisé en première approximation comme sur la figure 2.9-b) : deux impulsions centrées à  $\omega_s \pm \Omega$  entourent l'impulsion primaire centrée à  $\omega_s$ . Remarquons que, selon l'orientation des champs THz et sonde, cette dernière composante est présente ou non dans le spectre généré par effet Pockels (voir la suite de ce paragraphe, et la figure 2.10 pour plus de détails à ce propos).

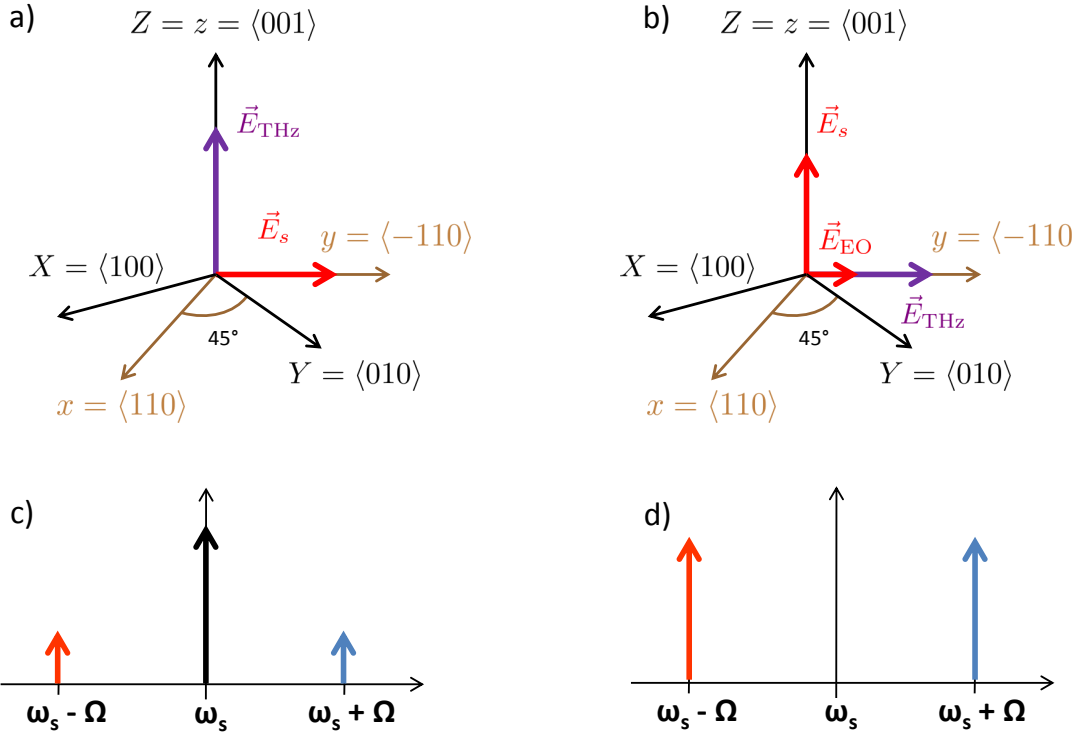
Toutefois, lorsque le champ THz devient très intense, des processus non-linéaires additionnels d'ordre supérieur peuvent apparaître et affecter également le spectre de l'impulsion sonde. En 2007, Shen *et al.* ont ainsi démontré l'existence d'une modulation de phase croisée induite sur le champ optique par des impulsions THz extrêmement intenses dans un cristal de ZnTe taillé selon la direction  $\langle 110 \rangle$  [37, 147]. Les auteurs ont adopté la configuration représentée sur la figure 2.10-a), pour laquelle le champ THz était polarisé selon la direction  $z$  du cristal et le champ sonde



**FIGURE 2.9** – Point de vue spectral sur l’effet Pockels. L’état d’énergie fondamentale est désigné par  $E_0$ . a) Ajout de composantes fréquentielles supplémentaires au spectre de l’impulsion sonde, par sommation (SFG) ou différence de fréquences (DFG). b) Représentation schématique du nouveau spectre de l’impulsion, suite à son interaction avec l’impulsion THz. La présence de la composante optique centrée à  $\omega_s$  dépend de l’orientation des polarisations des champs THz et sonde.

orthogonalement. Les impulsions THz employées étaient, par ailleurs, générées par un faisceau d’électrons au sein d’un accélérateur et atteignaient la centaine de  $\mu\text{J}$ , avec un champ électrique d’amplitude  $\approx 1 \text{ MV/cm}$ , soit dix à cent fois plus importante que celle produite par nos sources THz. Le processus de modulation de phase croisée est un effet non-linéaire du troisième ordre, au cours duquel la phase de l’impulsion optique est modifiée par l’impulsion THz, ce qui a des conséquences dans le domaine spectral, entre autres. Ce phénomène s’ajoute donc à la SFG et à la DFG décrites par Gallot *et al.*. Shen *et al.* décrivent ainsi le décalage du spectre vers les hautes et les basses fréquences, selon le délai temporel  $\Delta t$  entre les impulsions THz et optique (voir les figures 2.11-b) et d) et e)), ainsi que son élargissement. Par exemple, lorsque l’impulsion optique est en coïncidence temporelle avec l’un des pics du champ THz (par exemple pour  $\Delta t = \pm 190 \text{ fs}$ ), la dérivée du champ THz par rapport au temps devient nulle et la phase spectrale devient simplement quadratique : l’impulsion se voit donc imposer une dérive de fréquence linéaire. Les auteurs mettent donc en exergue la possibilité d’imposer à l’impulsion optique une modification de sa phase, à l’aide d’un champ THz intense. De plus, ils ont mené des simulations numériques qui rendent bien compte des résultats expérimentaux. Notons que celles-ci sont basées sur la résolution des équations couplées de propagation non-linéaire pour les impulsions sonde et THz, qui tiennent compte de la SFG et DFG induite par l’effet Pockels et des processus d’auto-modulation de phase (SPM) et de modulation de phase croisée (XPM) induits par l’effet Kerr. On pourra se reporter à l’article [37] pour plus de détails.

Pour résumer, l’interaction induite par effet Pockels entre une impulsion optique et une onde THz peut être vue de deux manières distinctes, selon la configuration des polarisations des champs THz et sonde, représentées sur la figure 2.10. D’une part, on peut la considérer comme une modulation d’amplitude, très souvent employée pour la détection du champ THz et décrite dans la partie 1.4.5.2. D’autre part, la variation induite par le champ THz peut également être vue comme une modulation de phase, point de vue plus inhabituel mais qui a cependant été largement décrit dans [37, 147]. En se référant au point 3b de la partie 1.4.5.2, on peut montrer de façon intuitive que, selon le choix des directions de polarisation des champs sonde et THz en amont du cristal, le



**FIGURE 2.10** – Points de vue sur la modulation induite par effet Pockels sur une impulsion optique. a) La géométrie où le champ THz est orienté selon l’axe  $\langle 001 \rangle$  et le champ sonde selon l’axe  $\langle -110 \rangle$  permet de mettre en évidence la modulation de phase décrite par Shen *et al.* [37,147]. b) En parallèle, la géométrie des champs, avec l’impulsion optique polarisée selon la direction  $\langle 001 \rangle$  et l’onde THz polarisée selon l’axe  $\langle -110 \rangle$ , permet de générer un champ électrique  $\vec{E}_{EO}(t)$ , dont l’amplitude varie en fonction du champ THz, avec  $E_{EO} \propto E_s \times \sin(\Gamma L_c/2)$ . D’un point de vue spectral, les deux modulations c) de phase d) et d’amplitude résultent toutes deux en une modification du spectre par SFG et DFG, bien que pour la modulation d’amplitude, les composantes fréquentielles de l’impulsion optique initiale soient absentes du spectre de  $\vec{E}_{EO}$ .

résultat de la modulation induite par le champ THz dans le domaine spectral diffère.

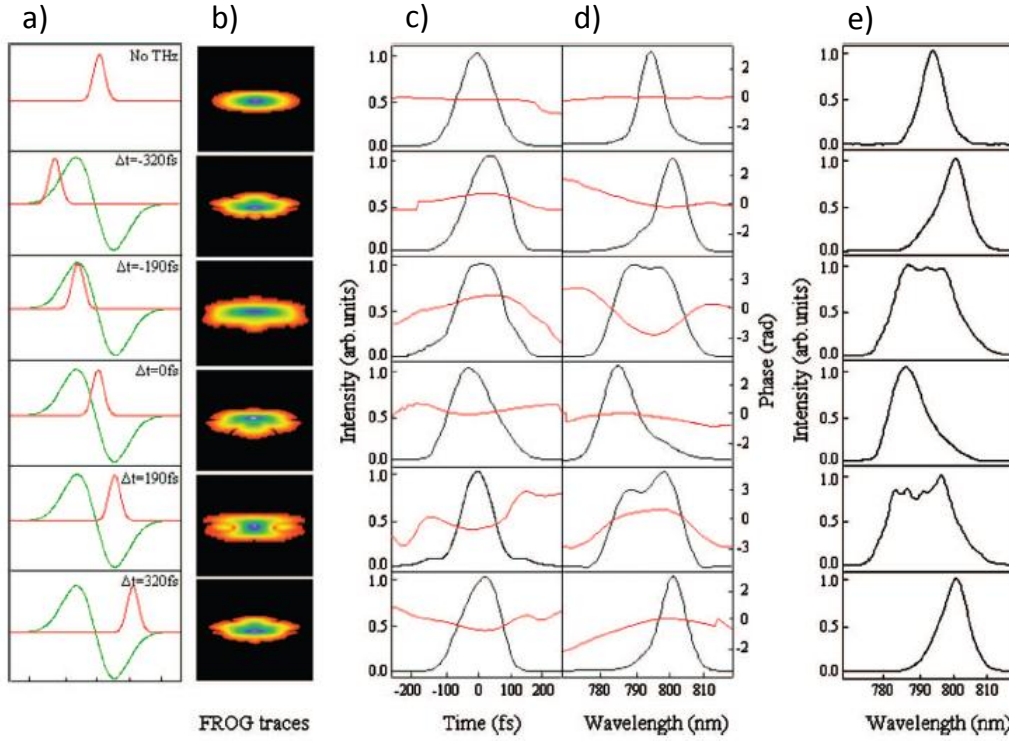
1. Du point de vue de la modulation d’amplitude, on a déjà vu que l’amplitude de la composante électro-optique  $\vec{E}_{EO}$  générée par effet Pockels en sortie du cristal selon l’axe  $\langle -110 \rangle$  dans la configuration décrite sur la figure 2.10-b), s’écrit sous la forme (voir l’équation (1.61)) :

$$E_{EO}(L_c) \propto E_s \cdot \Gamma L_c.$$

Ainsi, si on a  $E_s(t) \propto \cos(\omega_s t)$  et  $E_{THz}(t) \propto \cos(\Omega t)$ , l’impulsion optique transmise par un polariseur parallèle à la direction  $\langle -110 \rangle$  s’exprime comme :

$$E_{EO}(t, L_c) \propto L_c \cdot \cos(\omega_s t) \cos(\Omega t) \propto \frac{L_c}{2} [\cos((\omega_s - \Omega)t) + \cos((\omega_s + \Omega)t)],$$

ce qui se traduit, dans le domaine spectral, par l’apparition de deux composantes centrées à  $\omega_s \pm \Omega$  (voir la figure 2.10-d).



**FIGURE 2.11** – Extrait de la référence [37] : a) Illustration du recouvrement entre les impulsions THz et optique en fonction du délai  $\Delta t$  imposé. b) Traces FROG de l'impulsion optique en fonction de  $\Delta t$ . c) et d) Phases et amplitudes de l'impulsion optique dans les domaines fréquentiel et temporel, en fonction du délai  $\Delta t$  entre les impulsions optique et THz, déterminés à partir de la trace FROG correspondante. On voit clairement l'élargissement et la translation du spectre vers les hautes ou les basses fréquences, selon le recouvrement des différentes parties de l'impulsion THz par l'impulsion sonde. e) Spectres de l'impulsion optique mesurés avec un spectromètre, en fonction de  $\Delta t$ .

2. En parallèle, on a vu que, dans le cas de la modulation de phase, l'amplitude de l'impulsion optique en sortie du cristal peut s'exprimer sous la forme (voir l'équation (1.62)) :

$$E_s(L_c) \propto E_s(0) \times e^{i\Gamma L_c/2}.$$

soit, avec les mêmes notations que précédemment :

$$E_s(t, L_c) \propto E_s(0) \cos(\omega_s t + \Gamma L_c/2),$$

ou encore :

$$E_s(t, L_c) \propto E_s(0) \times [\cos(\omega_s t) \cdot \cos(\Gamma L_c/2) - \sin(\omega_s t) \cdot \sin(\Gamma L_c/2)].$$

Dans le cas où  $\Gamma \cdot L_c \ll 1$ , l'expression de l'impulsion à la sortie du cristal devient :

$$E_s(t, L_c) \propto \cos(\omega_s t) - \Gamma L_c \sin(\omega_s t),$$

soit, puisque  $\Gamma \propto \cos(\Omega t)$  :

$$E_s(t, L_c) \propto \cos(\omega_s t) - \frac{C \cdot L_c}{2} [\sin((\omega_s - \Omega)t) + \sin((\omega_s + \Omega)t)],$$

---

où  $C$  est une constante. Ceci revient également à l'apparition, dans le domaine spectral, de deux composantes centrées à  $\omega_s \pm \Omega$  autour du spectre de l'impulsion optique initiale, centré à  $\omega_s$  (voir la figure 2.10-c).

On constate donc que, dans la configuration 1), le spectre de la composante  $\vec{E}_{\text{EO}}$  est *a priori* isolé du spectre de l'impulsion optique initialement centrée à  $\omega_s$ . Contrairement aux expériences effectuées par Shen *et al.*, si l'on réussit à isoler cette composante bien particulière, seule les fréquences générées par SFG et DFG seront visibles. L'intérêt de la configuration 1) décrite sur la figure 2.10-b) est donc de s'affranchir du spectre de l'impulsion sonde initiale.

Par ailleurs, contrairement à Shen *et al.* ou à Turchinovich *et al.*, nous utiliserons un champ électrique THz ayant une amplitude suffisamment faible pour ne générer ni modulation de phase croisée ni auto-modulation de phase dans le matériau [26]. Nous avons déjà éprouvé la validité de cette hypothèse à la partie 2.2.1 - figure 2.4-b), puisque nous avons montré que l'intensité de la composante  $\vec{E}_{\text{EO}}$  mesurée en sortie du cristal de ZnTe à l'aide d'une simple photodiode reste linéaire par rapport à l'amplitude du champ THz. Cela signifie bien que les effets indésirables du troisième ordre comme la XPM et la SPM, dont l'amplitude est proportionnelle à  $E_{\text{THz}}^2$ , ne sont pas visibles dans nos conditions expérimentales. De la même manière, et afin d'éviter toute contribution éventuelle d'un effet non-linéaire du troisième ordre ayant lieu dans le domaine optique, l'intensité de l'impulsion optique ne devra également pas être trop élevée. Enfin, comme on l'a vu précédemment, l'expérience que nous proposons sera effectuée du point de vue de la modulation en amplitude et non en phase, ce qui la distingue d'autant plus des études effectuées par Shen *et al.*.

Dans un premier temps, nous allons reprendre le calcul effectué à la partie 2.1 afin de déterminer l'expression analytique du spectre de la composante électro-optique. Notons que nous avons simulé l'évolution de cette dernière en fonction du retard entre les impulsions optique et THz, et nous présenterons donc rapidement le modèle sur lequel sont basées ces simulations. Nous nous intéresserons ensuite au dispositif expérimental, avant d'exposer les résultats expérimentaux et les simulations numériques associées.

### 2.3.1 Modèle analytique de l'évolution du spectre de l'impulsion optique générée par effet Pockels

Cette section est dédiée au modèle analytique de l'évolution du spectre de la composante électro-optique  $\vec{E}_{\text{EO}}$  en fonction du retard  $\tau$  entre les impulsions optique et THz.

#### 2.3.1.1 Établissement de l'expression mathématique du spectre en l'absence de dispersion de la vitesse de groupe (GVD) pour l'impulsion sonde

L'analyse théorique présentée à la partie 2.1 nous a permis d'obtenir une expression analytique de l'enveloppe de la composante électro-optique,  $\mathcal{E}_{\text{EO}} = \mathcal{E}_{s,y}$ , dans le domaine temporel, à l'aide

de l'équation (2.29) :

$$\mathcal{E}_{s,y}(t', \tau, L_c) = i \mathcal{E}_{s,z}(t', 0) \cdot Q \int_0^{L_c} E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) dx.$$

On passe maintenant dans le domaine spectral pour pouvoir décrire simplement les effets de la dispersion sur l'impulsion THz. Ainsi, le terme  $\mathcal{E}_{s,z}(t', 0)$  à l'entrée du cristal s'écrit comme :

$$\mathcal{E}_{s,z}(t', 0) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}_{s,z}(\omega', 0) \cdot e^{-i\omega't'} d\omega' \quad (2.42)$$

et le champ THz a pour expression :

$$E_{\text{THz}}(t', x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\text{THz}}(\Omega, x) \cdot e^{-i\Omega t'} d\Omega, \quad (2.43)$$

avec

$$E_{\text{THz}}(\Omega, x) = E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{i\frac{\Omega \cdot \tilde{n}(\Omega) \cdot x}{c}},$$

où le terme de phase  $e^{i\frac{\Omega \cdot \tilde{n}(\Omega) \cdot x}{c}}$  permet de tenir compte de l'absorption et de la dispersion de l'onde THz dans le milieu, par l'intermédiaire de l'indice de réfraction complexe,  $\tilde{n}$ . De même, en prenant en compte le fait que la vitesse de groupe  $v_g$  s'écrit aussi  $c/n_g$ , et que l'impulsion optique est retardée de  $\tau$  par rapport à l'impulsion THz, on peut écrire que :

$$E_{\text{THz}} \left( t' + \tau + \frac{x}{v_g}, x \right) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{i\frac{\Omega \cdot (\tilde{n}(\Omega) - n_g) \cdot x}{c}} e^{-i\Omega \tau} \cdot e^{-i\Omega t'} d\Omega. \quad (2.44)$$

À partir de ces différentes expressions, l'équation (2.29) devient alors :

$$\mathcal{E}_{s,y}(t', \tau, L_c) = iQ \cdot \int_0^{L_c} dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \mathcal{E}_{s,z}(\omega', 0) e^{-i\omega't'} \times E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{i\frac{\Omega}{c}(\tilde{n}(\Omega) - n_g)x} \cdot e^{-i\Omega(\tau + t')}. \quad (2.45)$$

Dans l'expérience, nous avons étudié l'évolution du spectre de l'impulsion en sortie du cristal, proportionnel au terme  $\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, L_c) = \mathcal{E}_{s,y}(\omega, L_c)$ . Pour obtenir son expression analytique, il suffit donc d'effectuer la transformation de Fourier de l'équation (2.45), à savoir :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}_{s,y}(t', L_c) \cdot e^{i\omega t'} dt'. \quad (2.46)$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) &= i \cdot Q \cdot \int_0^{L_c} dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \mathcal{E}_{s,z}(\omega', 0) \cdot e^{-i\Omega \tau} \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \\ &\quad \times e^{i\frac{\Omega \cdot (\tilde{n}(\Omega) - n_g) \cdot x}{c}} \times \underbrace{\int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(\omega t' - \omega' t' - \Omega t')} dt'}_{=2\pi \cdot \delta(\omega - \Omega - \omega')}. \end{aligned} \quad (2.47)$$

L'expression analytique finale du spectre de l'enveloppe de la composante optique générée par effet Pockels selon la direction  $\vec{e}_y$  est donnée par :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = i \cdot Q \cdot \int_0^{L_c} dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \mathcal{E}_{s,z}(\omega - \Omega, 0) \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{-i\Omega \tau} \cdot e^{i\frac{\Omega \cdot (\tilde{n}(\Omega) - n_g) \cdot x}{c}}. \quad (2.48)$$

### 2.3.1.2 Prise en compte de la dispersion de la vitesse de groupe pour l'impulsion optique

Dans les calculs effectués précédemment, il est à noter que nous n'avons pas tenu compte de la dispersion de la vitesse de groupe de l'impulsion sonde au sein du cristal de ZnTe, et que nous avons considéré que l'impulsion sonde incidente était limitée par transformée de Fourier, *i.e.* qu'elle présente une phase spectrale nulle. Cependant, si l'on peut considérer cette dernière hypothèse comme plausible en sortie de l'amplificateur, où la durée d'impulsion est de l'ordre de 60 fs, il n'en est pas de même à l'entrée du cristal, du fait notamment des diverses optiques présentes sur le trajet du faisceau. Dans les meilleures conditions, nous avons ainsi mesuré à l'auto-corrélateur une largeur à mi-hauteur en intensité de 75 fs en amont du cristal de ZnTe. Aussi est-il nécessaire d'affiner le modèle analytique en tenant compte de l'influence de la dérive de fréquence de l'impulsion optique initiale. Nous en profiterons également pour intégrer à l'analyse la dispersion de la vitesse de groupe (GVD) pour l'impulsion sonde au sein du cristal de ZnTe.

On rappelle que, lorsque la phase spectrale d'une impulsion varie en fonction de la fréquence, on dit que celle-ci n'est pas limitée par transformée de Fourier et qu'elle présente une dérive de fréquence ou « chirp ». Pour tenir compte de cette dérive de fréquence dans l'analyse théorique du spectre de l'impulsion générée par effet Pockels, il nous faut remplacer le terme  $\mathcal{E}_{s,z}(\omega, 0)$  par :

$$\mathcal{E}_{s,z}(\omega, x) = \mathcal{E}_{s,z}(\omega, 0) \cdot e^{i\phi(\omega, x)} \quad (2.49)$$

avec le terme de phase  $\phi$  défini par :

$$\phi(\omega, x) = \frac{1}{2} \cdot \phi_{\text{in}}^{(2)} \cdot \omega^2 + \frac{1}{2} \beta_s \cdot x \cdot \omega^2. \quad (2.50)$$

où  $\phi_{\text{in}}^{(2)}$  est la dispersion quadratique de l'impulsion sonde incidente sur le cristal. Remarquons qu'on a également tenu compte de la dispersion de la vitesse de groupe dans le ZnTe à 800 nm, grâce au terme  $\beta_s = \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega_s}$ , avec  $k(\omega) = \frac{n(\omega)\omega}{c}$  le vecteur d'onde de l'impulsion sonde et  $n(\omega)$  l'indice de réfraction dans le cristal (voir l'annexe A, équation (A.9)).

L'équation (2.48) devient alors :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = i \cdot Q \cdot \int_0^{L_c} dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \mathcal{E}_{s,z}(\omega - \Omega, 0) \cdot e^{i(\phi_{\text{in}}^{(2)} + \beta_s \cdot x) \frac{(\omega - \Omega)^2}{2}} \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{-i\Omega\tau} \cdot e^{i\frac{\Omega \cdot (\tilde{n}(\Omega) - n_g) \cdot x}{c}}.$$

En définissant le terme  $\Delta k'(\Omega) = \frac{\Omega}{c} \cdot [\tilde{n}(\Omega) - n_g] + \frac{\beta_s}{2} \cdot (\omega - \Omega)^2$ , on peut réécrire l'expression précédente sous la forme :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = i \cdot Q \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} \int_0^{L_c} dx \cdot e^{i\Delta k'(\Omega)x} \mathcal{E}_{s,z}(\omega - \Omega, 0) \cdot e^{i\phi_{\text{in}}^{(2)} \frac{(\omega - \Omega)^2}{2}} \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{-i\Omega\tau}.$$

soit :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = i \cdot Q \cdot L_c \times \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} e^{i\Delta k' L_c / 2} \cdot \text{sinc} \left\{ \frac{\Delta k'(\Omega) L_c}{2} \right\} \cdot \mathcal{E}_{s,z}(\omega - \Omega, 0) \cdot e^{i\phi_{\text{in}}^{(2)} \frac{(\omega - \Omega)^2}{2}} \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{-i\Omega\tau}. \quad (2.51)$$

Cette nouvelle équation intègre donc la GVD due au ZnTe, ainsi que la dérive de fréquence de l'impulsion optique incidente sur le cristal.

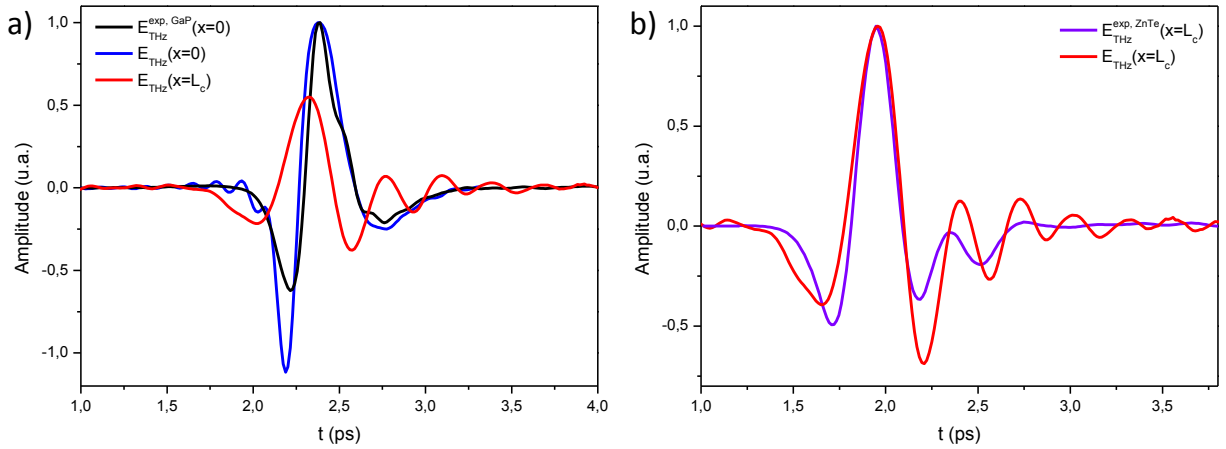
Nous allons maintenant présenter le modèle à partir duquel nous avons effectué des simulations numériques de l'évolution du spectre de la composante électro-optique en fonction du retard  $\tau$ .

### 2.3.1.3 Modèle théorique

À l'aide de l'analyse théorique développée précédemment, nous pouvons simuler numériquement la dynamique d'évolution du spectre de la composante électro-optique en fonction du retard entre les impulsions optique et THz. Pour ce faire, nous avons enchaîné plusieurs étapes :

- A l'aide de la technique de détection électro-optique conventionnelle dans un cristal de GaP de longueur  $200 \mu\text{m}$ , la forme temporelle du champ électrique THz a pu être mesurée expérimentalement. Elle est représentée en noir sur la figure 2.12-a). Par une transformation de Fourier, nous en avons alors obtenu le spectre :

$$E_{\text{THz}}^{\text{exp,GaP}}(t, x = 0) \xrightarrow{\text{TF}} E_{\text{THz}}^{\text{exp,GaP}}(\Omega, x = 0)$$



**FIGURE 2.12** – Évolution des formes temporelles normalisées du champ THz au fur et à mesure des étapes de simulation numérique : a)  $E_{\text{THz}}^{\text{exp,GaP}}(t, x = 0)$  est représenté en noir,  $E_{\text{THz}}(t, x = 0)$  en bleu et  $E_{\text{THz}}(t, x = L_c)$  en rouge. b) Comparaison entre les formes temporelles du champ électrique THz simulée,  $E_{\text{THz}}(t, x = L_c)$  en rouge, et expérimentale,  $E_{\text{THz}}^{\text{exp,ZnTe}}(t, x = L_c)$  en violet.

- Cependant, le passage de l'impulsion à travers le cristal de GaP, de longueur  $L_c^{\text{GaP}} = 200 \mu\text{m}$ , filtre une partie du spectre, du fait du phonon présent à 11 THz. Aussi, pour obtenir le spectre réel de l'impulsion THz générée par le plasma, nous avons calculé le spectre de l'impulsion en amont du cristal de GaP à l'aide de son indice de réfraction complexe,  $\tilde{n}^{\text{GaP}}(\Omega)$ , en multipliant le spectre détecté par un facteur compensant la dispersion et l'absorption du GaP, soit :

$$E_{\text{THz}}^{\text{exp,GaP}}(\Omega, x = 0) \cdot e^{-i\Omega\tilde{n}^{\text{GaP}}(\Omega)L_c^{\text{GaP}}/c} \rightarrow E_{\text{THz}}(\Omega, x = 0)$$



Le spectre ainsi obtenu correspond donc à celui de l'impulsion THz générée directement par le plasma. Remarquons que ceci n'est *a priori* valable que sur le domaine 0.5 - 8 THz, du fait de la singularité mathématique présente à 11 THz, causée par le phonon transverse optique (voir la figure 1.26 du premier chapitre). À l'aide d'une transformée de Fourier inverse, nous pouvons obtenir la forme de l'impulsion THz simulée en amont du cristal de GaP,  $E_{\text{THz}}(t, x = 0)$  : elle est représentée en bleu sur la figure 2.12-a).

- La propagation, selon la direction  $\vec{e}_x$ , de l'impulsion THz au travers du cristal de ZnTe, d'indice de réfraction complexe  $\tilde{n}^{\text{ZnTe}}(\Omega)$ , est alors prise en compte de la manière suivante :

$$E_{\text{THz}}(\Omega, x = 0) \rightarrow E_{\text{THz}}(\Omega, x) = E_{\text{THz}}(\Omega, x = 0) \cdot \tilde{t}_{\text{ZnTe}} \cdot e^{\{i\Omega \cdot \tilde{n}^{\text{ZnTe}}(\Omega) \cdot x/c\}}, \quad (2.52)$$

où le coefficient  $\tilde{t}_{\text{ZnTe}} = \frac{2}{\tilde{n}^{\text{ZnTe}} + 1}$  est le coefficient de transmission du ZnTe dans le domaine THz. De même que précédemment, il est possible d'effectuer une transformation de Fourier inverse de  $E_{\text{THz}}(\Omega, x)$  pour obtenir  $E_{\text{THz}}(t, x = L_c)$  à la sortie du cristal. Ce dernier terme est représenté en rouge sur la figure 2.12-b), normalisée par son maximum. Par ailleurs, nous avons également mesuré expérimentalement  $E_{\text{THz}}(t, x = L_c)$  à l'aide d'une DEOC dans le cristal de ZnTe, et nous en avons déduit sa forme temporelle  $E_{\text{THz}}^{\text{exp, ZnTe}}(t, x = L_c)$ . Elle est présentée sur la figure 2.12-b) en violet et normalisée par son maximum. La comparaison des deux courbes met en évidence la concordance relative des formes temporelles, avec des largeurs à mi-hauteurs peu éloignées mais des oscillations décalées en dehors du pic principal. Ceci pourra expliquer certaines différences observées. Nous y reviendrons par la suite.

- Enfin, la dépendance du spectre en fonction du délai  $\tau$  est simplement prise en compte en ajoutant à l'expression précédente le terme  $e^{-i\Omega\tau}$ , soit :

$$E_{\text{THz}}(\Omega, x) \rightarrow E_{\text{THz}}(\Omega, \tau, x) = E_{\text{THz}}(\Omega, x = 0) \cdot \tilde{t}_{\text{ZnTe}} \cdot e^{-i\Omega\tau} \cdot e^{\{i\Omega \cdot (\tilde{n}^{\text{ZnTe}}(\Omega) - n_g) \cdot x/c\}}. \quad (2.53)$$

où le terme  $e^{-i\Omega \cdot n_g x/c}$  permet de se placer dans le repère de l'impulsion sonde, comme dans l'équation (2.44), et où la dispersion et l'absorption du milieu sont prises en compte à travers l'indice de réfraction complexe du ZnTe dans le domaine THz.

- En parallèle, nous avons défini le spectre complexe de l'impulsion optique en amont du cristal,  $E_{\omega_s}(\omega, x = 0)$ , en ajustant son spectre expérimental par trois gaussiennes, de poids  $A_j$ , centrées respectivement à  $\lambda_{0,1} = 797 \text{ nm} = 2\pi \cdot c/\omega_{0,1}$ ,  $\lambda_{0,2} = 807 \text{ nm} = 2\pi \cdot c/\omega_{0,2}$  et  $\lambda_{0,3} = 821 \text{ nm} = 2\pi \cdot c/\omega_{0,3}$ , et de largeur spectrale  $2w_j$  différentes. Pour comparaison, les deux spectres, mesuré expérimentalement et simulé, sont présentés en traits continus sur la figure 2.13-a). L'intensité spectrale de l'impulsion sonde s'écrit donc sous la forme :

$$|E_{\omega_s}(\omega, x = 0)|^2 = \sum_{j=1,2,3} \frac{\sqrt{2\pi} \cdot A_j}{w_j} \cdot e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{\omega - \omega_{0,j}}{w_j} \right)^2} \quad (2.54)$$

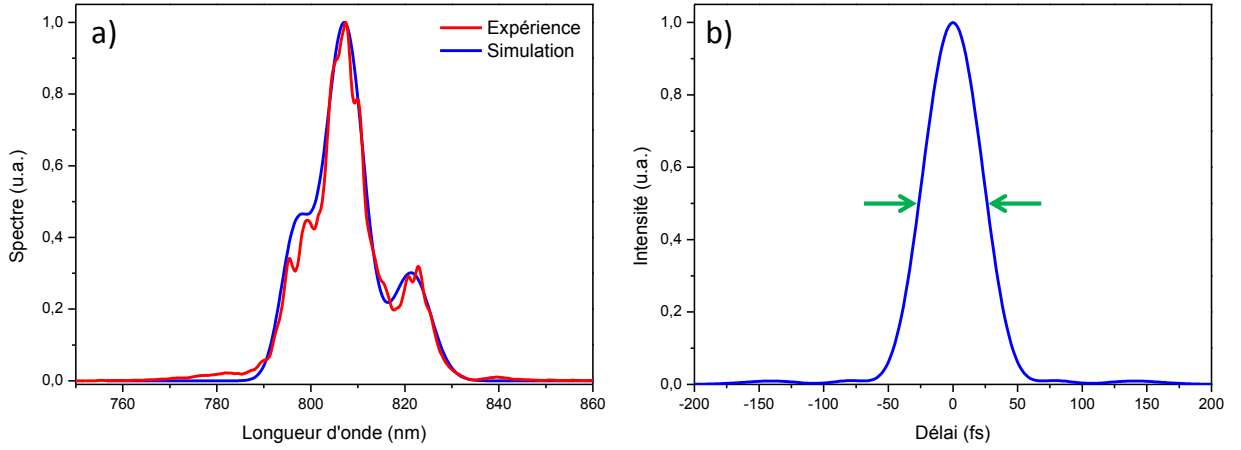
Notons que la phase de  $E_{\omega_s}(\omega, x = 0)$  a été prise égale à 0, *i.e.* nous avons considéré que l'impulsion sonde en amont du ZnTe est limitée par transformée de Fourier. Avec cette hypothèse, nous avons pu calculer le profil temporel de l'impulsion en amont du cristal,  $\mathcal{E}_s(t, x = 0)$ , en effectuant la transformée de Fourier du spectre simulé, soit :

$$E_{\omega_s}(\omega, x = 0) \xrightarrow{\text{TF}} E_s(t, x = 0). \quad (2.55)$$

On en déduit enfin l'intensité de l'impulsion dans le domaine temporel,  $I_s = |E_s(t, x = 0)|^2 = |\mathcal{E}_s(t, x = 0)|^2$ . Celle-ci est présentée en bleu sur la figure 2.13-b). De plus, en première approximation, le champ électrique de l'impulsion sonde peut être considéré comme gaussien, soit :

$$\mathcal{E}_s(t, x = 0) = E_0 \cdot e^{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2} = E_0 \cdot e^{-\left(\frac{t}{T_0}\right)^2}, \quad (2.56)$$

avec  $E_0$  l'amplitude du champ à  $t = 0$  et  $\tau_0 = \sqrt{2\ln(2)}T_0$  la largeur à mi-hauteur de l'impulsion en intensité. Ceci nous permet d'obtenir, grâce à la figure 2.13-b), une valeur de  $\tau_0$  égale à 52.5 fs, soit un paramètre  $T_0$  égal à 44.6 fs.



**FIGURE 2.13** – a) Spectres  $|E_{\omega_s}(\omega, x)|^2$  expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) de l'impulsion optique en amont du cristal de ZnTe. b) Intensité simulée de l'impulsion sonde dans le domaine temporel,  $I_s = |\mathcal{E}_s(t, x = 0)|^2$ . Les deux flèches vertes indiquent la largeur à mi-hauteur de l'impulsion,  $\tau_0$ .

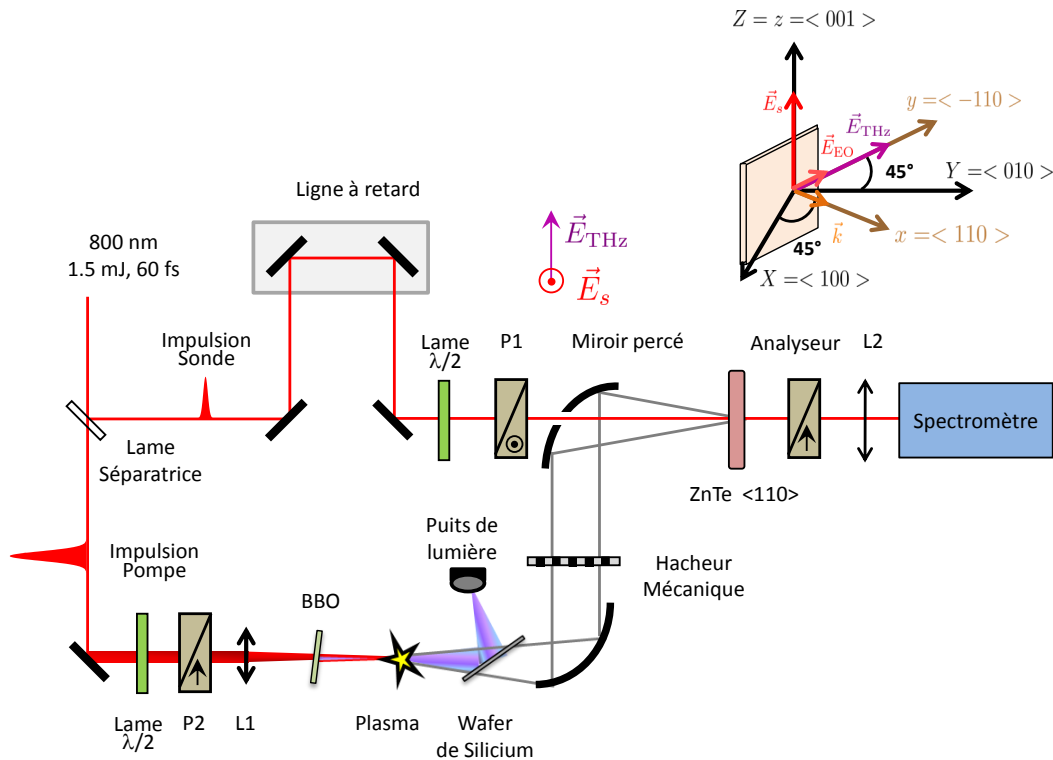
- Maintenant que nous disposons des expressions dans le domaine spectral du champ optique initial,  $\mathcal{E}_{\omega_s}(\omega, x = 0)$ , et du champ THz,  $E_{\text{THz}}(\Omega, \tau, x)$ , nous pouvons simuler l'évolution du spectre de la composante électro-optique en fonction de  $\tau$ ,  $|\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c)|^2$ , en multipliant simplement les expressions (2.53) et (2.54) et en intégrant sur  $\Omega$ , afin d'obtenir finalement l'expression du spectre de la composante électro-optique  $\vec{E}_{\text{EO}}$  (voir l'équation (2.48)).

Nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental qui a été utilisé pour étudier l'évolution du spectre de  $\vec{E}_{\text{EO}}$  en fonction du délai  $\tau$  entre l'impulsion sonde initiale et l'onde THz.

### 2.3.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour étudier le spectre de l'impulsion  $\vec{E}_{\text{EO}}$ , dont l'amplitude est modulée par le champ THz, est présenté sur la figure 2.14. La source de rayonnement THz utilisée dans le cadre de cette étude est basée sur le plasma induit par une impulsion laser à deux couleurs. La détection de la composante générée par l'effet Pockels est effectuée à l'aide d'un spectromètre à caméra CCD refroidie. Une lame demi-onde assure la rotation de polarisation de l'impulsion sonde afin qu'elle soit orientée selon l'axe  $\vec{e}_z$  du cristal, et le polariseur P1 permet de

bien contrôler l'état de polarisation en amont du cristal. Après s'être propagée au sein du cristal, l'impulsion optique traverse ensuite un analyseur placé selon la direction de  $\vec{E}_{EO}$  puis elle est focalisée en entrée du spectromètre à l'aide d'une lentille de focale 75 mm. Le champ électrique THz a une largeur spectrale allant de 0.1 à 7 THz, et son amplitude est estimée à 70 kV/cm au sein du cristal de ZnTe, de longueur 320  $\mu\text{m}$  et taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ .



**FIGURE 2.14** – Dispositif expérimental de mesure du spectre de l'impulsion optique  $\vec{E}_{EO}$  générée par effet Pockels dans un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Le rayonnement THz est généré par le plasma induit par l'impulsion optique et son second harmonique. Les deux polariseurs sont notés P1 et P2. On rappelle également, en haut à droite, la configuration géométrique des champs sonde et THz, avec la création de la composante  $\vec{E}_{EO}$  à la sortie du cristal.

Par ailleurs, notons que le compresseur, situé au sein de l'étage d'amplification du laser de pompe, était initialement réglé afin de maximiser l'intensité du champ THz. Cependant, dans ce cas, la présence de la lame demi-onde et du polariseur P1 sur le trajet de l'impulsion optique imposent à cette dernière une dérive de fréquence positive, ce qui en allonge considérablement la durée d'impulsion. Dans cette expérience, nous cherchons à ce que l'impulsion sonde ne présente pas de dérive de fréquence en amont du ZnTe, *i.e.* à ce qu'elle soit limitée par transformée de Fourier (LTF), ce qui revient globalement à minimiser sa durée. Une première solution consiste à modifier le réglage du compresseur pour compenser la dérive de fréquence positive imposée par les optiques. Toutefois, ceci implique une baisse considérable de l'intensité du champ THz. Nous avons donc placé une lame demi-onde et le polariseur P2 sur le trajet du faisceau pompe, afin d'avoir une dispersion équivalente sur chacun des faisceaux optiques de pompe et de sonde en amont du ZnTe, et ainsi obtenir un maximum d'émission THz en sortie du plasma, sans toutefois modifier la polarisation du faisceau pompe, ni trop allonger la durée de l'impulsion sonde lorsque l'on règle le compresseur pour optimiser l'intensité du rayonnement THz. Une ligne à retard permet enfin de faire varier le délai  $\tau$  entre les impulsions optique et THz.

---

Le principe de ce dispositif est le suivant : lorsque les champs sonde et THz ne sont pas en coïncidence temporelle, l'effet Pockels ne modifie pas l'impulsion optique dirigée orthogonalement à l'axe de l'analyseur. Le spectromètre ne reçoit donc a priori aucun signal. En pratique, ce n'est pas tout à fait exact, il existe un bruit de fond relativement important, supprimé lors du traitement des données. Celui-ci peut être dû à la diffusion sur les optiques, qui dépoliarise le faisceau sonde en amont de l'analyseur. Au contraire, lorsque le champ THz et l'impulsion sonde se recouvrent temporellement dans le cristal, l'effet Pockels entraîne l'apparition de la composante  $\vec{E}_{EO}$  orthogonale au champ optique initial, et qui traverse donc l'analyseur : son spectre peut alors être enregistré en fonction du retard  $\tau$ .

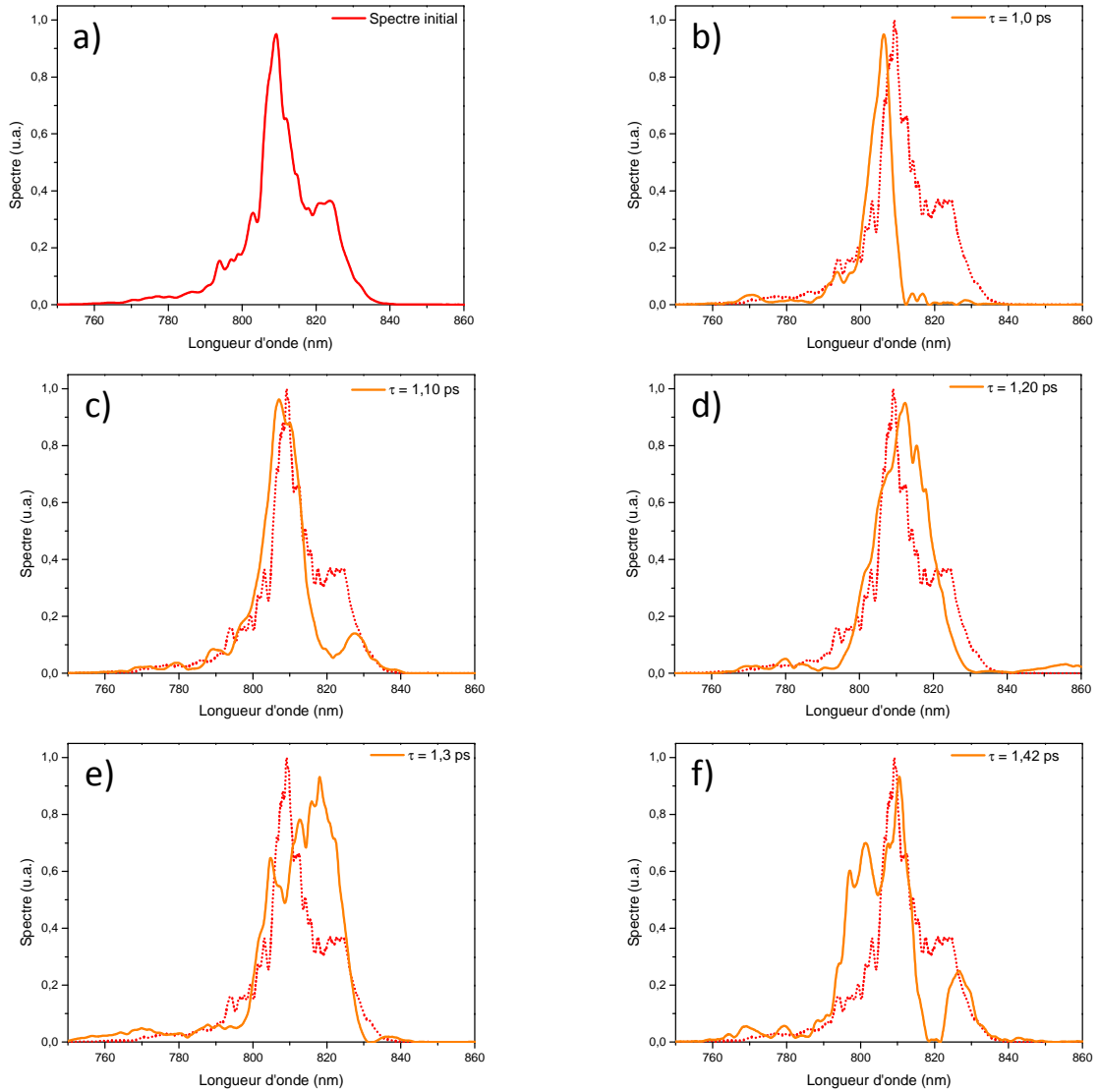
Nous allons à présent nous intéresser aux résultats expérimentaux obtenus à l'aide de ce dispositif.

### 2.3.3 Résultats expérimentaux

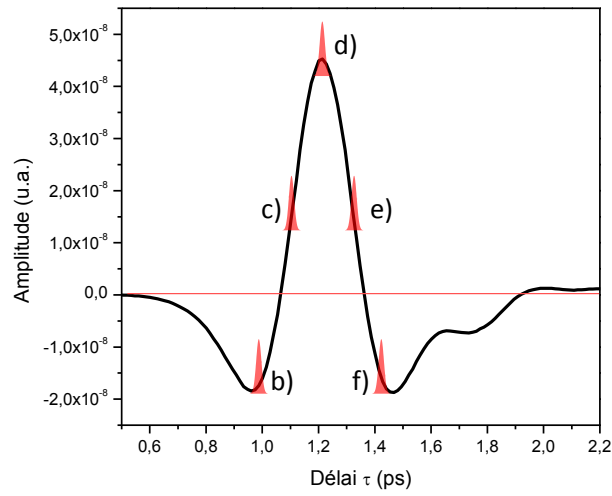
#### 2.3.3.1 Évolution du spectre de l'impulsion optique générée par somme et différence de fréquences

Nous avons tout d'abord mesuré le spectre de l'impulsion sonde, centré à 809 nm, à l'entrée du cristal et en l'absence de champ THz. Il est présenté en rouge sur la figure 2.15-a). En parallèle, nous avons fait varier le délai entre les impulsions optique et THz, et quelques exemples typiques du spectre de l'impulsion générée par effet Pockels  $\vec{E}_{EO}$  (en orange) sont présentés pour différents délais  $\tau$ . Notés  $S_{EO}(\omega, \tau)$  et normalisés par leur maximum, ils sont superposés en orange au spectre de l'impulsion optique initiale  $S_s(\omega)$ , normalisé et représenté en pointillés rouges. On observe, d'une part, que lorsque l'amplitude du champ THz n'est pas trop importante, par exemple pour  $\tau = 1.10$  ps (voir la figure 2.15-b)),  $S_{EO}(\omega, \tau)$  n'est pas très différent du spectre initial, le champ THz n'étant pas assez intense pour induire une forte modulation du spectre. Cependant, au fur et à mesure de la propagation de l'impulsion sonde et de sa coïncidence temporelle avec différentes parties de l'impulsion THz (voir la figure 2.16 pour plus de détails), la longueur d'onde centrale de  $S_{EO}(\omega, \tau)$  peut être translatée au maximum jusqu'à environ 12 nm vers le rouge, et jusqu'à environ 5 nm vers le bleu, et on peut observer, à plusieurs reprises, la création de nouvelles fréquences ou la disparition de certaines d'entre elles, et le rétrécissement ou l'élargissement du spectre - voir les figures 2.15-e) et f) en particulier.

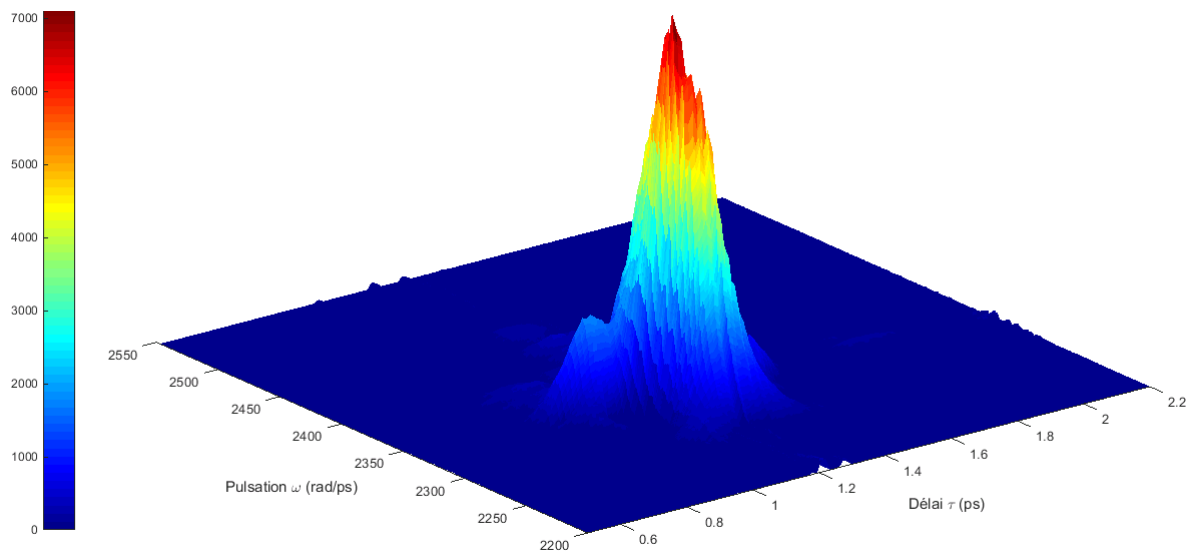
La figure 2.17 présente ainsi l'évolution du spectre de la composante électro-optique en fonction du recouvrement entre les impulsions optique et THz. En parallèle, la figure 2.18 présente une coupe transverse de cette dernière, *i.e.* un spectrogramme de la composante électro-optique,  $S_{EO}(\omega, \tau)$ . A première vue, trois lobes apparaissent respectivement pour  $\tau = 1$  ps et  $\tau = 1.2$  ps et  $\tau = 1.45$  ps, et chacun d'eux correspond bien aux oscillations du champ THz. On peut également constater que les lignes de contour sont très faiblement inclinées (voir la droite noire en pointillés) : ceci signifie que les différentes composantes spectrales situées en amont ou en aval de la fréquence centrale de l'impulsion ne sont pas générées en même temps. Ceci est encore plus visible sur la figure 2.19, qui présente des coupes sagittales de la figure 2.18 pour différentes pulsations, en fonction du retard  $\tau$ . Elles sont également superposées au champ THz mesuré par la DEOC dans le cristal de ZnTe. On constate tout d'abord que l'évolution de la longueur d'onde centrale de l'impulsion optique initiale, à savoir 809 nm, suit assez fidèlement celle du champ THz en fonction de  $\tau$ . Toutefois, les composantes créées par le processus de sommation de fréquences ( $\lambda < 809$  nm



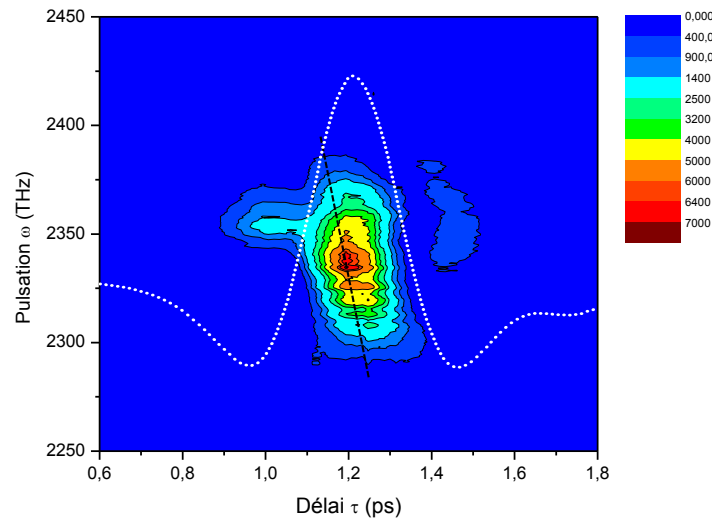
**FIGURE 2.15** – Exemples de spectres mesurés à différents retards  $\tau$  entre l'impulsion sonde et l'impulsion THz. a) Spectre de l'impulsion sonde, mesuré lorsque l'analyseur est orienté selon la direction  $\vec{e}_z$  et en l'absence de champ THz. Celui-ci est ensuite superposé en pontillés rouges, dans les exemples suivants, au spectre (en orange) de la composante générée par effet Pockels  $E_{EO} \cdot \vec{e}_y$  à la sortie du cristal, pour des valeurs de délai égales à : b)  $\tau = 1.0$  ps, c)  $\tau = 1.1$  ps, d)  $\tau = 1.2$  ps, e)  $\tau = 1.3$  ps et f)  $\tau = 1.42$  ps. (voir la figure 2.16 pour la signification de ces valeurs de  $\tau$ .)



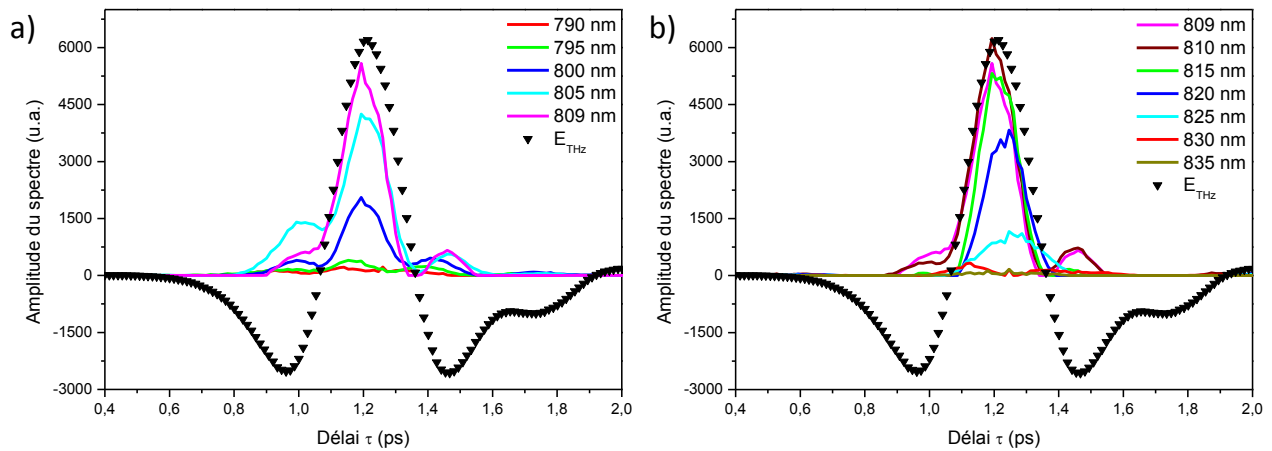
**FIGURE 2.16** – Représentation schématique de la position de l’impulsion optique initiale par rapport à l’impulsion THz, dans le domaine temporel. On a considéré ici que l’impulsion sonde mesure environ 50 fs de largeur à mi-hauteur en intensité et dans ce schéma, on néglige le fait qu’elle s’élargit au fur et à mesure de sa propagation.



**FIGURE 2.17** – Évolution du spectre de la composante électro-optique en fonction du délai  $\tau$  entre l’impulsion sonde initiale et l’impulsion THz.



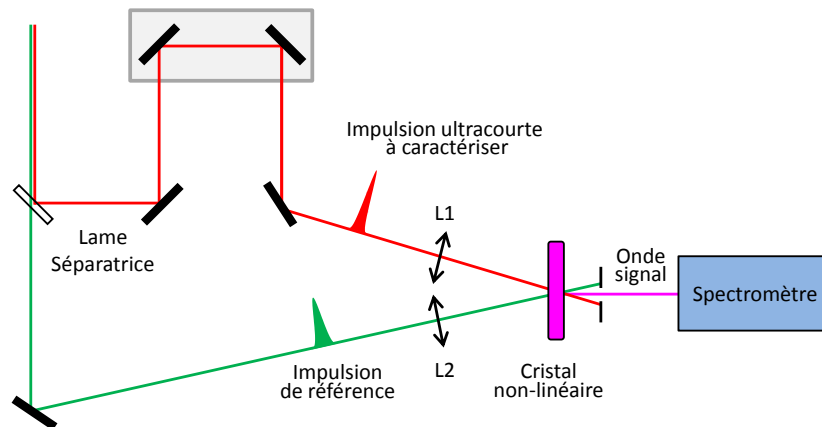
**FIGURE 2.18** – Coupe dans le plan transverse de la figure 2.17 en fonction du retard  $\tau$  entre les impulsions sonde et THz. L'évolution temporelle de l'impulsion THz est superposée au spectrogramme en pointillés blancs, et la droite noire en pointillés schématise la faible inclinaison des lignes de contour du spectrogramme.



**FIGURE 2.19** – Évolution, en fonction du retard temporel  $\tau$ , des différentes composantes spectrales de longueurs d'onde a) inférieures ou b) supérieures à la longueur d'onde centrale de l'impulsion optique initiale, égale à 809 nm. Le champ THz mesuré à l'aide de la DEOC dans le cristal de ZnTe est également superposé aux courbes.

- voir la figure 2.19-a)) sont créées avec une certaine avance, alors que les longueurs d'ondes créées par différence de fréquences ( $\lambda > 809$  nm - figure 2.19-b)) sont créées en retard par rapport au champ THz. Notons enfin que les longueurs d'onde générées par DFG, resp. SFG, et qui sont les plus éloignées du centre du spectre, sont également les plus en retard, resp. en avance.

À ce stade, l'interprétation de ces différents résultats reste complexe. Cependant, la forme du spectrogramme présenté sur la figure 2.18 peut être rapprochée de celle des cartes obtenues notamment par des techniques d'auto-corrélation dans le domaine spectral [148]. Parmi elles, le



**FIGURE 2.20** – Schéma de principe de la technique de FROG dans la configuration de type SHG-FROG : l'impulsion de référence et l'impulsion ultracourte à caractériser interagissent au cours de leur propagation dans le cristal non-linéaire pour créer une onde signal dont le spectre est étudié en fonction du retard entre les deux impulsions initiales. Les lentilles focalisant chaque impulsion dans le cristal non-linéaire sont dénotées L1 et L2.

FROG ou « Frequency-resolved Optical Gating » est l'une des techniques courantes permettant de caractériser en totalité le champ électrique d'une impulsion ultracourte (amplitude et phase), ou de façon équivalente, son spectre, ainsi que la phase spectrale associée. Le principe général du FROG est représenté de façon très simplifiée sur la figure 2.20 : il s'agit de faire interagir l'impulsion optique avec une impulsion de référence dans un cristal non-linéaire, et de mesurer le spectre de l'onde signal résultant de cette interaction en fonction du délai entre les deux impulsions initiales. Les données sont ensuite illustrées sous la forme d'une « trace FROG », qui permet de visualiser l'évolution de l'intensité du signal avec une échelle de couleurs, en fonction du délai et de la fréquence. De nombreuses variantes du FROG existent, plus ou moins sensibles et large-bande selon l'énergie et le taux de répétition des impulsions incidentes, ou encore la non-linéarité mise en jeu. Nous pouvons par exemple citer le SHG-FROG ou le THG-FROG, qui reposent respectivement sur la génération des second ou troisième harmoniques et où une partie du faisceau à caractériser est utilisée comme impulsion de référence. Si l'impulsion optique est de très faible intensité, il est parfois impossible de détecter et d'acquérir le signal résultant de l'interaction non-linéaire : une alternative consiste donc à faire intervenir une impulsion différente de l'onde à caractériser, suffisamment intense et dont le spectre ne se superpose pas nécessairement au spectre de l'impulsion à caractériser. Par différence ou sommation de fréquences, les deux signaux pourront alors interagir et générer une impulsion et une trace FROG. Cette méthode est appelée « cross-correlation FROG » ou X-FROG [39] et est tout à fait analogue aux expériences que nous avons menées jusque là avec, pour référence, une impulsion dont le spectre appartient au domaine THz.

Forts de cette analogie, nous pouvons maintenant nous intéresser à l'inclinaison des lignes de contour expérimentales en fonction du délai entre les impulsions optique et THz. En effet, d'après les résultats usuels obtenus avec la technique du FROG, l'inclinaison des lignes de contour d'une trace FROG provient de l'existence d'une dérive de fréquence au sein de l'impulsion à caractériser. Celle-ci peut avoir deux origines distinctes : la GVD [149] ou l'auto-modulation de phase. Dans notre expérience, on peut considérer que l'impulsion sonde ne subit pas d'auto-modulation de phase au sein du cristal de ZnTe, du fait de sa faible intensité. Aussi l'inclinaison des lignes de



niveau du spectrogramme 2.18 peut-elle être attribuée simplement à la dispersion de retard de groupe (GDD) acquise par l'impulsion sonde au cours de son trajet entre la sortie du laser la sortie du cristal.

Par ailleurs, à partir d'une trace FROG, il est possible de calculer rétrospectivement, à l'aide d'un algorithme complexe [150], la valeur de la dérive de fréquences présente sur l'impulsion que l'on cherche à caractériser. Cette méthode, difficile à mettre en œuvre, ne sera pas implémentée ici. Cependant, l'analyse mathématique menée à la partie 2.3.1.2 peut nous permettre d'obtenir de manière relativement simple une valeur moyenne pour la GDD de l'impulsion sonde. En effet, si l'on s'intéresse à l'équation (2.51), on constate que cette dernière peut s'écrire sous la forme :

$$\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c) = i \cdot Q \cdot L_c \times \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{2\pi} B(\omega, \Omega) \cdot e^{i\psi(\Omega, \tau)}, \quad (2.57)$$

où l'on a introduit :

$$B(\omega, \Omega) = \mathcal{E}_{s,z}(\omega - \Omega, 0) \cdot E_{\text{THz}}(\Omega, 0) \cdot e^{-\kappa(\Omega) \frac{\Omega}{c} \frac{L_c}{2}} \cdot \text{sinc} \left\{ \frac{\Delta k' L_c}{2} \right\}, \quad (2.58)$$

et

$$\psi(\Omega, \tau) = \left( \frac{\phi_{\text{in}}^{(2)}}{2} + \frac{\beta_s L_c}{4} \right) \cdot (\omega - \Omega)^2 - \Omega\tau + \frac{\Omega}{c} \cdot \frac{L_c}{2} \cdot [n(\Omega) - n_g]. \quad (2.59)$$

Remarquons que l'absorption de l'onde THz par le cristal de ZnTe est prise en compte à travers le terme  $e^{-\kappa(\Omega) \frac{\Omega}{c} \frac{L_c}{2}}$  présent dans l'expression de  $B(\omega, \Omega)$ , alors que le terme  $\frac{\Omega}{c} \cdot \frac{L_c}{2} \cdot [n(\Omega) - n_g]$  inclus dans la phase  $\psi(\Omega, \tau)$  correspond simplement à la condition d'accord de phase entre les impulsions optique et THz. Pour la suite, on supposera que cette dernière est remplie sur la plage de fréquences sur lequel on observe le spectre de la composante électro-optique, si bien que l'expression de la phase  $\psi(\Omega, \tau)$  peut se simplifier en :

$$\psi(\Omega, \tau) = \left( \frac{\phi_{\text{in}}^{(2)}}{2} + \frac{\beta_s L_c}{4} \right) \cdot (\omega - \Omega)^2 - \Omega\tau.$$

En définissant la dispersion quadratique associée à un cristal de ZnTe de longueur  $L_c$  par  $\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)} = \beta_s L_c$ , on obtient alors :

$$\psi(\Omega, \tau) = \left( \frac{\phi_{\text{in}}^{(2)}}{2} + \frac{\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}}{4} \right) \cdot (\omega - \Omega)^2 - \Omega\tau. \quad (2.60)$$

De plus, le terme  $B(\omega, \Omega)$  est une fonction qui varie lentement en fonction de la pulsation  $\Omega$  en comparaison du terme de phase  $e^{i\psi(\Omega)}$ . Nous pouvons donc appliquer à l'équation (2.57) la méthode de la phase stationnaire [151]. En effet, l'intégration des oscillations rapides du terme exponentiel donne une valeur approximativement nulle sur les régions pour lesquelles la phase  $\psi$  varie fortement, alors qu'elle prend des valeurs significatives autour des points pour lesquels la phase présente des extrema. Le terme  $\mathcal{E}_{s,y}(\omega, \tau, L_c)$  prend donc des valeurs significatives uniquement autour des points tels que :

$$\frac{\partial \psi(\Omega)}{\partial \Omega} = - \left( \phi_{\text{in}}^{(2)} + \frac{\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}}{2} \right) (\omega - \Omega) - \tau = 0, \quad (2.61)$$

ce qui revient à avoir :

$$\omega = \Omega - \frac{\tau}{\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2}. \quad (2.62)$$

Remarquons que l'équation (2.57) ne concerne que la transformée de Fourier de l'enveloppe temporelle de l'impulsion électro-optique, centrée à fréquence nulle. Le champ total de l'impulsion électro-optique s'écrit, quant à lui, sous la forme (voir les équations (2.2), (2.3) et (2.46)) :

$$E_{\text{EO}}(t, \tau, L_c) = \frac{1}{2} [\mathcal{E}_{\text{EO}}(t, \tau, L_c) \cdot e^{-i(\omega_s t - k_s L_c)} + c.c.],$$

où  $\mathcal{E}_{s,y}(t, \tau, L_c)$  est la transformée de Fourier de  $\mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c)$ . L'équation précédente devient donc :

$$E_{\text{EO}}(t, \tau, L_c) = \frac{1}{2} [\mathcal{TF} \{ \mathcal{E}_{\text{EO}}(\omega - \omega_s, \tau, L_c) \} \cdot e^{ik_s L_c} + c.c.].$$

Ainsi, lorsqu'on se ramène au spectre du champ électro-optique, l'équation (2.62) se transforme simplement en :

$$\omega = \omega_s - \frac{\tau}{\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2}, \quad (2.63)$$

sachant que  $\Omega \ll \omega_s$ . La pulsation  $\omega$  du champ électro-optique est donc globalement linéaire en fonction du délai  $\tau$ , et la pente de la droite est égale à  $-1/(\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2)$ . La droite noire tracée sur la figure 2.18 permet donc d'évaluer le terme  $\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2$  correspondant à la dispersion pour l'impulsion sonde à sa sortie du cristal. On trouve une valeur de l'ordre de  $1210 \pm 200 \text{ fs}^2$ .

Remarquons que cette valeur dépend très fortement du positionnement de la droite noire sur le spectrogramme, à l'origine du terme d'incertitude. Ceci explique la nécessité d'une procédure algorithmique beaucoup plus complexe dans les techniques de FROG couramment mises en œuvre. Il est à noter également que la très faible inclinaison de la pente ne favorise pas non plus la précision des mesures. Nous proposons donc d'amplifier la dérive de fréquences de l'impulsion optique incidente sur le cristal, ce qui permettra non seulement de prouver la validité de notre raisonnement, mais également d'améliorer la précision des mesures. Ce point sera abordé dans la partie 2.3.3.2.

D'autre part, on s'attend naturellement à ce que la valeur trouvée à l'aide du spectrogramme expérimental soit au moins supérieure ou égale à celle de la dispersion quadratique du cristal de ZnTe d'épaisseur  $300 \mu\text{m}$ ,  $\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}$ . La dispersion de la vitesse de groupe du cristal de ZnTe peut être calculée à l'aide des données de la littérature [152]. A partir de l'équation de Sellmeier :

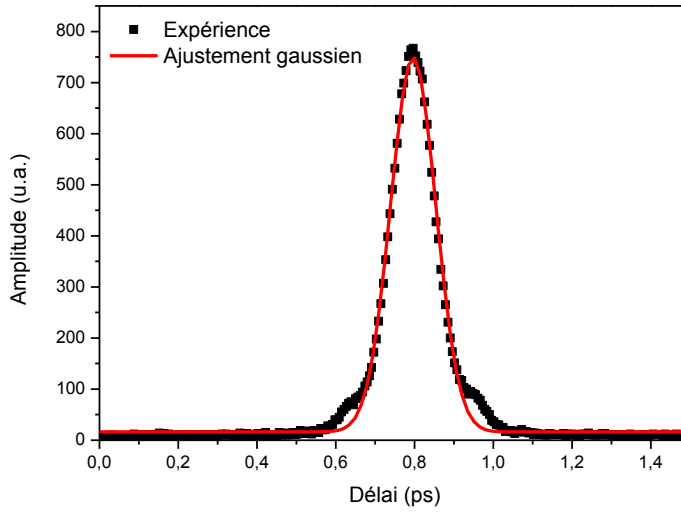
$$n(\lambda) = \sqrt{4.27 + \frac{3.01\lambda^2}{\lambda^2 - 0.142}}, \quad (2.64)$$

et du vecteur d'onde associé, donné par l'expression  $k(\omega) = n(\omega) \cdot \omega/c$ , la GVD à 809 nm est égale à [153] :

$$\beta_s = \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_s} = \left. \frac{\lambda_s^3}{2\pi c^2} \cdot \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \right)_{\lambda_s} = 2.12 \text{ fs}^{-2}/\mu\text{m}, \quad (2.65)$$

ce qui permet d'obtenir  $\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)} = \beta_s \cdot L_c = \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_s} \cdot L_c = 640 \text{ fs}^2 < 1210 \text{ fs}^2$ , comme prévu. On

en déduit que la dispersion quadratique pour l'impulsion sonde en amont du cristal de ZnTe,  $\phi_{\text{in}}^{(2)}$ , est égale à  $890 \pm 200 \text{ fs}^2$ .



**FIGURE 2.21** – Courbe d’auto-corrélation mesurée pour l’impulsion sonde à la sortie du cristal de ZnTe. Les points expérimentaux sont présentés en noir et la courbe d’ajustement de type gaussien est présentée en rouge. La largeur à mi-hauteur de l’auto-corrélation permet de déduire la largeur à mi-hauteur en intensité de l’impulsion, d’après l’équation (2.66).

En parallèle de l’acquisition du spectrogramme, nous avons également effectué une auto-corrélation de l’impulsion sonde en sortie du cristal de ZnTe. La courbe obtenue et l’ajustement effectué à l’aide d’un profil gaussien sont représentés sur la figure 2.21, et nous en avons déduit la durée d’impulsion du faisceau sonde en sortie du cristal de ZnTe. La relation entre la largeur à mi-hauteur de l’auto-corrélation,  $\tau_{AC}$ , et la largeur à mi-hauteur en intensité de l’impulsion,  $\tau_s$ , est la suivante, pour un profil supposé gaussien [154] :

$$\tau_s = \frac{\tau_{AC}}{\sqrt{2}}. \quad (2.66)$$

Par ailleurs, la largeur à mi-hauteur de l’impulsion,  $\tau_s$ , est également reliée à la dispersion quadratique de l’impulsion optique par l’équation :

$$\phi_{AC}^{(2)} = \frac{\tau_0^2}{4 \ln(2)} \cdot \sqrt{\left(\frac{\tau_s}{\tau_0}\right)^2 - 1}, \quad (2.67)$$

où  $\tau_0$  est la largeur à mi-hauteur de l’impulsion optique limitée par transformée de Fourier, soit, dans notre cas,  $\tau_0 = 52.5$  fs, et  $\tau_s = 94.8$  fs ici. On obtient alors  $\phi_{AC}^{(2)} = 1495 \pm 10$  fs<sup>2</sup>, avec  $\phi_{AC}^{(2)} = \phi_{in}^{(2)} + \phi_{ZnTe}^{(2)}$ , d’où l’on déduit que  $\phi_{in}^{(2)} = 1495 - 640 = 855 \pm 10$  fs<sup>2</sup>.

En conclusion, chacune des deux méthodes de mesure de la phase de l’impulsion optique en sortie du cristal - auto-corrélation et spectrogramme - donne des résultats similaires. Nous dénoterons désormais la technique qui fait intervenir l’impulsion THz sous la forme « THz-X-FROG », par analogie avec le X-FROG pour une impulsion optique de référence différente de l’impulsion que l’on cherche à caractériser.

Nous allons maintenant étudier expérimentalement l’impact sur le spectrogramme obtenu par la technique du THz-X-FROG d’une variation de la dispersion pour l’impulsion optique incidente sur le cristal de ZnTe.

### 2.3.3.2 Amplification de la dérive de fréquence de l'impulsion optique et conséquences

À l'aide d'un matériau dispersif, d'épaisseur connue, nous imposons maintenant une dérive de fréquence de valeur déterminée à l'impulsion optique incidente sur le cristal. Nous avons choisi d'utiliser une fenêtre d'épaisseur 3 mm, constituée de séléniure de zinc (ZnSe), matériau transparent autour de 809 nm et présentant une dispersion positive. Son indice de réfraction est donné par la formule de Sellmeyer suivante [127] :

$$n(\lambda) = \sqrt{4.0 + \frac{1.9\lambda^2}{\lambda^2 - 0.113}}, \quad (2.68)$$

ce qui donne une valeur de dispersion de la vitesse de groupe à 809 nm égale à :

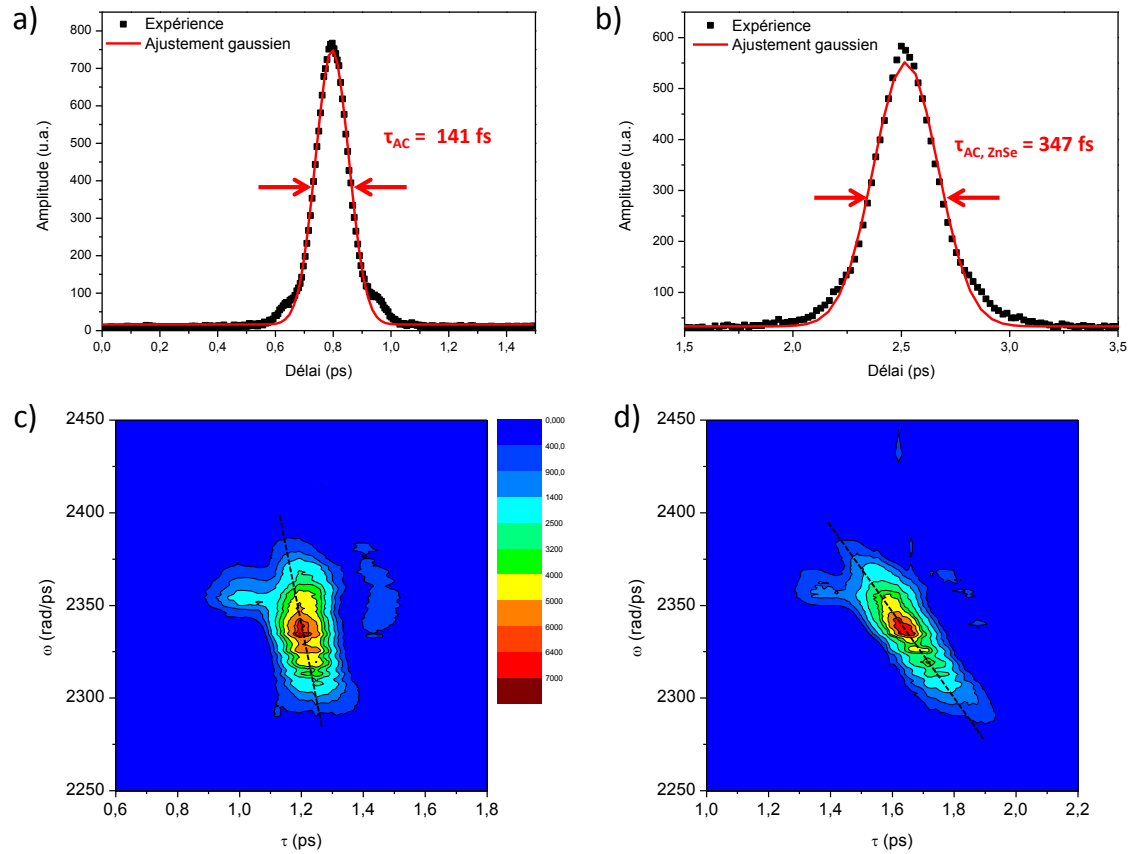
$$\beta_{s,\text{ZnSe}} = \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_s} = 1.02 \text{ fs}^2/\mu\text{m}, \quad (2.69)$$

et l'impulsion optique en sortie de la fenêtre de ZnSe acquiert donc une dispersion quadratique  $\phi_{\text{ZnSe}}^{(2)} = 3080 \text{ fs}^2$  à  $\lambda_s = 809 \text{ nm}$ .

De même que précédemment, nous avons mesuré la durée de l'impulsion optique en sortie du cristal de ZnTe, afin d'en déduire une valeur du terme  $\phi_{\text{ZnSe}}^{(2)}$  par auto-corrélation. Le résultat est présenté sur la figure 2.22-b) et l'équation (2.66) permet d'obtenir une durée moyenne d'impulsion en intensité égale à  $\tau_{s,\text{ZnSe}} = 246.5 \text{ fs}$ , à comparer à la durée initiale de l'impulsion limitée par transformée de Fourier,  $\tau_0 = 52.5 \text{ fs}$ . Grâce à l'équation (2.67), on en déduit une valeur moyenne de la dispersion quadratique imposée par le passage à travers le ZnSe, les différentes optiques et le ZnTe, soit :  $\phi_{\text{AC,ZnSe}}^{(2)} = 4560 \pm 10 \text{ fs}^2$ . Sachant que  $\phi_{\text{AC,ZnSe}}^{(2)} = \phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnSe}}^{(2)}$ , on trouve  $\phi_{\text{ZnSe}}^{(2)} = 3065 \pm 20 \text{ fs}^2$  en prenant  $\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)} = 640 \text{ fs}^2$  et  $\phi_{\text{in}}^{(2)} = 855 \pm 10 \text{ fs}^2$ . Ce résultat est en très bon accord avec la valeur déduite de la formule de Sellmeier, l'erreur relative étant de 4%.

En parallèle, nous avons enregistré le spectrogramme de l'impulsion électro-optique en sortie du cristal de ZnTe, afin de déterminer la dispersion quadratique du ZnSe par notre méthode du THz-X-FROG. Il est représenté sur la figure 2.22-d), en parallèle du spectrogramme obtenu en l'absence de ZnSe (voir la figure 2.22-c)). On constate une très forte inclinaison des lignes de contour en présence du ZnSe, dans le même sens que l'inclinaison pré-existante en l'absence de ce dernier, due au terme de dispersion quadratique  $\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}$ . Remarquons que ce dernier est égal à  $1530 \pm 100 \text{ fs}^2$  selon la technique du THz-X-FROG et à  $\phi_{\text{AC}}^{(2)} = 1495 \pm 10 \text{ fs}^2$  selon les mesures d'auto-corrélation. La pente de la droite tracée sur le spectrogramme 2.22-d) permet de mesurer le terme  $\phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2 + \phi_{\text{ZnSe}}^{(2)} = 4080 \pm 200 \text{ fs}^2$ . On en déduit alors la dispersion quadratique imposée par le cristal de ZnSe, d'épaisseur 3 mm, soit  $\phi_{\text{ZnSe}}^{(2)} = 2870 \pm 200 \text{ fs}^2$ , où, cette fois, la valeur de  $\phi_{\text{in}}^{(2)}$  est celle qui a été mesurée par la technique du THz-X-FROG. Cette valeur est à comparer à celle qui est donnée par la formule de Sellmeier, soit  $3080 \text{ fs}^2$ . On trouve une erreur relative de 7% entre les deux valeurs, ce qui confirme le bon fonctionnement de la méthode du THz-X-FROG. Comme précédemment, remarquons que la valeur obtenue avec cette technique dépend très fortement du positionnement de la droite d'inclinaison, et qu'il est probable que l'utilisation d'un algorithme de reconstruction permettrait d'effectuer des mesures de manière beaucoup plus précise.

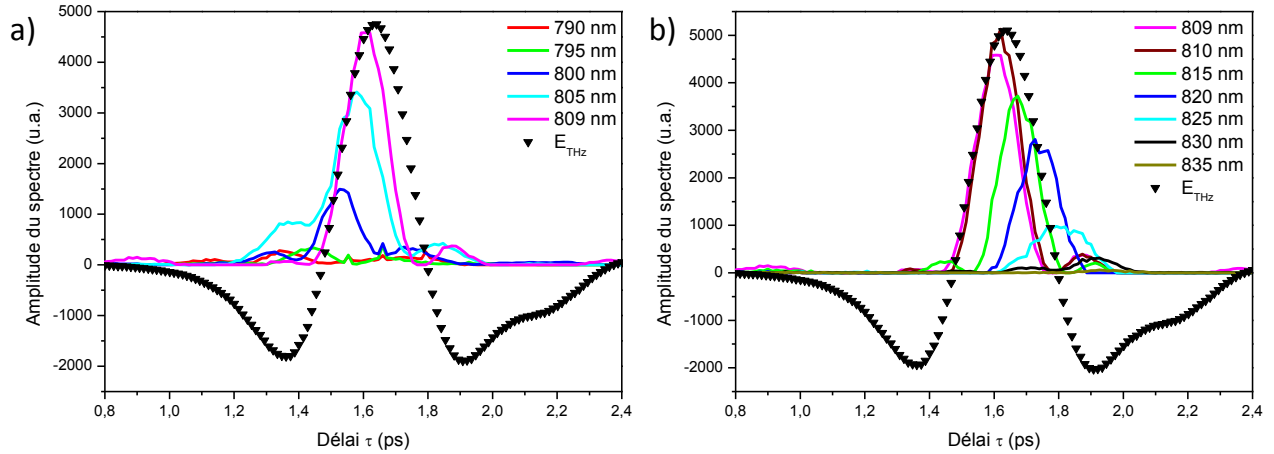
Par ailleurs, nous présentons sur la figure 2.23 des coupes sagittales du spectrogramme, représentant l'évolution de chaque composante spectrale en fonction du délai  $\tau$ . Les trois lobes centrés



**FIGURE 2.22** – Influence de la dérive de fréquence sur l’impulsion électro-optique. Courbe d’auto-corrélation de l’impulsion optique en sortie du cristal de ZnTe : a) en l’absence et b) en présence d’un cristal de ZnSe, d’épaisseur 3 mm, placé sur le trajet de l’impulsion sonde, en amont du cristal de ZnTe. Les points expérimentaux sont représentés en noir et la courbe d’ajustement de type gaussien utilisé pour mesurer la durée d’impulsion de l’auto-corrélation,  $\tau_{AC}$ , est représentée en rouge. Cette dernière est signalée par les flèches rouges. Spectrogramme de la composante électro-optique,  $|E_{EO}(\omega, \tau, L_c)|^2$  c) en l’absence et d) en présence du cristal de ZnSe. Les droites noires en pointillés représentent la pente du spectrogramme, resp. égale à  $-1/(\phi_{in}^{(2)} + \phi_{ZnTe}^{(2)}/2)$  et  $-1/(\phi_{in}^{(2)} + \phi_{ZnTe}^{(2)}/2 + \phi_{ZnSe}^{(2)})$ .

autour du maximum et des minima du champ THz sont bien présents sur les coupes. De plus, l’influence de la dérive de fréquence positive imposée par le ZnSe à l’impulsion sonde incidente sur le cristal de ZnTe se traduit par la génération de composantes centrées à haute ( $\lambda < 809$  nm), resp. basse ( $\lambda > 809$  nm) fréquence, en avance par rapport au champ THz, resp. en retard. Ceci était déjà visible sur la figure 2.19, cependant, les composantes spectrales sont générées avec une avance ou un retard plus marqué que pour une faible dérive de fréquence. Par exemple, le maximum de la composante centrée à 820 nm est générée par rapport au maximum du champ THz avec un décalage égal à  $\delta\tau = 40$  fs en l’absence du ZnSe et  $\delta\tau = 90$  fs, soit près du double, en sa présence.

Les différentes valeurs de la dispersion quadratique, mesurées par auto-corrélation ou par la méthode du THz-X-FROG, sont rassemblées dans le tableau 2.1. Nous constatons que les résultats sont cohérents, avec des ordres de grandeur peu éloignés. Rappelons que, à l’heure actuelle, la méthode du THz-X-FROG ne permet pas de déterminer la dispersion quadratique de manière très précise, et ceci peut expliquer les erreurs relatives de l’ordre de 5 à 10% pour la mesure de la dispersion quadratique pour l’impulsion en la présence de divers éléments dispersifs. Remarquons que, plus la dérive de fréquence est importante, plus l’inclinaison des lignes de contours du spec-



**FIGURE 2.23** – Évolution, en fonction du retard temporel  $\tau$ , des différentes composantes spectrales générées lors de l’interaction entre le champ THz et l’impulsion optique, en présence d’une fenêtre de ZnSe d’épaisseur 3 mm, centrées à des longueurs d’onde a) inférieures ou b) supérieures à la longueur d’onde centrale de l’impulsion optique initiale, égale à 809 nm. Le champ THz a été mesuré à l’aide de la DEOC dans le cristal de ZnTe et pour une impulsion sonde ayant traversé le cristal de ZnSe et est superposé aux courbes.

	Optiques en amont du ZnTe	ZnTe seul	ZnSe seul
	$\phi_{\text{in}}^{(2)}$ (fs <sup>2</sup> )	$\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}$ (fs <sup>2</sup> )	$\phi_{\text{ZnSe}}^{(2)}$ (fs <sup>2</sup> )
<b>Littérature</b>	-	640	3080
<b>Auto-corrélation</b>	$855 \pm 10$	-	$3065 \pm 20$
<b>THz-X-FROG</b>	$890 \pm 200$	-	$2870 \pm 200$
$\Delta\eta$	4%	-	7%

**TABLE 2.1** – Récapitulatif des différentes valeurs de la dispersion quadratique imposée au faisceau sonde selon les optiques traversées et les moyens de mesure mis en place. Les incertitudes pour les mesures faites par la technique du THz-X-FROG ont été évaluées en modifiant « à la main » le positionnement de la droite noire sur le spectrogramme. Les épaisseurs respectives des cristaux sont de 300  $\mu\text{m}$  pour le ZnTe et 3 mm pour le ZnSe. L’erreur relative  $\Delta\eta$  est ici définie comme le rapport

$$\Delta\eta = \left| \frac{\phi_{\text{AC}}^{(2)} - \phi_{\text{THz-X-FROG}}^{(2)}}{\phi_{\text{AC}}^{(2)}} \right|.$$

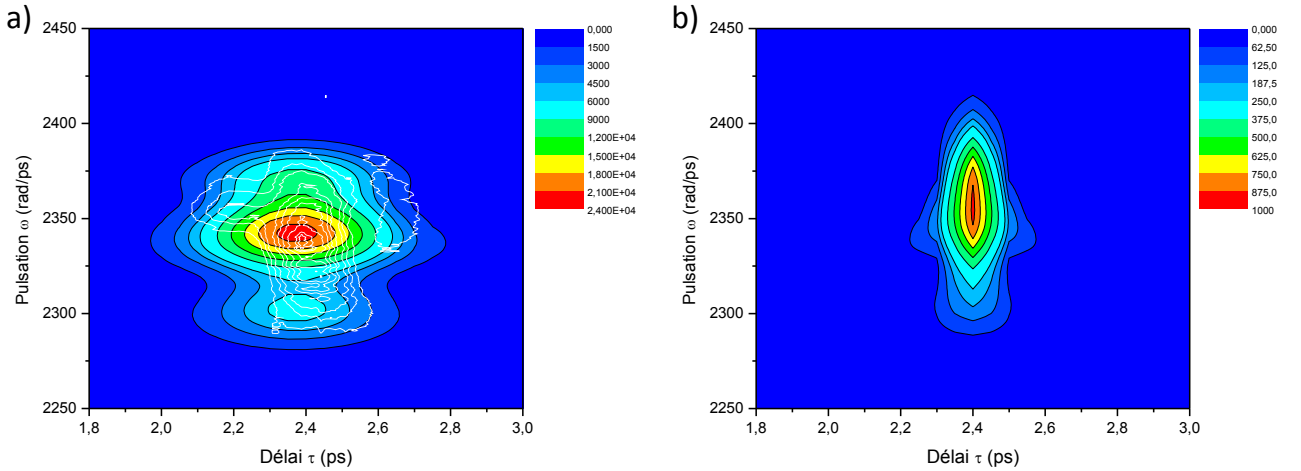
rogramme est visible et plus la mesure de la pente avec la technique du THz-X-FROG peut être précise. Malgré cela, les incertitudes sur la valeur de la phase restent de l’ordre de la centaine de fs<sup>2</sup>.

Nous allons maintenant comparer les résultats expérimentaux obtenus par la technique du THz-X-FROG, avec ceux du modèle théorique que nous avons développé précédemment (voir la partie 2.3.1.3).

### 2.3.3.3 Comparaison des résultats expérimentaux et des simulations

Le modèle théorique que nous avons présenté à la section 2.3.1.3 nous permet à présent de simuler les résultats expérimentaux avec une impulsion sonde incidente limitée par transformée de Fourier ou non, et ce, tout en tenant compte de la dispersion pour l'impulsion optique dans le cristal de ZnTe.

Nous avons tout d'abord simulé le spectrogramme obtenu lors de l'interaction d'une impulsion optique incidente limitée par transformée de Fourier avec le champ THz, en considérant que l'impulsion optique incidente n'a pas de dérive de fréquence en amont du cristal de ZnTe, et également que la GVD de ce dernier est négligeable. Les résultats de la simulation sont présentés sur la figure 2.24-a). En traits continus blancs, on a également superposé les lignes de contours issues du spectrogramme mesuré expérimentalement (voir la figure 2.18). On constate tout d'abord l'absence des trois lobes caractéristiques de l'expérience, correspondants aux maxima et minima du champ THz. Dans l'état, la simulation ne rend donc *a priori* pas très bien compte de l'évolution temporelle du champ THz et de sa conséquence sur la forme du spectrogramme. Des améliorations sont donc à apporter. Toutefois, nous constatons, malgré l'absence des lobes, qu'en l'absence de dérive de fréquence pour l'impulsion sonde, le spectrogramme n'est pas incliné, contrairement aux lignes de contour mesurées expérimentalement.

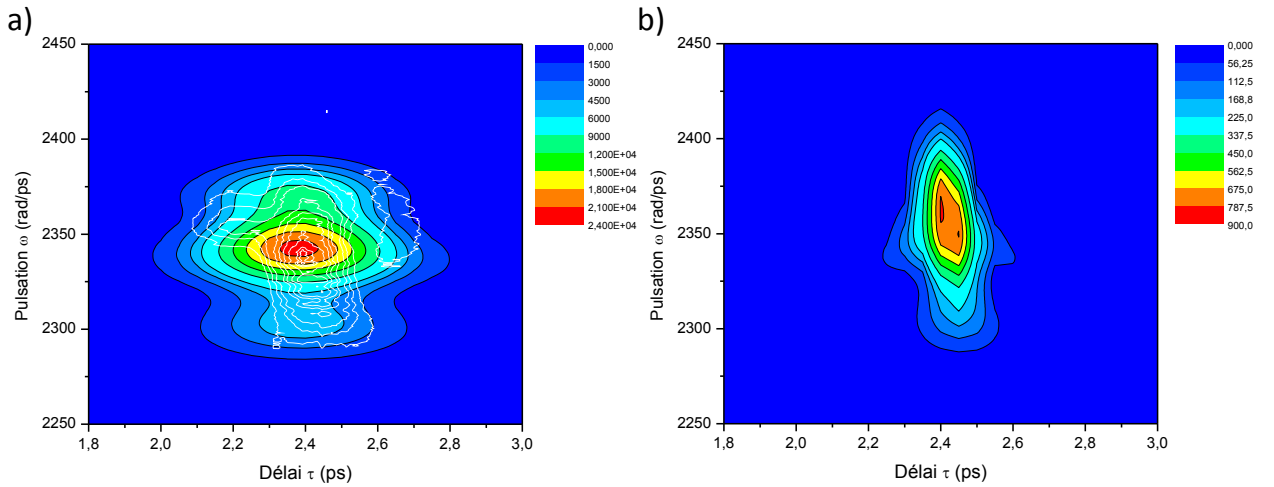


**FIGURE 2.24** – Simulations en l'absence de dérive de fréquence pour l'impulsion sonde incidente sur le cristal de ZnTe. La GDD causée par la traversée de ce dernier est également négligée. a) Spectrogramme de l'impulsion générée par effet Pockels au sein du cristal de ZnTe,  $|E_{EO}(\omega, \tau, L_c)|^2$ . Les traits continus blancs correspondent aux lignes de contour de l'expérience (voir la figure 2.18). b) Trace X-FROG obtenue avec une impulsion de référence limitée par Transformée de Fourier, de largeur à mi-hauteur en intensité égale à 50 fs.

En parallèle, nous avons simulé sur la figure 2.24-b) la forme de la trace X-FROG obtenue avec l'impulsion optique dont le spectre est donné sur la figure 2.13. Nous avons considéré ici que l'impulsion de référence est une impulsion gaussienne étroite, de durée  $\tau_0 = 50$  fs, ce qui correspond à une largeur de spectre  $\Delta\nu_{\text{ref}} \approx 8.5$  THz. Elle est également limitée par transformée de Fourier, et n'est pas dispersée au cours de sa propagation dans le cristal. On observe qu'il n'existe ici qu'un seul lobe, ce qui est cohérent avec la forme du spectre de l'impulsion de référence, une gaussienne parfaite. En revanche, le domaine spectral sur lequel sont générées les nouvelles fréquences par

SFG et DFG est un peu plus large que celui induit en présence du champ THz, notamment de près de 3.8 THz dans le domaine des hautes fréquences. Ceci s'explique simplement du fait que le spectre de l'impulsion optique de référence a une bande spectrale  $\Delta\nu_{\text{ref}} \approx 8.5$  THz bien supérieure à celle du champ THz qui se propage dans le cristal de ZnTe. Remarquons enfin que l'inclinaison des lignes de niveau est également absente de la simulation FROG.

Nous avons ensuite intégré la GVD du cristal de ZnTe afin de mesurer l'impact du passage des impulsions au sein du cristal sur le spectrogramme THz et sur la trace X-FROG simulée. Les résultats sont présentés sur la figure 2.24, et, en a), le spectrogramme mesuré expérimentalement est, comme précédemment, superposé au spectrogramme simulé en traits continus blancs. Seul le passage dans le cristal de ZnTe impose ici une dispersion quadratique à l'impulsion optique, égale à  $640 \text{ fs}^2$  comme on l'a vu à la partie 2.3.3.1. De même que précédemment, on constate l'absence des lobes caractéristiques des oscillations du champ THz sur la figure 2.24-a), cependant, on peut observer une très faible inclinaison des lignes de contour du spectrogramme simulé, par rapport à la figure 2.24-a). L'ajout de la dispersion du cristal de ZnTe dans le modèle permet donc de modifier la pente des lignes de contour. Toutefois, l'inclinaison est insuffisante pour atteindre celle que nous avons observée expérimentalement. La simulation de la trace X-FROG nous permet, quant à elle, de mieux visualiser l'inclinaison due à la prise en compte de la GVD du cristal. Cependant, il est difficile d'en quantifier la pente simplement. Nous allons donc maintenant prendre en compte la contribution due aux optiques situées en amont du cristal de ZnTe.

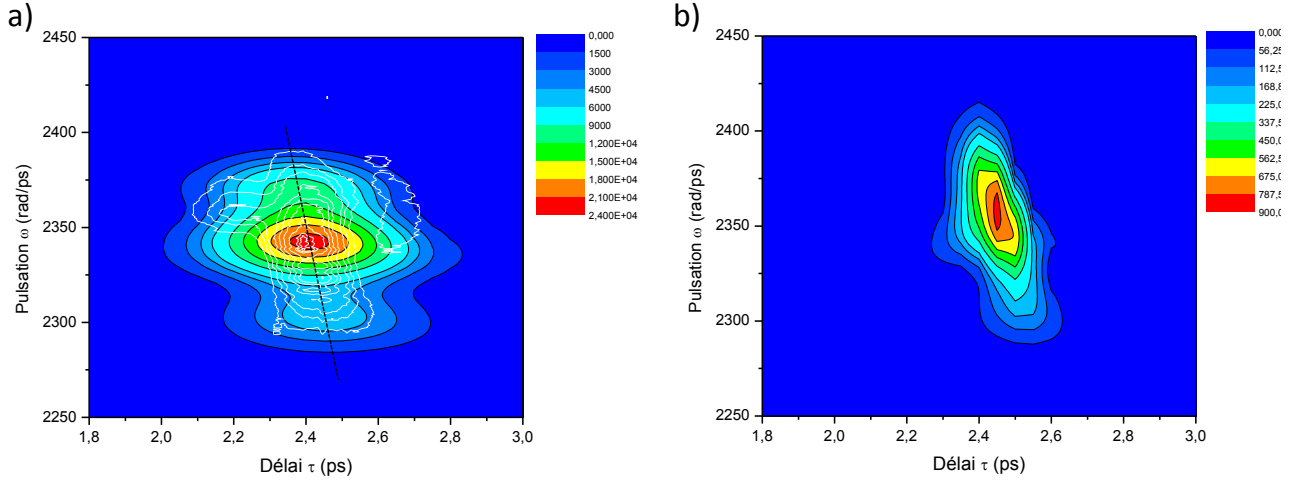


**FIGURE 2.25** – Simulations en l'absence de dispersion quadratique pour l'impulsion sonde incidente sur le cristal de ZnTe. La GDD causée par la traversée du cristal est toutefois prise en compte. a) Spectrogramme de l'impulsion générée par effet Pockels au sein du cristal de ZnTe,  $|E_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c)|^2$ . Les traits continus blancs correspondent aux lignes de contour de l'expérience (voir la figure 2.18). b) Trace X-FROG obtenue avec une impulsion de référence limitée par Transformée de Fourier, de largeur à mi-hauteur en intensité égale à 50 fs.

On impose maintenant à l'impulsion optique incidente sur le cristal une dispersion quadratique  $\phi_{\text{in}}^{(2)} = 890 \text{ fs}^2$ . Dans cette situation, l'impulsion aura accumulé une dispersion quadratique totale égale à  $1530 \text{ fs}^2$  et la pente de l'inclinaison des lignes de contour doit donc être égale à  $\Delta\phi_1^{(2)} = \phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2 = 890 + 640/2 = 1210 \pm 200 \text{ fs}^2$ . Les résultats de la simulation sont présentés sur la figure 2.26. On observe globalement la même forme qu'en l'absence de la dispersion quadratique imposée par les optiques. Cependant, les lignes de contour sont plus inclinées que sur le spectrogramme de



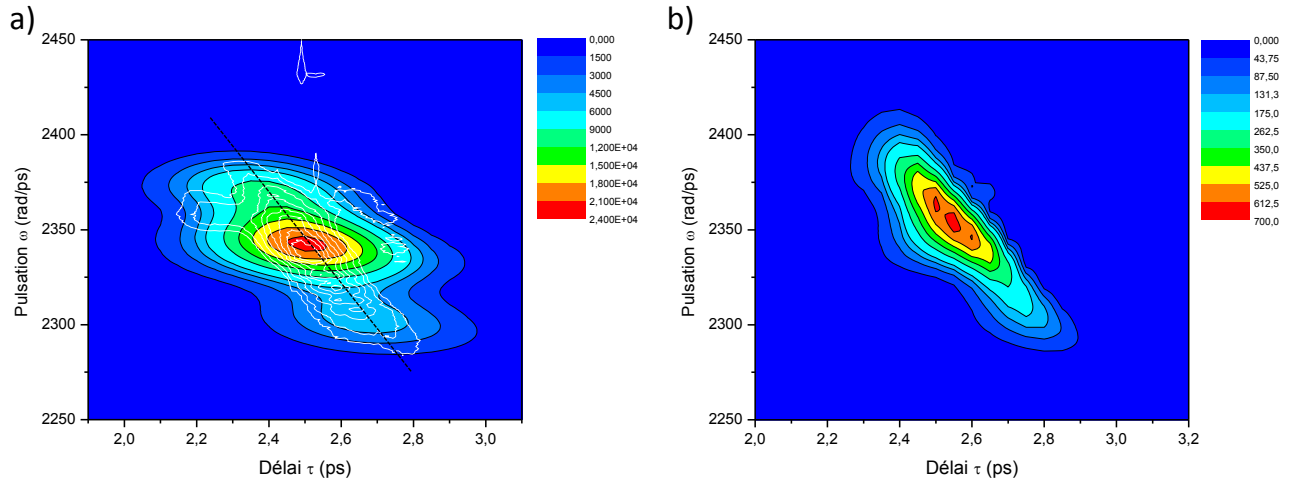
la figure 2.25-b). Malgré, toujours, l'absence de lobes marquant les oscillations du champ THz, la simulation montre que l'ajout de la dispersion due aux optiques résulte bien en une inclinaison plus forte des lignes de contour. Quantifier la pente de la droite associée (représentée en noir) reste délicat, mais malgré cela, on peut en déduire une estimation de la valeur de  $\Delta\phi_1^{(2)}$ , égale à  $1100 \pm 200$  fs<sup>2</sup>. Ce résultat est tout à fait cohérent avec le calcul précédent, ce qui confirme l'origine de l'inclinaison des lignes de contour du spectrogramme. Remarquons enfin que les lignes de contour de la simulation montrent une inclinaison assez similaire aux lignes de contour expérimentales, tracées en blanc sur la figure.



**FIGURE 2.26** – Simulations pour une dispersion quadratique pour l'impulsion sonde incidente sur le cristal de ZnTe égale à  $890$  fs<sup>2</sup>. La GDD causée par la traversée du cristal,  $\phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}$ , est également prise en compte. a) Spectrogramme de l'impulsion générée par effet Pockels au sein du cristal de ZnTe,  $|E_{\text{EO}}(\omega, \tau, L_c)|^2$ . Les traits continus blancs correspondent aux lignes de contour de l'expérience (voir la figure 2.18). La droite noire indique quant à elle la pente de l'inclinaison des lignes de contour. b) Trace X-FROG obtenue avec une impulsion de référence limitée par Transformée de Fourier, de largeur à mi-hauteur en intensité égale à  $50$  fs.

Nous avons enfin simulé la dérive de fréquence imposée par la fenêtre de ZnSe épaisse de  $3$  mm. Le modèle intègre donc à la fois la GDD due au cristal de ZnSe, prise égale à  $3080$  fs<sup>2</sup>, aux optiques, prise égale à  $890$  fs<sup>2</sup> et enfin au cristal de ZnTe, prise égale à  $640$  fs<sup>2</sup>. Dans ce cas, la pente de l'inclinaison des lignes de contour devrait être égale à  $\Delta\phi_2^{(2)} = \phi_{\text{in}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnSe}}^{(2)} + \phi_{\text{ZnTe}}^{(2)}/2 = 890 + 3080 + 640/2 = 4290 \pm 200$  fs<sup>2</sup>. Les résultats sont présentés sur la figure 2.27. On constate que le spectrogramme, présenté en a), est très fortement incliné relativement aux simulations précédentes. L'application de la méthode précédente, qui fait intervenir la droite noire, permet d'estimer la pente  $\Delta\phi_2^{(2)}$  à  $4300 \pm 200$  fs<sup>2</sup>. Cette valeur est très proche de celle que l'on obtient précédemment par le calcul (voir la figure 2.22-d)). Enfin, si l'on ne considère que leur inclinaison globale sans s'attacher aux lobes latéraux, les lignes de contour expérimentales (en blanc) se superposent relativement bien aux lignes de contour simulées.

Ces différentes simulations sont donc plutôt bien corrélées aux spectrogrammes expérimentaux qui ont été mesurés auparavant. Nous pouvons donc en conclure que la technique du THz-X-FROG, développée au cours de ce travail de thèse, nous permet de caractériser totalement la dispersion spectrale développée jusqu'au second ordre pour l'impulsion sonde, et d'en déduire sa dérive de fréquence. Nous allons à présent aborder les limitations du modèle numérique développé ici, ainsi



**FIGURE 2.27** – Simulations pour une dérive de fréquence pour l’impulsion sonde incidente sur le cristal de ZnTe, associée à la GDD des cristaux de ZnSe et ZnTe. a) Spectrogramme de l’impulsion générée par effet Pockels au sein du cristal de ZnTe,  $|E_{EO}(\omega, \tau, L_c)|^2$ . Les traits continus blancs correspondent aux lignes de contour de l’expérience (voir la figure 2.18). La droite noire indique quant à elle la pente de l’inclinaison des lignes de contour. b) Trace X-FROG obtenue avec une impulsion de référence limitée par Transformée de Fourier, de largeur à mi-hauteur en intensité égale à 50 fs.

que quelques perspectives envisageables pour améliorer ce travail.

### 2.3.4 Limitations du modèle et perspectives

Le modèle numérique développé précédemment est basé sur la forme temporelle du champ THz qui a été mesurée à l’aide de la détection électro-optique conventionnelle, effectuée dans un cristal de GaP de longueur 200  $\mu\text{m}$ . Il s’agit donc d’un profil temporel intégré sur toute la longueur du cristal, et qui a subi divers filtrages à la traversée de celui-ci, du fait, par exemple, de l’existence d’un phonon centré à 11 THz. Diverses astuces numériques ont été utilisées pour en déduire le profil du champ en amont du cristal, cependant, la comparaison des différentes formes, expérimentales et simulées, du champ THz montrent plusieurs différences entre les profils (voir la figure 2.12). Les oscillations entourant le pic principal sont ainsi décalées temporellement, et également d’amplitudes très différentes. Par ailleurs, l’absence des lobes ne peut être raisonnablement expliquée à cette heure, cependant, il peut s’agit d’un artefact dans la simulation, du fait des différentes astuces utilisées lors de l’écriture du programme. Ce point est donc encore en discussion.

Parmi les perspectives à envisager pour la poursuite de ce travail, nous proposons d’améliorer les simulations présentées précédemment. Nous y avons démontré la possibilité de mesurer la phase spectrale d’une impulsion sonde lors de son interaction par effet Pockels avec un champ THz dans un cristal de ZnTe. Cependant, à l’heure actuelle, les modélisations effectuées ne nous permettent pas encore de retrouver la forme du spectrogramme expérimental, dans le sens où, au moment de l’interaction entre l’impulsion sonde et les deux minima entourant le pic principal de la forme temporelle du champ THz, la forme du spectre de l’impulsion électro-optique n’est pas modifiée.

---

Au contraire, nous devrions observer un lobe correspondant à chaque minimum, de même que celui qui est présent autour du pic principal, puisque la génération par sommation ou différence de fréquence intervient constamment lors de l'interaction, en particulier lorsque le champ THz est intense, ce qui est le cas aux minima et maxima du cycle. Cet aspect des simulations nécessite donc d'être amélioré.

Par ailleurs, les fortes incertitudes sur la mesure de la valeur de la dispersion quadratique à l'aide d'une simple droite positionnée « à la main » sur le spectrogramme THz sont dommageables à une démonstration en bonne et due forme des performances de la méthode du THz-X-FROG. En effet, nous avons vu que les incertitudes peuvent atteindre jusqu'à 10% de la mesure. Si l'on se réfère aux méthodes de FROG et de X-FROG, il est bien connu que la phase peut être reconstruite en totalité à partir des spectrogrammes, à l'aide d'algorithmes itératifs complexes. Depuis son introduction par Kane *et al.* en 1993 [155], de nombreux développements ont été publiés dans la littérature, afin d'accroître la précision et la sensibilité de la méthode [156]. Parmi les suites à donner à ce chapitre, nous pouvons donc envisager de développer un algorithme de reconstruction de la phase spectrale. Ajoutée à la connaissance de l'amplitude du champ sonde, nous pourrions ainsi déterminer totalement les caractéristiques de l'impulsion optique incidente sur le cristal de ZnTe, simplement en l'ayant fait interagir avec une impulsion THz dans un cristal électro-optique. De gros développements numériques sont donc nécessaires pour améliorer la technique du THz-X-FROG. Cependant, sa réalisation expérimentale étant basée sur des systèmes optiques communément utilisés par la communauté THz (cristal électro-optique, spectromètre), il peut être facile de l'implémenter expérimentalement sur les bancs THz existants, afin de déterminer rapidement, si nécessaire, une valeur moyenne de la phase spectrale de l'impulsion sonde. Dans le même état d'esprit, il serait bon de développer une interface homme-machine permettant d'acquérir les spectrogrammes automatiquement et non manuellement, comme cela a été le cas dans ce travail. Enfin, il faudrait également améliorer le rapport signal sur bruit des mesures, afin que la technique du THz-X-FROG soit compétitive face aux autres techniques. En effet, malgré la présence de deux polariseurs en amont et en aval du cristal de ZnTe, il se révèle impossible à l'heure actuelle d'enregistrer les spectrogrammes sur un fond totalement noir. Ceci est dû, d'une part, à l'amplitude de la composante optique polarisée selon le vecteur  $\vec{e}_z$  à la sortie du cristal, très forte relativement à celle de la composante électro-optique, polarisée orthogonalement. D'autre part, le passage à travers le cristal de ZnTe dépolarise vraisemblablement le faisceau sonde. Réduire l'impact de ces deux difficultés permettrait alors de mieux résoudre la structure des spectrogrammes.

Enfin, une dernière ouverture possible sur ce sujet pourrait être l'étude éventuelle d'autres matériaux que le ZnTe utilisé dans ce travail. Nous pensons tout particulièrement au GaP : ce dernier est en effet communément utilisé pour la détection d'impulsions THz et il serait intéressant de connaître la forme des spectrogrammes obtenus dans ce milieu. Remarquons que l'analyse mathématique effectuée précédemment est également valable pour ce matériau, et que les simulations pourraient être effectuées assez simplement avec le programme déjà réalisé. Expérimentalement, cependant, il sera peut être plus complexe de détecter la composante électro-optique, du fait que le GaP possède un coefficient électro-optique bien inférieur à celui du ZnTe (voir le tableau 1.6 au chapitre 1).

Dans ce chapitre, nous avons donc ouvert de nouvelles perspectives sur le procédé non-linéaire du second ordre qu'est l'effet Pockels et sur ses applications dans le domaine de la détection d'un champ THz et de la caractérisation spectrale d'une impulsion optique. Nous allons à présent mettre en évidence d'autres processus d'optique non-linéaire d'ordres supérieurs, ayant lieu dans

---

le domaine THz, et qui ont été étudiés lors de ce travail de thèse.



# Chapitre 3

## Non-linéarités du troisième ordre effectives par effets de cascade : génération de second harmonique induite par effet Pockels

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : dispositif expérimental et premiers résultats</b>	<b>106</b>
3.1.1	Dispositif expérimental	106
3.1.2	Résultats préliminaires	107
<b>3.2</b>	<b>Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : résultats complémentaires</b>	<b>109</b>
3.2.1	Étude en intensité	109
3.2.2	Dépendance angulaire	111
3.2.3	Bilan	112
<b>3.3</b>	<b>Expression théorique du signal de second harmonique induit par effet Pockels (PISH)</b>	<b>114</b>
3.3.1	Effet Pockels : modification des indices de réfraction du cristal	114
3.3.2	Expression du champ sonde après modification par l'effet Pockels	116
3.3.3	Expression de la polarisation non-linéaire du second ordre	116
3.3.4	Equation d'onde non-linéaire	117
<b>3.4</b>	<b>Expression théorique du signal de second harmonique induit par un champ THz (TFISH)</b>	<b>121</b>
3.4.1	Susceptibilité non-linéaire du troisième ordre	121
3.4.2	Expression de la polarisation non-linéaire du troisième ordre	121
3.4.3	Equation d'onde non-linéaire	122
<b>3.5</b>	<b>Application de la génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) à la détection d'un champ THz intense</b>	<b>124</b>

---

Parmi les nombreuses non-linéarités du second ordre mises en évidence dans des matériaux non-linéaires, la génération de second harmonique (SHG) est bien connue depuis 1961, lorsque Franken *et al.* [23] en firent la première démonstration expérimentale dans du quartz. Il s'agit

d'un cas particulier du procédé non-linéaire de sommation de fréquence, au cours duquel deux photons de même pulsation  $\omega$  interagissent dans un milieu non-linéaire, pour générer un nouveau photon de pulsation  $2\omega$ .

Le champ électrique généré à  $2\omega$  est alors proportionnel à l'intensité du faisceau de pulsation  $\omega$  :

$$E_{\text{SHG}}(2\omega) \propto \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) \cdot E_{\omega}^2 \quad (3.1)$$

où  $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$  est la susceptibilité du second ordre du milieu.

Par définition, ce processus non-linéaire ne peut avoir lieu dans les milieux centro-symétriques, dans lesquels le terme  $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$  est nul. Cependant, un an plus tard, en 1962, Therune *et al.* démontrent l'existence, dans un cristal de calcite, matériau centro-symétrique, d'un autre processus non-linéaire de génération de second harmonique. Dénomé par l'abréviation EFISH, pour « Electric Field Induced Second Harmonic Generation », il s'agit cette fois d'un procédé du troisième ordre [157]. Au cours de ce processus, la symétrie du milieu non-linéaire est brisée par l'application d'un champ statique externe  $E_0$ , ce qui permet de doubler en fréquence une onde incidente de champ électrique  $E_{\omega}$ . Le phénomène a été observé, depuis lors, dans de très nombreux matériaux centrosymétriques (on se réfèrera à [158] pour plus d'informations) et il est largement utilisé par exemple pour mesurer l'hyperpolarisabilité de certaines molécules organiques [159, 160].

Le champ électrique généré à  $2\omega$  lors du procédé d'EFISH peut s'exprimer mathématiquement sous la forme :

$$E_{\text{EFISH}}(2\omega) \propto \chi^{(3)}(2\omega, \omega, \omega, 0) \cdot E_0 \cdot E_{\omega}^2. \quad (3.2)$$

où le terme  $\chi^{(3)}(2\omega, \omega, \omega, 0)$  est la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre.

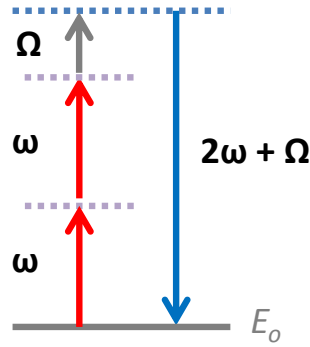
En 1998, Nahata et Heinz s'inspirent de l'effet EFISH pour détecter un champ électrique THz de pulsation  $\Omega$  dans du silicium, qui est un matériau centro-symétrique [40]. Le principe de leur expérience est de focaliser le champ THz sur l'une des faces d'un wafer de silicium. Une impulsion sonde, de pulsation  $\omega$ , est envoyée sur l'autre face du wafer et la SHG est détectée en réflexion à l'aide d'un tube photo-multiplicateur. Selon les auteurs, le phénomène qui entre en jeu est un processus de mélange à quatre ondes, représenté sur la figure 3.1, et le champ généré à la pulsation  $2\omega + \Omega$  s'exprime sous la forme :

$$E_{\text{TFISH}}(2\omega + \Omega) \propto \chi^{(3)}(2\omega + \Omega; \omega, \omega, \Omega) \cdot E_{\omega}^2 \cdot E_{\text{THz}} \quad (3.3)$$

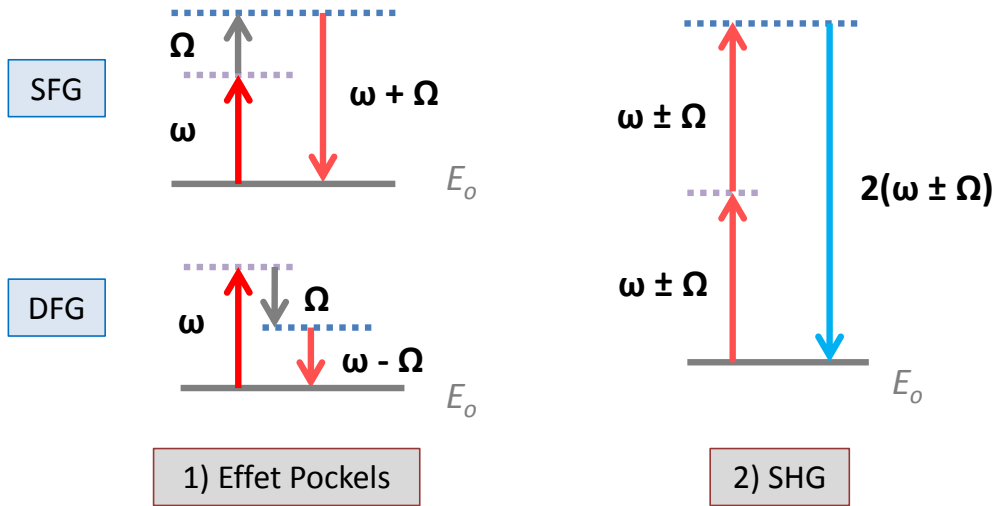
où  $\chi^{(3)}(2\omega + \Omega; \omega, \omega, \Omega)$  est la susceptibilité du troisième ordre du silicium.

Ce procédé d'interaction entre deux photons de la sonde à la pulsation  $\omega$  et un photon de très basse pulsation  $\Omega$  est appelé « Terahertz Field Induced Second Harmonic Generation » ou TFISH. Après sa démonstration dans le silicium [40], le TFISH a été observé dans d'autres milieux centro-symétriques, comme les liquides [161], l'air [95] ou encore certaines biomolécules [162]. En 2009, Chen *et al.* observent le phénomène dans un cristal non centro-symétrique de BBO [163].

Dans les cristaux de type zinc-blende, qui sont non centro-symétriques et de structure cubique, les susceptibilités non-linéaires du second et du troisième ordre sont bien connues. Ainsi, au second ordre, sur un total de 18 éléments, seul l'élément  $\chi_{ijk}^{(2)}$  est non nul, avec  $i \neq j \neq k$ . De même, au troisième ordre, le tenseur comporte 81 éléments, dont seuls deux sont indépendants et non nuls, à savoir  $\chi_{iii}^{(3)}$  et  $\chi_{ijij}^{(3)}$ . Le tellure de zinc (ZnTe), dont les coefficients non-linéaires sont relativement



**FIGURE 3.1** – Point de vue corpusculaire pour le procédé de TFISH. L'état d'énergie fondamentale est désigné par  $E_o$ . Ce procédé a lieu en une seule étape et fait intervenir la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre.



**FIGURE 3.2** – Point de vue corpusculaire pour le procédé de PISH. L'état d'énergie fondamentale est désigné par  $E_o$ . Le PISH a lieu en deux étapes : la première consiste à générer, par somme (SFG) et différence (DFG) de fréquence, une onde de pulsation  $\omega \pm \Omega$ , laquelle sera ensuite doublée en fréquence par la non-linéarité du second ordre intrinsèque au cristal.

importants, avec  $\chi_{ijk}^{(2)} = 90 \text{ pm/V}$  et  $\chi_{ijk}^{(3)} = 3 \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{V}^2$  dans le visible [164, 165], est donc un excellent candidat pour observer des phénomènes de SHG, induits ou non par un champ THz.

En l'occurrence, notre objectif initial était d'observer l'existence d'un signal de TFISH dans un tel cristal, motivé par la possibilité d'en déduire les valeurs des coefficients du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre dans le domaine THz. Cependant, au vu des premiers résultats expérimentaux obtenus sous certaines conditions expérimentales, que nous détaillerons par la suite, le phénomène de SHG que nous avons observé et étudié n'est pas une manifestation de TFISH, au sens où l'entendent les auteurs cités précédemment. En effet, selon nos observations, il s'agit ici d'un effet de cascade de deux processus du second ordre - l'effet Pockels et la SHG intrinsèque - qui imite un procédé du troisième ordre - le TFISH. De tels effets de cascade sont bien connus et ont été étudiés en détail depuis les années 1970 [166] et ont été observés dans l'infrarouge [167] ou encore dans le domaine THz [72, 168].



---

Dans ce chapitre, nous démontrerons l'existence, dans un cristal cubique de ZnTe, de ce nouveau mécanisme de SHG, que nous abrègerons en « PISH » pour « Pockels-induced Second Harmonic Generation ». La figure 3.2 présente succinctement le principe du PISH, d'un point de vue corpusculaire : l'effet Pockels conduit à la génération, par somme (SFG) et différence (DFG) de fréquence, d'une onde de pulsation  $\omega \pm \Omega$  (première étape), elle-même doublée en fréquence par la non-linéarité intrinsèque au milieu (seconde étape). Nous présenterons tout d'abord le dispositif et les résultats expérimentaux qui nous ont menés à l'étude du phénomène de PISH à la place du TFISH. Puis nous détaillerons le modèle physique que nous avons établi pour expliquer nos observations. Enfin, nous verrons qu'il est possible d'appliquer le PISH à la détection d'un champ THz.

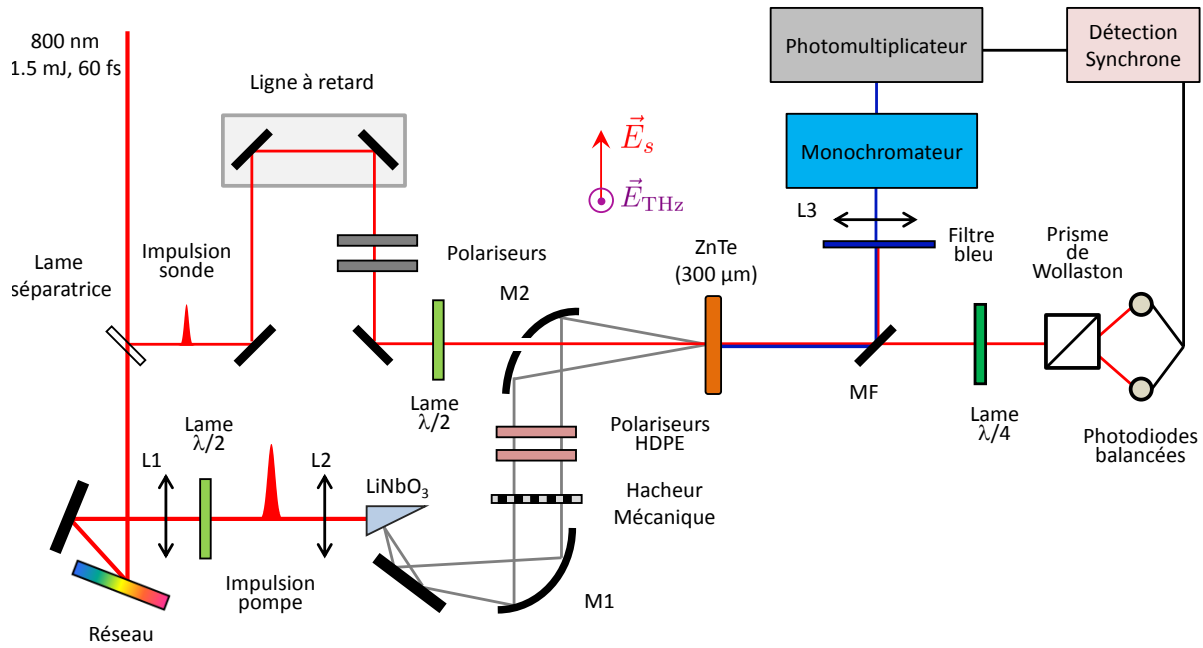
## 3.1 Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : dispositif expérimental et premiers résultats

### 3.1.1 Dispositif expérimental

Le montage expérimental, que nous avons mis en place pour détecter la SHG induite par effet Pockels, est décrit sur la figure 3.3. Il est basé sur la source d'impulsions THz intenses générées par redressement optique dans un cristal de LiNbO<sub>3</sub> (voir le chapitre 1). Nous rappelons que celle-ci délivre des impulsions THz quasi-monocycles, d'amplitude  $E_{\text{THz}} \approx 20 \text{ kV.cm}^{-1}$  et dont le spectre s'étend jusqu'à environ 3.5 THz. De plus, ces impulsions sont polarisées linéairement et orthogonalement à la direction de polarisation de l'impulsion sonde. Le champ THz intense est collimaté, puis focalisé dans un cristal de ZnTe à l'aide de deux miroirs paraboliques hors-axe, de distance focale 15 cm.

En parallèle, une ligne à retard permet de décaler le faisceau sonde par rapport au faisceau pompe THz. Dans notre cas, les états de polarisation des faisceaux sonde et THz doivent être impérativement connus et contrôlés afin d'effectuer une étude valable du signal PISH. À cet effet, nous disposons de deux couples de polariseurs et analyseurs, adaptés aux longueurs d'onde optiques ou THz, qui nous permettent de modifier l'intensité des champs sonde et pompe. Enfin, il est possible de faire tourner la direction de polarisation du champ électrique optique vis à vis de celle du champ THz, à l'aide d'une lame demi-onde placée en amont du miroir percé. Le faisceau sonde sera ensuite superposé au faisceau THz dans un cristal de ZnTe de longueur  $L_c = 320 \mu\text{m}$ , lequel permet à la fois de générer le second harmonique qui est l'objet de notre étude, et de mesurer la forme temporelle de l'impulsion THz par DEOC.

Grâce à un miroir amovible, la sonde peut ensuite être redirigée, soit vers le montage de détection électro-optique conventionnelle décrit au chapitre précédent, soit vers un spectromètre à caméra CCD refroidie. Celui-ci permet de détecter de très faibles signaux et d'en visualiser le spectre. Le faisceau traverse un filtre bleu et est focalisé dans le spectromètre à l'aide d'une lentille de distance focale 75 mm, ayant subi un traitement anti-reflets à 400 nm. Après son passage par le monochromateur, le faisceau peut être dirigé soit vers la caméra CCD, soit vers un tube photomultiplicateur couplé à une détection synchrone. Cet appareil permet d'extraire le signal de



**FIGURE 3.3** – Montage optique de détection du signal PISH de second harmonique induit par effet Pockels. Terminologie employée : M1, M2 : miroirs paraboliques hors-axe. MF : Miroir amovible. L1, L2, L3 : Lentilles. HDPE : polyéthylène de haute densité.

second harmonique du bruit ambiant en le démodulant à la fréquence d'un hacheur mécanique situé en amont sur le montage.

### 3.1.2 Résultats préliminaires

Lors des premières expériences, nous avons utilisé un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  afin d'observer l'effet du troisième ordre, dit TFISH, dont nous avons précédemment parlé. En effet, dans un cristal ayant une telle orientation, les effets non-linéaires du second ordre, comme la génération de second harmonique intrinsèque, que nous noterons  $\text{SHG}_{\text{int}}$  et qui fait intervenir le coefficient  $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ , ou l'effet Pockels, ne peuvent exister pour des raisons de symétrie. En effet, comme on l'a déjà vu à la section 1.4.3 du premier chapitre, la susceptibilité non-linéaire du second ordre du ZnTe n'a que 6 coefficients non nuls, à savoir :

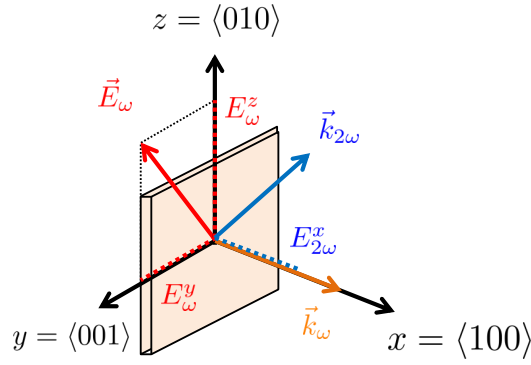
$$\chi_{xyz}^{(2)} = \chi_{xzy}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{yzx}^{(2)} = \chi_{zxy}^{(2)} = \chi_{zyx}^{(2)}.$$

Par ailleurs, le champ électrique,  $\vec{E}_\omega$ , d'une onde transverse qui se propage en incidence normale sur un cristal taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  (voir la figure 3.4) s'écrit :

$$\vec{E}_\omega = E_\omega^y \cdot \vec{e}_y + E_\omega^z \cdot \vec{e}_z.$$

La polarisation non-linéaire d'ordre 2 qui en découle s'écrit donc :

$$\vec{P}_{2\omega}^{(2)} = P_x^{(2)} \cdot \vec{e}_x \propto \chi_{xyz}^{(2)} \cdot E_\omega^y \cdot E_\omega^z \cdot \vec{e}_x$$



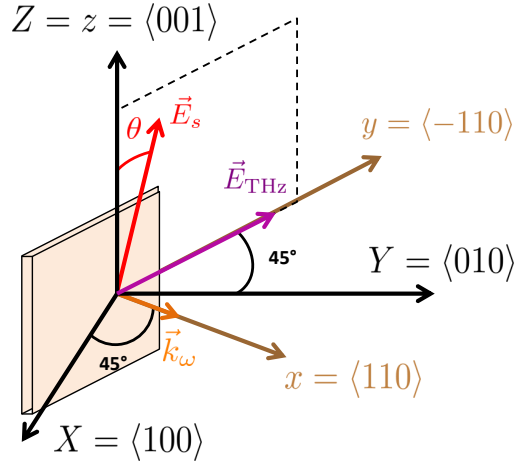
**FIGURE 3.4** – Schéma illustrant l’absence de procédés non-linéaires du second ordre dans un cristal  $43m$  taillé selon l’axe  $\langle 100 \rangle$ . En effet, la polarisation du second ordre produite lors de l’interaction d’un champ  $\vec{E}_\omega$  en incidence normale avec le milieu non-linéaire rayonnera un champ électrique  $\vec{E}_{2\omega}$  se propageant dans le plan du cristal.

et le champ rayonné  $\vec{E}_{2\omega}$  par cette polarisation aura comme unique composante  $E_{2\omega}^x \propto \frac{\partial P_x^{(2)}}{\partial t^2}$ . Il se propagera donc dans le plan du cristal ( $yz$ ) et ne pourra pas être détecté.

Toute génération de second harmonique visible dans de telles conditions expérimentales doit donc provenir *a fortiori* de phénomènes d’ordres supérieurs à 2. Nous avons ainsi cherché à observer la SHG induite par le champ THz, procédé du troisième ordre faisant intervenir le coefficient  $\chi^{(3)}(2\omega \pm \Omega; \omega, \omega, \Omega)$ . Néanmoins, il nous a été impossible de détecter un signal de SHG, et ce, quelle que soit la direction de polarisation de l’impulsion sonde. Nos conditions expérimentales (longueur du cristal et amplitude du champ THz) sont donc *a priori* insuffisantes pour pouvoir observer le TFISH. Nous reviendrons sur ce point par la suite.

Une remarque s’impose ici : notre observation est en contradiction avec les résultats rapportés par Zhang et ses coauteurs dans [163], qui observent, pour la même valeur de champ THz que celle utilisée ici, le procédé de TFISH dans un cristal de BBO, de longueur  $100 \mu\text{m}$  et dont le coefficient non-linéaire électro-optique est pourtant inférieur à celui du ZnTe. Ce BBO est taillé pour un accord de phase de type I, de façon à ce que l’angle entre son axe optique et la direction de propagation du champ pompe soit de  $29.2^\circ$  [82]. Cependant, cette orientation spécifique ne permet pas d’éliminer les effets du second ordre, tels que l’effet Pockels ou la SHG intrinsèque. Il est donc possible que la SHG observée par Zhang *et al.* ne soit pas due au TFISH tel que nous l’avons défini précédemment, mais plutôt à un procédé de cascade de deux effets non-linéaires du second ordre, tel que nous l’avons rapidement décrit dans l’introduction de ce chapitre.

## 3.2 Génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) : résultats complémentaires



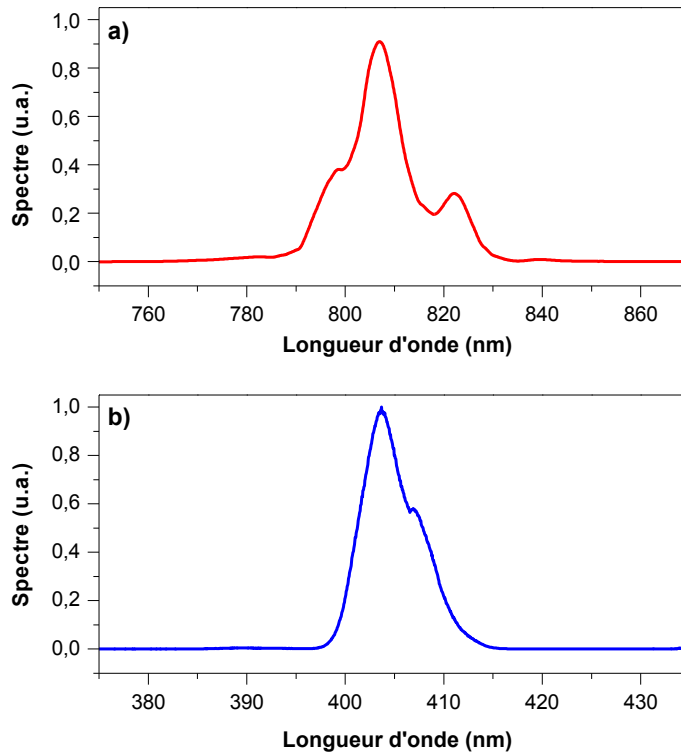
**FIGURE 3.5** – Le champ THz est polarisé dans la direction  $\vec{e}_y$  et la polarisation du champ sonde fait un angle  $\theta$  avec l'axe  $\vec{e}_z$  du cristal.

Nous avons ensuite remplacé le cristal taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  par un cristal de même longueur mais taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$  - cette nouvelle configuration est présentée sur la figure 3.5. Cette fois, cette orientation permet à tout processus non-linéaire du second ordre d'avoir lieu dans le matériau, en particulier l'effet Pockels et la SHG intrinsèque. Par ailleurs, ceux-ci dépendent de la direction de polarisation de l'onde optique incidente, *i.e.* de l'angle  $\theta$  défini sur la figure 3.5. Par exemple, pour un angle  $\theta = 0^\circ$ , la SHG intrinsèque sera nulle. Cependant, lorsqu'on applique un champ THz intense au cristal, on observe au spectromètre un signal centré à 404 nm, qui disparaît lorsque le champ THz et l'impulsion sonde ne se recouvrent plus temporellement. La figure 3.6 présente un exemple de ce signal de SHG, mesuré lorsque le faisceau sonde est en coïncidence temporelle avec le maximum du champ THz, et, à titre de comparaison, le spectre de la sonde, centré à 807 nm. Dans la suite, nous désignerons ce signal sous l'appellation  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ .

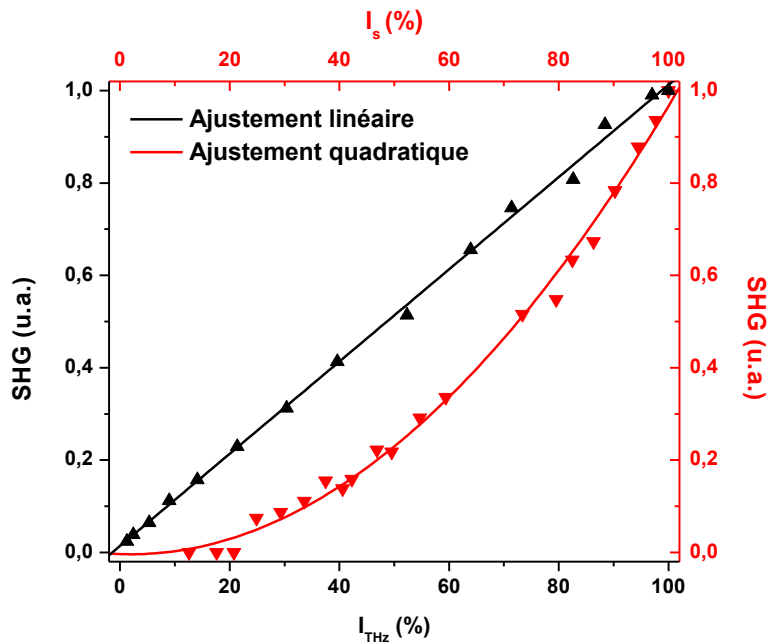
### 3.2.1 Étude en intensité

Pour cette étude, on se place à l'angle  $\theta = 0^\circ$  du cristal pour lequel la SHG intrinsèque est nulle. Remarquons que cette position correspond également au maximum du signal électro-optique induit par effet Pockels [137]. La figure 3.7 présente l'évolution de l'intensité de  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ , mesurée en fonction de l'intensité des champs sonde et THz. Elle a été obtenue à partir des maxima des spectres centrés à 404 nm, mesurés à l'aide du spectromètre à caméra refroidie.

On observe que l'intensité du signal de SHG varie linéairement en fonction de l'intensité THz,  $I_{\text{THz}}$ , et de façon quadratique en fonction de l'intensité de l'impulsion sonde,  $I_s$ . Cette évolution est similaire à la dépendance en intensité du processus de TFISH, établie à l'équation (3.3). Cependant, lors des expériences préliminaires, nous avons démontré que le TFISH était *a priori* invisible dans les conditions expérimentales mises en œuvre lors de ce travail. Cette apparente contradiction disparaît si l'on envisage un mécanisme de cascade de deux effets non-linéaires du



**FIGURE 3.6** – Exemples de signaux observés durant l’expérience : a) Spectre normalisé du faisceau sonde, centré à 807 nm. b) Spectre normalisé du signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ , centré à 404 nm, mesuré lorsque l’impulsion sonde est en coïncidence temporelle avec le maximum de l’impulsion THz.



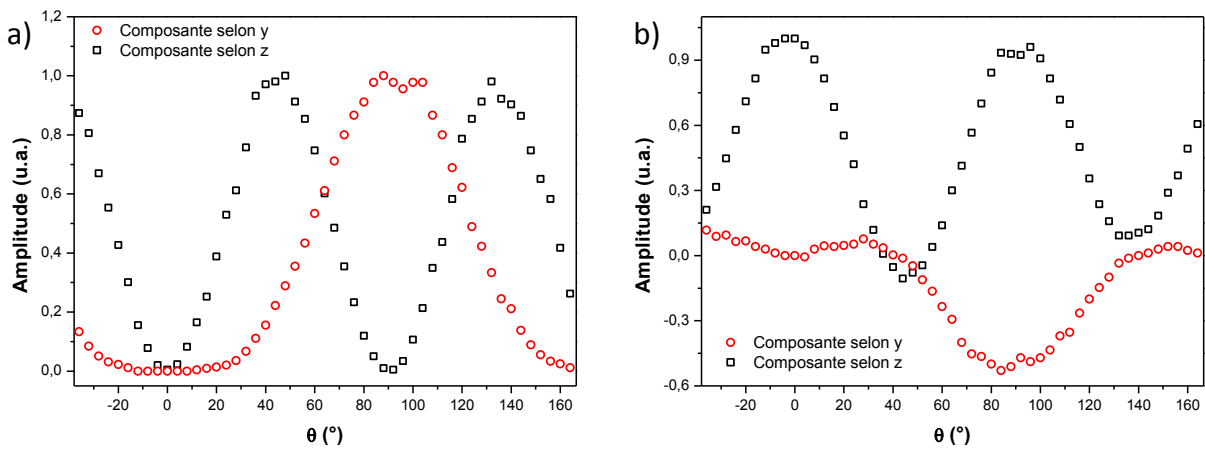
**FIGURE 3.7** – Évolution de l’intensité du signal de second harmonique  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$  en fonction de l’intensité THz (courbe noire) et de l’intensité de la sonde (courbe rouge).

second ordre : nous montrerons en effet dans la section 3.3 que la dépendance du signal en fonction des intensités de sonde et THz pour un tel effet de cascade est identique à celle d’un procédé non-

linéaire du troisième ordre. Pour surmonter cette contradiction et vérifier notre hypothèse, il est donc nécessaire d'aller plus loin dans l'étude du phénomène.

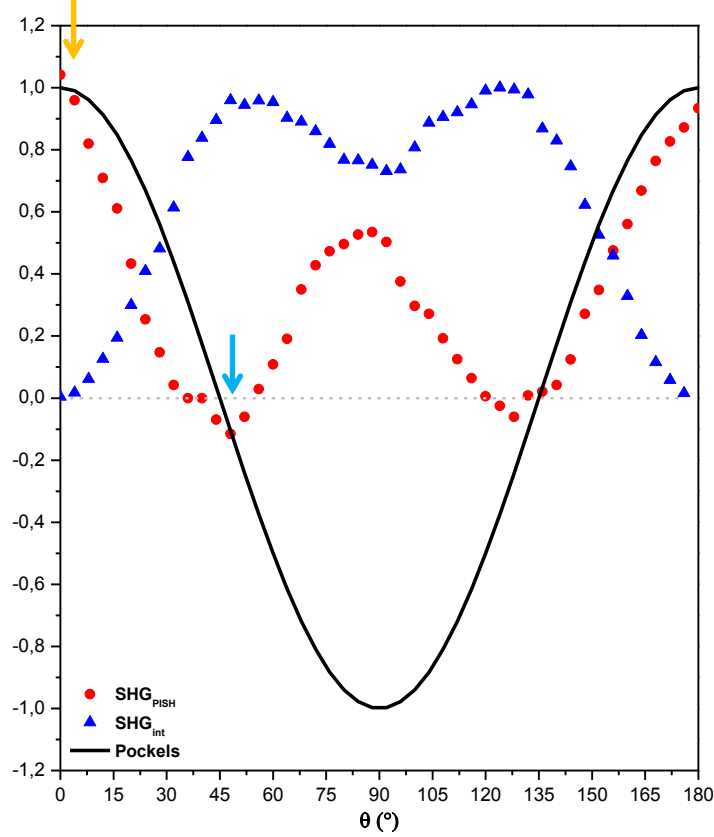
### 3.2.2 Dépendance angulaire

Dans cette partie, nous rendons compte de l'évolution du signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$  en fonction de l'angle  $\theta$  entre la polarisation du champ sonde et celle de l'axe  $\langle 001 \rangle$  du cristal de ZnTe, que nous avons fait varier à l'aide de la lame demi-onde placée sur le trajet du faisceau sonde. Dans un premier temps, il était nécessaire de s'affranchir des signaux de second harmonique générés naturellement dans le cristal, en l'absence du champ THz. Pour cela, nous avons modulé le champ THz en amont du ZnTe et mesuré le signal à  $2\omega$  avec le photomultiplicateur, relié à la détection synchrone. Dans un second temps, nous avons également mesuré l'évolution de la SHG intrinsèque en modulant, cette fois, le faisceau sonde, et ce, en l'absence du champ THz. Par ailleurs, l'efficacité de diffraction du réseau intégré au monochromateur varie en fonction de l'état de polarisation de l'onde incidente. Pour chacun des processus de SHG, nous avons donc réalisé deux séries de mesures en plaçant un polariseur, orienté orthogonalement ou parallèlement au champ THz, entre le cristal et l'entrée du monochromateur, afin de ne mesurer que la composante du signal de SHG selon la direction  $\vec{e}_y$  (en rouge) ou  $\vec{e}_z$  (en noir) - voir la figure 3.5. Les résultats, que l'on a normalisés avant de leur appliquer le facteur correctif tenant compte de l'efficacité du réseau de diffraction et mesuré expérimentalement, sont présentés sur la figure 3.8. Nous avons finalement sommé chacune des deux contributions pour obtenir la totalité de chacun des signaux. Ceux-ci sont présentés sur la figure 3.9.



**FIGURE 3.8** – Dépendance angulaire des composantes parallèles (en rouge) et orthogonales (en noir) au champ THz des signaux de second harmonique : a) Signaux de second harmonique intrinsèque, mesurés en l'absence d'impulsion THz. b) Signaux de second harmonique induits par l'impulsion THz. Chaque composante a été normalisée puis multipliée par le facteur correctif tenant compte de l'efficacité de diffraction du réseau selon les directions  $\vec{e}_y$  et  $\vec{e}_z$ .

À ce stade, il n'est pas encore possible d'interpréter la dépendance angulaire du signal généré par l'interaction du THz avec la sonde. Toutefois, nous constatons sur la figure 3.9 que l'angle  $\theta = 0^\circ$  du cristal, pour lequel la SHG intrinsèque est nulle, correspond également au maximum du signal de SHG induit par le champ THz et du signal électro-optique directement induits par effet Pockels (flèche orange) : l'évolution angulaire de ce dernier dans cette configuration géométrique



**FIGURE 3.9** – Dépendance angulaire des signaux de second harmonique : en bleu, SHG intrinsèque  $S_{2\omega}^{\text{int}}$  et, en rouge, SHG induite par effet Pockels  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ . En parallèle, on a tracé, en traits continus noirs, l'évolution angulaire du signal électro-optique généré par effet Pockels, dont l'équation  $\theta \rightarrow \cos(2\theta)$  a été calculée à partir de l'analyse effectuée dans [84, 137]. Les valeurs particulières associées aux angles  $\theta = 0^\circ$  et  $45^\circ$  sont repérées par les flèches orange et bleue.

est en effet donnée par la fonction  $\theta \rightarrow \cos(2\theta)$  [84, 137] et est tracée en traits continus noirs sur la figure 3.9. De plus, on y constate également que le signal est proche de 0 lorsque  $\theta = 45^\circ$ , *i.e.* lorsque l'effet Pockels est nul (flèche bleue).

### 3.2.3 Bilan

Au final, ces différentes études du signal de SHG, en intensité et en angle, nous amènent à plusieurs constats :

1. Dans les conditions expérimentales mises en œuvre dans ce travail, le TFISH, procédé du troisième ordre, n'est pas visible dans un cristal de ZnTe, taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  pour éliminer tout effet du second ordre. *A fortiori*, il n'est donc pas non plus observable dans un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ .
2. L'application d'un champ THz à un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ , dans lequel les effets non-linéaires du second ordre sont possibles, permet de générer un signal de second harmonique, dit  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ .

- 
3. L'étude de la dépendance en intensité de ce signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$  révèle la même dépendance que celle attendue pour le TFISH, ce qui entre en contradiction avec le point 1. En effet, l'expérience nous montre que l'intensité du signal de PISH s'exprime sous la forme :

$$S_{2\omega}^{\text{PISH}} = I_{2\omega}^{\text{PISH}} \propto I_{\text{THz}} \cdot I_s^2,$$

donc nous pouvons en déduire que le champ électrique  $E_{2\omega}^{\text{PISH}}$  s'exprime comme :

$$E_{2\omega}^{\text{PISH}} \propto E_{\text{THz}} \cdot E_s^2. \quad (3.4)$$

4. Enfin, l'étude de la dépendance angulaire du signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$  permet de mettre en évidence une correspondance ponctuelle entre l'évolution de l'effet Pockels et celui du signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$  étudié.

Pour comprendre ces différentes observations expérimentales, notre interprétation du phénomène par un effet de cascade  $\chi^{(2)}$ .  $\chi^{(2)}$  nécessite de faire intervenir un effet non-linéaire d'ordre 2, directement proportionnel au champ THz. Or l'effet Pockels remplit parfaitement cette condition. En effet, d'après le chapitre précédent, le champ électrique généré dans le domaine optique par effet Pockels peut s'exprimer comme :

$$E_{\text{Pockels}} \propto E_\omega \cdot e^{i\Gamma L_c} \approx E_\omega(1 + i\Gamma L_c),$$

avec  $\Gamma \propto \chi^{(2)}(\omega \pm \Omega, \omega, \pm\Omega) \cdot E_{\text{THz}}$ .

Par ailleurs, le doublage en fréquence d'un tel champ électrique s'exprimera alors sous la forme :

$$E_{2\omega} \approx \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \cdot [E_\omega(1 + i\Gamma L_c)]^2 \approx \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \cdot E_\omega^2(1 + 2i\Gamma L_c),$$

soit :

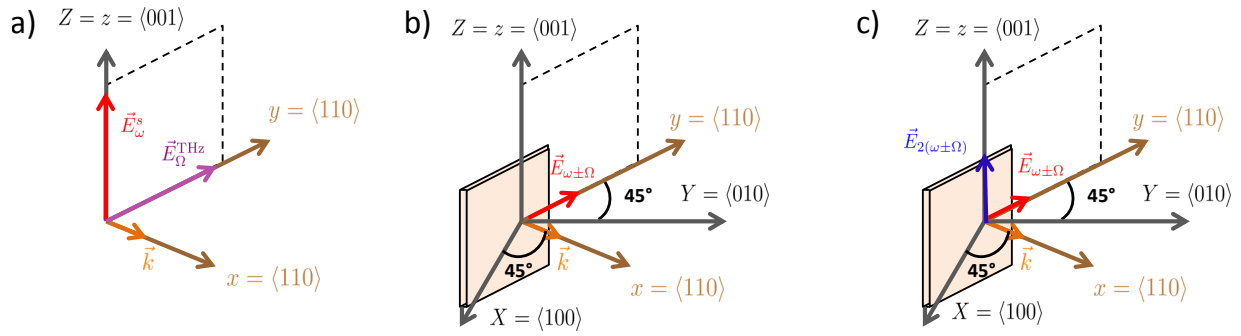
$$E_{2\omega} \propto \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \cdot E_\omega^2 + C \cdot \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \cdot \chi^{(2)}(\omega \pm \Omega, \omega, \pm\Omega) \cdot E_\omega^2 E_{\text{THz}},$$

où  $C$  est une constante. L'expression rend bien compte de l'existence de deux signaux de second harmonique, tout en respectant, pour le second terme, la dépendance en intensité mesurée expérimentalement (voir l'équation (3.4)).

Nous proposons donc un modèle de cascade de deux effets du second ordre, à savoir l'effet Pockels et la SHG, modèle dont les étapes successives sont représentées sur la figure 3.10. Pour plus de simplicité, nous avons présenté la configuration où  $\theta = 0^\circ$ , *i.e.* lorsque la SHG intrinsèque est nulle. Lors de sa coïncidence temporelle avec la sonde, le champ THz induit par effet Pockels une rotation de polarisation du faisceau optique, au sein du cristal de ZnTe. Comme on l'a vu au chapitre précédent, une composante optique, notée sous la forme  $\vec{E}_{\text{EO}}$ , est alors générée selon la direction  $\vec{e}_y$ . Cette dernière peut être doublée en fréquence, de par la non-linéarité  $\chi^{(2)}$  intrinsèque au matériau, et générer le signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ . Par ailleurs, cette nouvelle composante, en réalité centrée autour de  $2(\omega \pm \Omega)$ , sera générée le long de l'axe  $\vec{e}_z$  du cristal. Notons enfin que, lorsque la sonde fait un angle  $\theta$  quelconque avec l'axe  $\vec{e}_z$  du cristal, sa composante selon l'axe  $\vec{e}_y$  sera également doublée pour générer le signal de second harmonique intrinsèque  $S_{2\omega}^{\text{int}}$ .

Ainsi, nous avons mis en lumière un certain nombre d'observations expérimentales qui permettent de mettre en évidence l'existence d'un signal de second harmonique induit par un champ THz au sein d'un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Ces éléments ne sont toutefois pas suffisants pour s'assurer que le signal de second harmonique détecté lors de cette étude est bien dû





**FIGURE 3.10** – Représentation schématique de l’effet PISH dans un cristal de ZnTe taillé selon l’axe  $\langle 110 \rangle$ , lorsque  $\theta = 0$  : a) Configuration des champs électriques optique  $\vec{E}_\omega^s$  et THz  $\vec{E}_\Omega^{\text{THz}}$  à l’entrée du cristal. b) Effet Pockels induit par le champ THz et génération d’une composante optique de fréquence  $\omega \pm \Omega$  le long de l’axe  $\vec{e}_y$ , notée  $\vec{E}_{\omega \pm \Omega}$ . c) Génération du second harmonique de cette composante, due à la non-linéarité d’ordre 2 intrinsèque au matériau.

à l’effet PISH, *i.e.* une cascade de deux processus non-linéaires du second ordre, à savoir l’effet Pockels et la génération de seconde harmonique. La suite de ce chapitre sera donc consacrée à établir et valider un modèle mathématique du phénomène, permettant de comprendre l’origine de sa dépendance angulaire, ainsi que l’impossibilité de détecter un signal de TFISH.

### 3.3 Expression théorique du signal de second harmonique induit par effet Pockels (PISH)

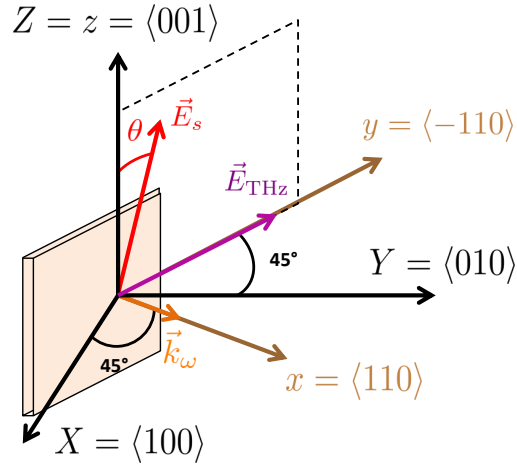
Lorsque l’effet Pockels se produit, première étape de notre modèle, le champ THz modifie l’indice de réfraction du milieu dans lequel se propage le champ sonde, ce que nous traduirons simplement par l’existence d’un déphasage induit sur le champ sonde, linéaire par rapport au champ THz. Le champ THz, d’amplitude  $\approx 20 \text{ kV.cm}^{-1}$ , très faible devant le champ sonde, d’amplitude  $\approx 10^7 \text{ kV.cm}^{-1}$ , modifie donc l’état de polarisation de la sonde lors de sa propagation dans le cristal. Celle-ci est alors, dans une seconde étape, doublée en fréquence du fait de la non-linéarité intrinsèque du cristal.

#### 3.3.1 Effet Pockels : modification des indices de réfraction du cristal

Nous nous plaçons dans la configuration où le champ THz est polarisé selon la direction  $\vec{e}_y$  (voir la figure 3.11). On rappelle que, dans le repère du cristal, le champ électrique THz s’exprime alors sous la forme :

$$\vec{E}_{\text{THz}} = \frac{E_{\text{THz}}}{\sqrt{2}} \cdot (-\vec{e}_X + \vec{e}_Y) = \underbrace{\frac{E_{\text{THz},X}}{\sqrt{2}}}_{=-E_{\text{THz}}/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_X + \underbrace{\frac{E_{\text{THz},Y}}{\sqrt{2}}}_{=E_{\text{THz}}/\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_Y. \quad (3.5)$$

Les vecteurs propres,  $\vec{V}_i$ , et les indices de réfraction correspondants,  $n_i$ , du tenseur  $\hat{\eta}$  en présence



**FIGURE 3.11** – Configuration géométrique des champs électriques à l'entrée du cristal : le champ THz est polarisé dans la direction  $\vec{e}_y$  et la polarisation du champ sonde fait un angle  $\theta$  avec la direction  $\vec{e}_z$  du cristal.

du champ THz se déduisent ensuite des équations (1.51) et (1.53) établies au chapitre 1 :

$$\begin{cases} \vec{V}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{e}_X + \vec{e}_Y) \\ \vec{V}_2 = \frac{1}{2}(-\vec{e}_X + \vec{e}_Y) + \frac{1}{\sqrt{2}}\vec{e}_Z \\ \vec{V}_3 = \frac{1}{2}(\vec{e}_X - \vec{e}_Y) + \frac{1}{\sqrt{2}}\vec{e}_Z \end{cases} \quad (3.6)$$

et

$$\begin{cases} n_1 = n_s \\ n_2 = n_s + \frac{1}{2}n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}} \\ n_3 = n_s - \frac{1}{2}n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}. \end{cases} \quad (3.7)$$

Le champ THz va donc induire une modification de l'indice de réfraction du cristal, proportionnelle à son amplitude  $E_{\text{THz}}$  et au coefficient  $r_{41}$  du tenseur de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2. Ainsi, lorsque la sonde se propage simultanément dans le matériau, chacune de ses composantes dans le repère propre  $(\vec{V}_1, \vec{V}_2, \vec{V}_3)$  subit un déphasage, proportionnel à l'indice de réfraction calculé précédemment :

$$\begin{cases} \Gamma_1(x) = \frac{2\pi n_s \cdot x}{\lambda_s} \\ \Gamma_2(x) = \frac{2\pi \cdot x}{\lambda_s} \left[ n_s + \frac{1}{2}n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}} \right] \\ \Gamma_3(x) = \frac{2\pi \cdot x}{\lambda_s} \left[ n_s - \frac{1}{2}n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}} \right]. \end{cases} \quad (3.8)$$

Pour la suite, on pose :

$$\Gamma = \frac{\pi}{\lambda_s} n_s^3 r_{41} E_{\text{THz}}.$$

### 3.3.2 Expression du champ sonde après modification par l'effet Pockels

On considère l'impulsion sonde comme une onde plane monochromatique non dépeuplée, au cours de sa propagation selon la direction  $\vec{e}_x$ . Le champ sonde, dont la direction de polarisation fait un angle  $\theta$  avec la direction  $\vec{e}_z$  du cristal, s'écrit alors sous la forme :

$$\vec{E}_{\omega_s}(t, x) = \frac{1}{2} \vec{\mathcal{E}}^\omega(x) \cdot e^{-i(\omega t - k_\omega x)} + c.c., \quad (3.9)$$

où  $k_\omega = \frac{2\pi n_s}{\lambda_s}$  est le vecteur d'onde de la sonde, et les lettres *c.c.* correspondent au complexe conjugué. Dans la base propre  $(\vec{V}_1, \vec{V}_2, \vec{V}_3)$ , où l'enveloppe de l'impulsion s'écrit sous la forme :

$$\begin{cases} \text{en } x = 0, & \vec{\mathcal{E}}^\omega(0) = E_s \left[ \cos\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot \vec{V}_2 + \sin\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot \vec{V}_3 \right] \\ \text{en } x > 0, & \vec{\mathcal{E}}^\omega(x) e^{ik_\omega x} = E_s \left[ e^{i\Gamma_2(x)} \cos\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot \vec{V}_2 + e^{i\Gamma_3(x)} \sin\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot \vec{V}_3 \right] \end{cases} \quad (3.10)$$

soit

$$\vec{\mathcal{E}}^\omega(x) = E_s \left[ \cos\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot e^{i\Gamma \cdot x} \cdot \vec{V}_2 + \sin\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) \cdot e^{-i\Gamma \cdot x} \cdot \vec{V}_3 \right], \quad (3.11)$$

Le passage entre la base propre  $(\vec{V}_1, \vec{V}_2, \vec{V}_3)$  et la base du cristal  $(\vec{e}_X, \vec{e}_Y, \vec{e}_Z)$  se fait à l'aide de la matrice de passage :

$$P = \begin{bmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{bmatrix} \quad (3.12)$$

On en déduit l'expression du champ sonde dans le repère cristallin :

$$\vec{\mathcal{E}}^\omega(x) = E_{s,X} \cdot \vec{e}_X + E_{s,Y} \cdot \vec{e}_Y + E_{s,Z} \cdot \vec{e}_Z \quad (3.13)$$

où les composantes  $E_{s,i}$  dans le repère cristallin sont données par :

$$\begin{cases} E_{s,X} = -E_{s,Y} = -\frac{E_s}{2} \left[ \cos\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) e^{i\Gamma \cdot x} - \sin\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) e^{-i\Gamma \cdot x} \right] \\ E_{s,Z} = \frac{E_s}{\sqrt{2}} \left[ \cos\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) e^{i\Gamma \cdot x} + \sin\left(\frac{\pi}{4} - \theta\right) e^{-i\Gamma \cdot x} \right]. \end{cases} \quad (3.14)$$

Ce champ, modifié par l'effet Pockels induit par le champ THz, est à l'origine d'une polarisation non-linéaire du second ordre, non nulle au sein du cristal et que nous allons calculer dans la partie suivante.

### 3.3.3 Expression de la polarisation non-linéaire du second ordre

Dans le repère du cristal, la polarisation non-linéaire du second ordre s'écrit sous la forme :

$$\vec{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi_{XYZ}^{(2)} \cdot E_{s,Y} \cdot E_{s,Z} \cdot \vec{e}_X + \epsilon_0 \chi_{YZX}^{(2)} \cdot E_{s,Z} \cdot E_{s,X} \cdot \vec{e}_Y + \epsilon_0 \chi_{ZXY}^{(2)} \cdot E_{s,X} \cdot E_{s,Y} \cdot \vec{e}_Z$$

où  $\chi_{XYZ}^{(2)} = \chi_{YZX}^{(2)} = \chi_{ZXY}^{(2)}$  sont les coefficients non nuls du tenseur de susceptibilité du second ordre du cristal, notés par la suite  $\chi^{(2)}$ .

Toujours dans ce même repère, et en remplaçant  $E_{s,X}$ ,  $E_{s,Y}$  et  $E_{s,Z}$  par les expressions (3.14), on obtient :

$$\vec{P}^{(2)} = P_X^{(2)} \cdot \vec{e}_X + P_Y^{(2)} \cdot \vec{e}_Y + P_Z^{(2)} \cdot \vec{e}_Z,$$

$$\text{avec } \begin{cases} P_X^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{E_s^2}{2\sqrt{2}} (\cos^2 \phi e^{2i\Gamma \cdot x} - \sin^2 \phi e^{-2i\Gamma \cdot x}) \\ P_Y^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{-E_s^2}{2\sqrt{2}} (\cos^2 \phi e^{2i\Gamma \cdot x} - \sin^2 \phi e^{-2i\Gamma \cdot x}) \\ P_Z^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{-E_s^2}{4} [\cos \phi e^{i\Gamma \cdot x} - \sin \phi e^{-i\Gamma \cdot x}]^2, \end{cases}$$

où  $\phi = \frac{\pi}{4} - \theta$ .

Les relations de passage entre les repères du cristal et du laboratoire (2.17) nous permettent d'exprimer  $\vec{P}^{(2)}$  dans le repère du laboratoire sous la forme :

$$\vec{P}^{(2)} = P_x^{(2)} \cdot \vec{e}_x + P_y^{(2)} \cdot \vec{e}_y + P_z^{(2)} \cdot \vec{e}_z \quad (3.15)$$

$$\text{avec } \begin{cases} P_x^{(2)} = 0 \\ P_y^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{-E_s^2}{2} (\cos^2 \phi e^{2i\Gamma \cdot x} - \sin^2 \phi e^{-2i\Gamma \cdot x}) \\ P_z^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{-E_s^2}{4} [\cos \phi e^{i\Gamma \cdot x} - \sin \phi e^{-i\Gamma \cdot x}]^2. \end{cases} \quad (3.16)$$

### 3.3.4 Equation d'onde non-linéaire

Pour établir l'équation d'onde non-linéaire décrivant la SHG, il est nécessaire de faire plusieurs hypothèses sur l'impulsion optique de sonde :

- Nous considérerons tout d'abord que l'onde fondamentale à  $\omega$  n'est pas dépeuplée. Dans un tel régime, l'équation régissant sa propagation dans le milieu est donc découplée de celle qui décrit la génération de l'onde du second harmonique. Celle-ci permet donc d'obtenir simplement les composantes du champ  $\vec{E}_{2\omega}$  rayonné par la polarisation non-linéaire.
- Nous nous plaçons également dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable : les oscillations du champ électrique varient beaucoup plus rapidement que la fonction enveloppe associée.
- Le cristal de ZnTe possède une forte absorption à 400 nm, qui intervient dans l'équation d'onde. Le coefficient d'absorption est noté  $\alpha_{2\omega}$  et vaut  $1.25 \mu\text{m}^{-1}$  [169]. On pourra donc considérer que  $1 \ll \alpha_{2\omega} \cdot x$ .

Moyennant les hypothèses précédentes, l'équation d'onde non-linéaire pour la SHG est la suivante (se référer à l'équation (A.11) de l'annexe A) :

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \alpha_{2\omega}\right) \vec{\mathcal{E}}^{2\omega}(x) = \frac{i2\omega}{2n_{2\omega}c\epsilon_0} \vec{P}^{(2)} e^{i\Delta k \cdot x}, \quad (3.17)$$

où le terme d'absorption a été ajouté pour tenir compte de l'hypothèse précédente, soit :

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \alpha_{2\omega}\right) \mathcal{E}_l^{2\omega}(x) = \frac{i\omega}{n_{2\omega}c\epsilon_0} P_l^{(2)} e^{i\Delta k \cdot x}, \quad (3.18)$$

où  $l = y, z$  sont les coordonnées dans le repère du laboratoire,  $\vec{\mathcal{E}}_{2\omega}$  est l'amplitude du champ de second harmonique,  $n_{2\omega}$  est l'indice de réfraction du ZnTe à 400 nm, et  $\Delta k$  définit la condition d'accord de phase entre les champs centrés à  $\omega$  et  $2\omega$  :

$$\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c}(n_s - n_{2\omega}). \quad (3.19)$$

La solution de cette équation, obtenue par la méthode de variation de la constante, est la suivante :

$$\mathcal{E}_y^{2\omega}(x) = -\frac{iE_s^2\omega}{2n_{2\omega}c} \chi^{(2)} e^{i\Delta k x} \left[ \frac{\cos^2 \phi (e^{2i\Gamma x} - e^{-\alpha_{2\omega}x})}{2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} + \frac{\sin^2 \phi (e^{-2i\Gamma x} - e^{-\alpha_{2\omega}x})}{-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} \right]$$

et

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_z^{2\omega}(x) &= J(x) \cdot e^{2i\Gamma x + i\Delta k x} + K(x) \cdot e^{-2i\Gamma x + i\Delta k x} + L(x) \cdot e^{i\Delta k x} \\ \text{avec : } \begin{cases} J(x) = \frac{i\omega \cdot \sin^2 \phi \cdot E_s^2 \cdot \chi^{(2)}}{4n_{2\omega} \cdot c \cdot (2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega})} \times [e^{-(2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega})x} - 1] \\ K(x) = \frac{i\omega \cdot \cos^2 \phi \cdot E_s^2 \cdot \chi^{(2)}}{4n_{2\omega} \cdot c \cdot (-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega})} \times [e^{-(-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega})x} - 1] \\ L(x) = \frac{i\omega \cos \phi \cdot \sin \phi \cdot E_s^2 \cdot \chi^{(2)}}{2n_{2\omega} \cdot c \cdot (i\Delta k + \alpha_{2\omega})} \end{cases} \end{aligned}$$

L'approximation  $1 \ll \alpha_{2\omega} \cdot x$  permet ensuite de simplifier les expressions précédentes en :

$$\mathcal{E}_y^{2\omega}(x) = -\frac{iE_s^2\omega}{2n_{2\omega}c} \chi^{(2)} e^{i\Delta k x} \left[ \frac{\cos^2 \phi e^{2i\Gamma x}}{2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} + \frac{\sin^2 \phi e^{-2i\Gamma x}}{-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} \right] \quad (3.20)$$

et

$$\mathcal{E}_z^{2\omega}(x) = -\frac{iE_s^2\omega}{4n_{2\omega}c} \chi^{(2)} e^{i\Delta k x} \left[ \frac{\cos^2 \phi e^{2i\Gamma x}}{2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} + \frac{\sin^2 \phi e^{-2i\Gamma x}}{-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} - \frac{\sin(2\phi)}{2\alpha_{2\omega}} \right]. \quad (3.21)$$

En outre, puisque  $\Gamma \approx 10^{-20} \text{ rad.m}^{-1} \ll \Delta k \approx 10^6 \text{ rad.m}^{-1}$ , il est possible d'effectuer des développements limités au second ordre dans les expressions précédentes. L'équation (3.18) se réduit alors à :

$$\mathcal{E}_{y,z}^{2\omega}(x) = -iA e^{i\Delta k x} g_{y,z}(\Gamma x, \phi) \quad (3.22)$$

avec :

$$A = \frac{\omega \chi^{(2)} E_s^2}{2cn_{2\omega}(i\Delta k + \alpha_{2\omega})} \quad (3.23)$$

---


$$\text{et } \begin{cases} g_y(\Gamma x, \phi) \approx (1 + 2i\Gamma x - 2\Gamma^2 x^2) \cos^2 \phi - (1 - 2i\Gamma x - 2\Gamma^2 x^2) \sin^2 \phi \\ g_z(\Gamma x, \phi) \approx \left[ \left(1 + i\Gamma x - \frac{\Gamma^2 x^2}{2}\right) \cos \phi - \left(1 - i\Gamma x - \frac{\Gamma^2 x^2}{2}\right) \sin \phi \right]^2. \end{cases}$$

Le tube photomultiplicateur permettant une détection en intensité, le signal total de SHG généré tout au long de la traversée du cristal s'exprime, en se limitant aux termes d'ordre 2 en  $\Gamma \cdot x$ , comme :

$$S_{2\omega}(x, \theta) = |\mathcal{E}_y^{2\omega}(\theta)|^2 + |\mathcal{E}_z^{2\omega}(\theta)|^2 \quad (3.24)$$

soit :

$$S_{2\omega}(x, \theta) = \underbrace{A^2 \cdot [\sin^2(2\theta) + \sin^4 \theta]}_{\text{SHG intrinsèque}} + \underbrace{A^2 \cdot \Gamma^2 x^2 \cdot [2 - 10 \cos^2 \theta + 12 \cos^4 \theta]}_{\text{PISH}} \quad (3.25)$$

Cette expression est la somme de deux termes, dépendant chacun de manière différente de l'angle  $\theta$  entre la polarisation du champ sonde et l'axe  $\langle 001 \rangle$  du cristal. En sortie du cristal de longueur  $L_c = 300 \mu\text{m}$ , le premier terme s'écrit donc sous la forme :

$$S_{2\omega}^{\text{int}} \propto \frac{1}{4} \epsilon_0^2 \left| \chi_{XYZ}^{(2)} \right|^2 I_s^2 \cdot [\sin^2(2\theta) + \sin^4 \theta], \quad (3.26)$$

tandis que le second s'écrit :

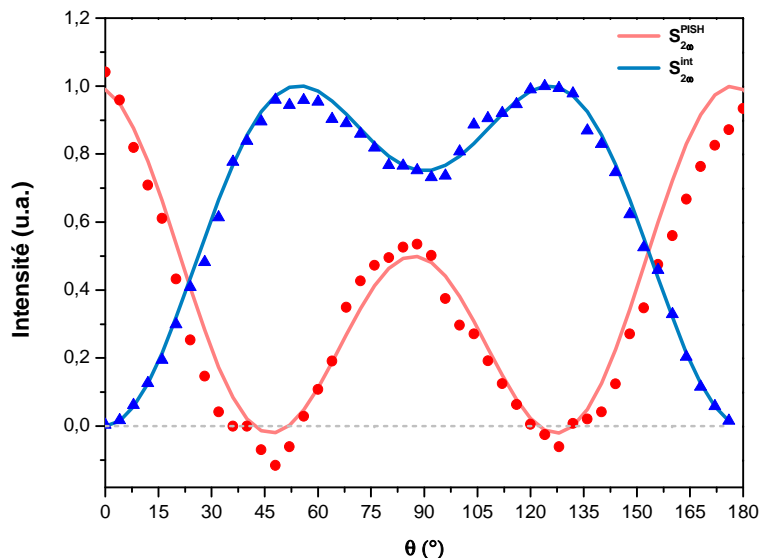
$$S_{2\omega}^{\text{PISH}} \propto \epsilon_0^2 \left| \chi_{XYZ}^{(2)} \right|^2 \left( \frac{\pi}{\lambda_s} n_s^3 r_{41} \right)^2 \cdot L_c^2 \cdot I_s^2 \cdot I_{\text{THz}} \cdot [2 - 10 \cos^2 \theta + 12 \cos^4 \theta]. \quad (3.27)$$

Ainsi, le terme  $S_{2\omega}^{\text{int}}$  est indépendant du déphasage  $\Gamma \cdot L_c$  induit par le champ THz et est directement proportionnel au carré du coefficient  $\chi_{XYZ}^{(2)}$  du tenseur de susceptibilité du second ordre : il correspond à la SHG intrinsèque au cristal. Ce phénomène non-linéaire est bien connu et résulte de l'interaction entre deux photons de la sonde à  $\omega$  pour créer un photon de fréquence  $2\omega$ . Il est proportionnel au carré de l'intensité de la sonde  $I_s^2$ . De plus, nous retrouvons la dépendance angulaire de l'intensité d'un rayonnement THz généré par redressement optique (RO) d'une impulsion à  $\omega$  dans un cristal de ZnTe, rapportée dans [84, 170]. Ceci s'explique du fait que, d'un point de vue strictement géométrique, les processus sont équivalents : il s'agit simplement de sommation de fréquence dans un cas (SHG) et de différence de fréquence dans l'autre cas (RO). La dépendance fréquentielle de l'élément  $\chi_{XYZ}^{(2)}$  du tenseur de susceptibilité d'ordre 2 n'étant pas prise en compte lors du calcul de la dépendance angulaire, les polarisations associées à la SHG intrinsèque et au redressement optique auront donc la même dépendance angulaire. Le second terme, noté  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ , apparaît, quant à lui, pour un déphasage  $\Gamma \cdot L_c$  non nul, et trouve son origine dans l'effet Pockels. Il est proportionnel au terme  $A^2 \cdot \Gamma^2$ , donc au carré de l'intensité de la sonde,  $I_s^2$ , et à l'intensité THz,  $I_{\text{THz}}$ .

Le modèle mis en place ici confirme donc les résultats de l'étude expérimentale en intensité, présentée à la section 3.2.1. D'autre part, nous présentons sur la figure 3.12 les données expérimentales déjà exposées à la section 3.2.2, ainsi que les courbes théoriques, en lignes continues, provenant des expressions calculées précédemment. On constate un très bon accord entre l'expérience et notre modèle. Toutefois, quelques variations apparaissent, principalement au niveau du signal de PISH. Plusieurs raisons peuvent être évoquées pour expliquer ces différences, dont les deux principales sont données ci-dessous :

- Le tube photomultiplicateur détecte la totalité des photons qui impactent sa surface sensible, sans distinction de provenance. Le filtrage principal du signal de PISH est donc effectué après, grâce au module de détection synchrone. Cependant, lorsque l'angle  $\theta$  diffère fortement de  $0^\circ$ , les signaux dus à l'effet PISH peuvent atteindre des valeurs jusqu'à plusieurs centaines de fois plus faibles que celles du signal de SHG intrinsèque. Malgré la présence du hacheur mécanique sur le trajet de la sonde, il est donc délicat d'enregistrer uniquement le PISH avec cette méthode, sans provoquer la saturation du tube photomultiplicateur.
- D'autre part, il est clair que l'alignement du faisceau incident avec l'entrée du spectromètre est fondamental pour le bon fonctionnement du monochromateur : un éventuel désalignement peut être à l'origine d'un bruit parasite sur le signal. La taille de la fente d'entrée du spectromètre est également un paramètre important. Enfin, l'injection entre la sortie du spectromètre et le photomultiplicateur peut également amener du bruit, susceptible de perturber les mesures.

Cependant, si les deux études en intensité et en angle ont bien permis d'accréditer la thèse d'une cascade de deux effets non-linéaires, il semble malgré tout étonnant qu'un procédé du troisième ordre tel que le TFISH ne soit pas visible dans nos conditions expérimentales, suffisantes pour observer et caractériser un effet de cascade. Pour répondre à cette question, nous allons maintenant établir l'expression théorique du signal de TFISH et la comparer à celle qui a été obtenue pour le signal de PISH.



**FIGURE 3.12** – Dépendance angulaire expérimentale et théorique des signaux de second harmonique : en bleu, SHG intrinsèque et, en rouge, SHG induite par effet Pockels.

## 3.4 Expression théorique du signal de second harmonique induit par un champ THz (TFISH)

### 3.4.1 Susceptibilité non-linéaire du troisième ordre

Dans les cristaux cubiques tels que le GaP ou le ZnTe, le tenseur de susceptibilité non-linéaire  $\hat{\chi}^{(3)}$  possède 21 éléments, dont seulement quatre sont indépendants [82] :

$$\begin{cases} \chi_{XXXX}^{(3)} = \chi_{YYYY}^{(3)} = \chi_{ZZZZ}^{(3)} \\ \chi_{YYZZ}^{(3)} = \chi_{ZZYY}^{(3)} = \chi_{ZZXX}^{(3)} = \chi_{XXZZ}^{(3)} = \chi_{XXYY}^{(3)} = \chi_{YYXX}^{(3)} \\ \chi_{YZYZ}^{(3)} = \chi_{ZYZY}^{(3)} = \chi_{ZXZX}^{(3)} = \chi_{XZZX}^{(3)} = \chi_{XYXY}^{(3)} = \chi_{YXYX}^{(3)} \\ \chi_{YZZY}^{(3)} = \chi_{ZYYZ}^{(3)} = \chi_{ZXXZ}^{(3)} = \chi_{XZZX}^{(3)} = \chi_{XYXY}^{(3)} = \chi_{YXXY}^{(3)}. \end{cases}$$

Dans la suite, on considérera qu'en dehors des résonances du cristal, on a :  $\chi_{ijij}^{(3)} = \chi_{iijj}^{(3)}$ , de sorte que le tenseur de susceptibilité ne comporte plus que les deux éléments suivants non nuls et indépendants, notés  $a$  et  $b$  et tels que :

$$\begin{cases} a = \chi_{XXXX}^{(3)} = \chi_{YYYY}^{(3)} = \chi_{ZZZZ}^{(3)} \\ b = \chi_{ZZYY}^{(3)} = \chi_{ZZXX}^{(3)} = \chi_{XXYY}^{(3)} = \chi_{YYXX}^{(3)} = \chi_{YZZY}^{(3)} = \chi_{XZZX}^{(3)} = \chi_{YXZY}^{(3)} \dots \end{cases}$$

### 3.4.2 Expression de la polarisation non-linéaire du troisième ordre

La polarisation du troisième ordre s'exprime dans le repère du cristal selon l'équation :

$$\vec{P}^{(3)} = \frac{3}{2}\epsilon_0 \hat{\chi}^{(3)} : \vec{E}_{\omega_s} \cdot \vec{E}_{\omega_s} \cdot \vec{E}_{\text{THz}}, \quad (3.28)$$

soit, pour chaque composante :

$$\begin{cases} P_X^{(3)} = \frac{3}{2}\epsilon_0 \left[ \chi_{XXXX}^{(3)} E_s^X E_s^X E_{\text{THz}}^X + \chi_{XYXY}^{(3)} E_s^Y E_s^Y E_{\text{THz}}^X + \chi_{XZZX}^{(3)} E_s^Z E_s^Z E_{\text{THz}}^X \right] \\ \quad + 2\epsilon_0 \chi_{YXYX}^{(3)} E_s^Y E_s^X E_{\text{THz}}^Y \\ P_Y^{(3)} = \frac{3}{2}\epsilon_0 \left[ \chi_{YYYY}^{(3)} E_s^Y E_s^Y E_{\text{THz}}^Y + \chi_{YXXY}^{(3)} E_s^X E_s^X E_{\text{THz}}^Y + \chi_{YZZY}^{(3)} E_s^Z E_s^Z E_{\text{THz}}^Y \right] \\ \quad + 2\epsilon_0 \chi_{YXYX}^{(3)} E_s^X E_s^Y E_{\text{THz}}^X \\ P_Z^{(3)} = \frac{3}{2}\epsilon_0 \left[ 2\chi_{ZXZX}^{(3)} E_s^X E_s^Z E_{\text{THz}}^X + 2\chi_{ZYZY}^{(3)} E_s^Y E_s^Z E_{\text{THz}}^Y \right]. \end{cases}$$

Le facteur  $K = \frac{3}{2}$  est tiré de la référence [142]. Le calcul complet donne finalement :

$$\begin{cases} P_X^{(3)} = -P_Y^{(3)} = -\frac{3}{2} \frac{1}{\sqrt{2}} \epsilon_0 \cdot E_s^2 \cdot E_{\text{THz}} \left( \frac{1}{2}(a+b) \sin^2 \theta + b \right) \\ P_Z^{(3)} = \frac{3}{2} \epsilon_0 \cdot b \cdot E_s^2 \cdot E_{\text{THz}} \sin(2\theta). \end{cases} \quad (3.29)$$



De même que précédemment, les relations de passage (2.17) permettent d'exprimer les composantes de la polarisation du troisième ordre dans le repère du laboratoire :

$$\begin{cases} P_x^{(3)} = 0 \\ P_y^{(3)} = \sqrt{2} \cdot P_Y^{(3)} = \frac{-3}{2} \epsilon_0 \cdot E_s^2 \cdot E_{\text{THz}} \left( \frac{1}{2}(a+b) \sin^2 \theta + b \right) \\ P_z^{(3)} = P_Z^{(3)} = \frac{3}{2} \epsilon_0 \cdot b \cdot E_s^2 \cdot E_{\text{THz}} \sin(2\theta). \end{cases} \quad (3.30)$$

### 3.4.3 Equation d'onde non-linéaire

Les conditions déjà exprimées lors de la résolution de l'équation d'onde non-linéaire associée à l'effet PISH sont également valables ici. De plus, on considère que le champ THz est centré à la pulsation  $\Omega$  et s'écrit sous la forme d'une onde monochromatique non dépeuplée, soit :

$$\vec{E}_{\text{THz}} = \frac{1}{2} E_{\text{THz}} \cdot e^{i(k_\Omega x - \Omega t)} + c.c., \quad (3.31)$$

où  $k_\Omega$  est le vecteur d'onde associé, et les lettres *c.c.* correspondent au complexe conjugué.

L'équation d'onde non-linéaire pour le TFISH s'écrit donc (se référer à l'annexe A - équation (A.11)) :

$$\left( \frac{\partial}{\partial x} + \alpha_{2\omega} \right) \vec{\mathcal{E}}^{\text{TFISH}}(x) = \frac{i\omega}{n_{2\omega} c \epsilon_0} \vec{P}^{(3)} e^{i\Delta k \cdot x}, \quad (3.32)$$

avec  $\Delta k = 2k_\omega + k_\Omega - k_{2\omega}$  le désaccord de phase entre l'onde à  $\omega$  et celle générée à  $2\omega$ . Du fait que la longueur d'onde dans le domaine THz est de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{m}$ , alors qu'elle atteint seulement quelques centaines de nm dans le domaine optique, on a  $k_\Omega \ll k_\omega$  et on peut simplifier l'expression de  $\Delta k$  sous la forme :

$$\Delta k \approx 2k_\omega - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} \cdot (n_s - n_{2\omega}).$$

Tous calculs effectués, la résolution de l'équation (3.32) donne l'expression suivante des composantes du champ généré par TFISH :

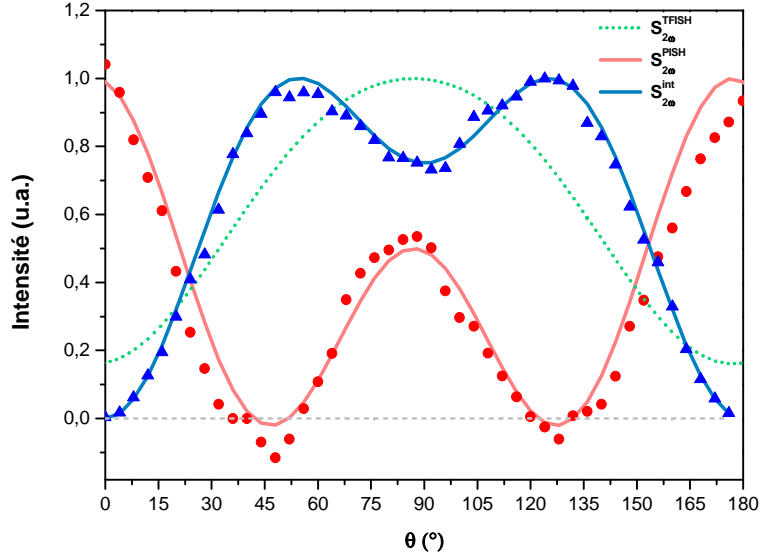
$$\begin{cases} \mathcal{E}_y^{\text{TFISH}}(x) = -i \cdot B \cdot e^{i\Delta k x} \left( \frac{1}{2} \left( \frac{a}{b} + 1 \right) \sin^2(\theta) + 1 \right) \\ \mathcal{E}_z^{\text{TFISH}}(x) = -i \cdot B \cdot e^{i\Delta k x} \sin(2\theta), \end{cases} \quad (3.33)$$

avec

$$B = \frac{3}{2} \cdot \frac{\omega}{n_{2\omega} \cdot c (i\Delta k + \alpha_{2\omega})} \chi_{XXYY}^{(3)} \cdot I_s \cdot E_{\text{THz}}. \quad (3.34)$$

Finalement, le signal de TFISH détecté par le photomultiplicateur s'écrit donc sous la forme :

$$S_{2\omega}^{\text{TFISH}} = B^2 \cdot \left[ \left( \frac{3}{2} \sin^2 \theta + 1 \right)^2 + \sin^2(2\theta) \right], \quad (3.35)$$



**FIGURE 3.13** – Dépendance angulaire des signaux de second harmonique : la courbe bleue, resp. rouge, correspond à l’expression théorique du signal de SHG intrinsèque, resp. du signal de SHG induite par effet Pockels, calculées précédemment (voir l’équation (3.25)). La courbe en pointillés verts correspond, quant à elle, à l’évolution théorique du signal de TFISH.

où l’on a tenu compte du fait que les coefficients du tenseur,  $a$  et  $b$ , sont reliés par la relation  $a = 2b$  (voir la référence [171]).

La figure 3.13 présente, en vert, l’évolution angulaire théorique du signal de TFISH, normalisée et superposée aux données obtenues précédemment pour les signaux de SHG intrinsèque, tracées en bleu, et induite par effet Pockels, tracées en rouge. Cette courbe ne présente véritablement aucune similitude avec la dépendance angulaire expérimentale et théorique de l’effet de PISH. Ceci confirme les résultats préliminaires qui indiquaient que le TFISH n’était pas à l’origine des signaux de second harmonique observés dans notre configuration expérimentale.

D’autre part, le calcul théorique des signaux de TFISH et de PISH, donnés respectivement par les équations (3.35) et (3.27), nous permet de déterminer l’ordre de grandeur de leur rapport  $R$ , si l’on fait abstraction de la dépendance angulaire des deux signaux :

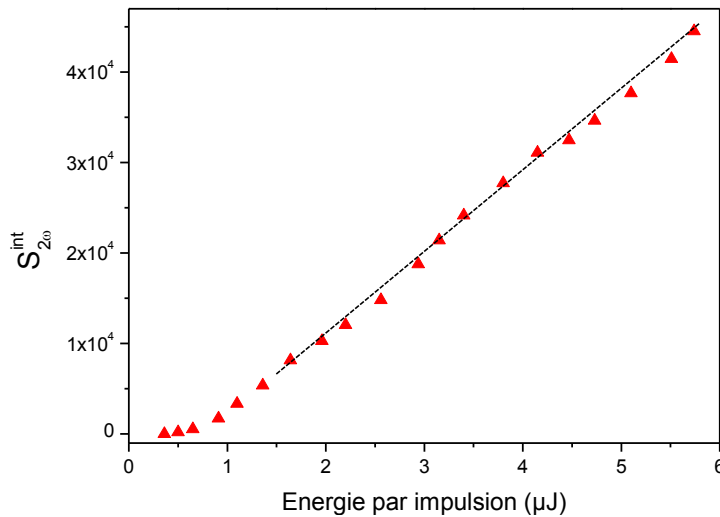
$$R = \frac{S_{2\omega}^{\text{PISH}}}{S_{2\omega}^{\text{TFISH}}} = \left( \frac{A\Gamma L_c}{B} \right)^2 = \left( \frac{\pi n_s^3 r_{41}}{3\lambda} \cdot \frac{\chi_{XYZ}^{(2)}}{\chi_{XXYY}^{(3)}} \cdot L_c \right)^2 \approx 220. \quad (3.36)$$

Les valeurs des paramètres utilisées lors de ce calcul sont données dans le tableau 3.1. Ainsi, le signal de second harmonique du troisième ordre induit par le rayonnement THz est au moins 200 fois plus faible que le signal généré par la cascade de l’effet Pockels et du doublage en fréquence de la sonde, dans les conditions expérimentales présentes au laboratoire. Remarquons qu’une augmentation de l’intensité du champ THz permettrait éventuellement d’augmenter le rapport signal sur bruit de la détection et d’améliorer la visibilité du TFISH. L’augmentation de l’intensité de la sonde n’est malheureusement pas forcément adéquate dans ce cas, du fait de l’importante absorption à deux photons présente dans le ZnTe à 800 nm [43] : l’impulsion sonde risque en effet de se dépeupler et cela se traduit par une saturation de l’intensité, comme on peut le constater par exemple sur le signal de SHG intrinsèque isolé et présenté sur la figure 3.14. En effet, la relation

entre le signal de SHG intrinsèque et l'intensité de la sonde, quadratique à faible intensité, devient linéaire lorsque la sonde devient trop intense, adoptant le comportement prévu lorsqu'on est en présence d'une absorption à deux photons, procédé non-linéaire du troisième ordre [82].

Paramètre	Valeur numérique
$r_{41}$	3.9 pm/V
$\chi_{XXYY}^{(3)}$	$2.5 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$
$\chi_{XYZ}^{(2)}$	$1 \times 10^{-10} \text{ m} \cdot \text{V}^{-1}$
$n_s$	2.9
$\lambda$	800 nm
$L_c$	320 $\mu\text{m}$

**TABLE 3.1** – Rappel des valeurs numériques des différents paramètres du ZnTe utilisés pour calculer le rapport  $R$  défini à l'équation 3.36 et provenant des références [137, 171].

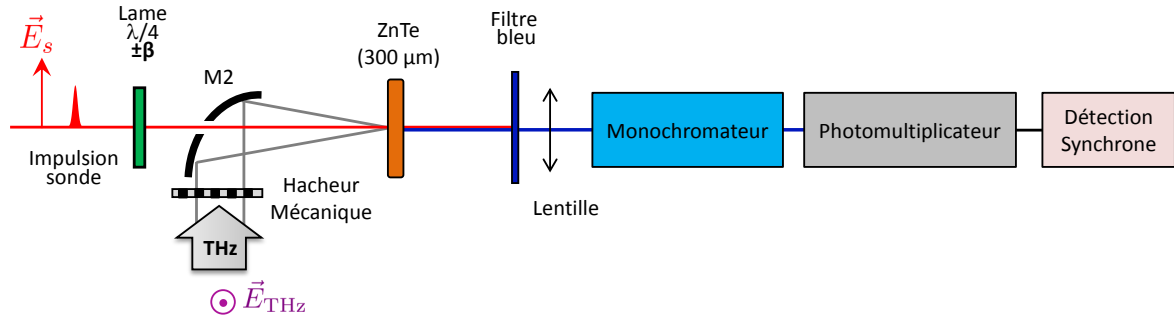


**FIGURE 3.14** – Effet de l'augmentation de l'énergie par impulsion du faisceau sonde sur la dépendance en intensité du signal de SHG intrinsèque : la dépendance linéaire, symbolisée par la droite pointillée, apparaît à partir d'une énergie proche de  $1.5 \mu\text{J}$ . Elle est due au phénomène non-linéaire d'absorption à deux photons, présent dans le ZnTe [43], et se traduit par une saturation de la SHG.

### 3.5 Application de la génération de second harmonique induite par effet Pockels (PISH) à la détection d'un champ THz intense

Le modèle théorique développé précédemment montre que le signal  $S_{2\omega}^{\text{PISH}}$ , généré par l'effet PISH, est proportionnel à l'intensité du champ THz : il est donc *a priori* possible, comme nous l'avons déjà effectué auparavant (voir la section 2.2), d'effectuer une détection hétérodyne dans le

crystal de ZnTe, qui permettra d'enregistrer la dépendance du champ électrique THz en fonction du retard temporel  $\tau$  entre le faisceau sonde et le champ THz. Nous avons cette fois inséré dans le dispositif expérimental une lame quart d'onde, en amont du cristal de ZnTe, sur le trajet du faisceau sonde, dont l'un des axes neutres fait un angle  $\pm\beta$  par rapport à la direction de polarisation du faisceau sonde, choisie selon l'axe  $\vec{e}_z$  pour cette expérience. Le dispositif expérimental correspondant est représenté sur la figure 3.15.



**FIGURE 3.15** – Montage optique de détection hétérodyne du champ THz, basé sur la génération de second harmonique induite par effet Pockels dans un cristal de ZnTe. Le champ sonde est polarisé selon la direction  $\langle 001 \rangle$  du cristal et le champ THz lui est orthogonal. Une lame quart d'onde est ajoutée en amont du cristal, dont l'un des axes neutres fait un petit angle  $\pm\beta$  avec la direction  $\langle 001 \rangle$  du cristal.

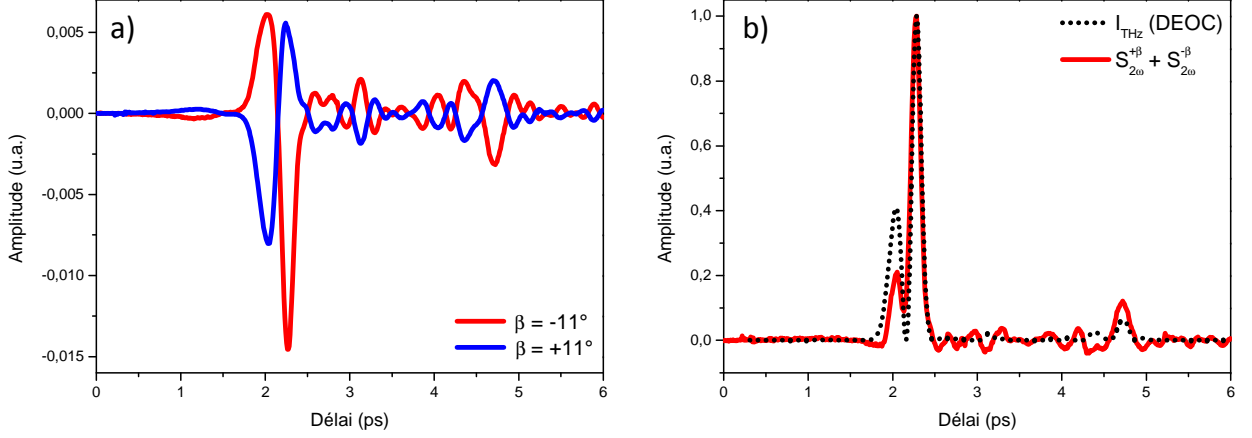
Lorsque le faisceau sonde, polarisée linéairement, traverse la lame quart d'onde, elle subit un changement de polarisation et devient légèrement elliptique. En traversant ensuite le cristal, la nouvelle composante, générée selon l'axe  $y$  du repère du laboratoire et déphasée de  $\pi/2$  par rapport à celle orientée selon l'axe  $z$ , peut être doublée en fréquence par la non-linéarité intrinsèque du cristal. La nouvelle onde, centrée à  $2(\omega \pm \Omega)$  et de champ électrique que l'on dénotera, pour plus de simplicité, sous la forme  $E_{2\omega}^{\text{OL}} \propto i\sqrt{S_{2\omega}^{\text{int}}}$ , est alors orientée selon l'axe  $z$ . Elle peut donc interagir avec l'onde issue de l'effet de cascade PISH, dont le champ électrique est dénoté par  $E_{2\omega}^{\text{PISH}} \propto i\sqrt{S_{2\omega}^{\text{PISH}}}$ , et jouer le rôle d'un oscillateur local. En se référant aux expressions (2.35) et (2.36), établies au chapitre précédent pour la détection hétérodyne effectuée à partir de l'onde sonde fondamentale, on peut transposer simplement celles-ci au cas de l'onde doublée en fréquence, et on a alors :

$$S_{2\omega}^{+\beta} \propto (E_{2\omega}^{\text{OL}} + E_{2\omega}^{\text{PISH}})^2 = S_{2\omega}^{\text{int}} + S_{2\omega}^{\text{PISH}} + 2 \cdot E_{2\omega}^{\text{OL}} \times E_{2\omega}^{\text{PISH}} \quad (3.37)$$

et

$$S_{2\omega}^{-\beta} \propto (E_{2\omega}^{\text{OL}} - E_{2\omega}^{\text{PISH}})^2 = S_{2\omega}^{\text{int}} + S_{2\omega}^{\text{PISH}} - 2 \cdot E_{2\omega}^{\text{OL}} \times E_{2\omega}^{\text{PISH}}. \quad (3.38)$$

Chacun des signaux  $S_{2\omega}^{\pm\beta}$ , mesurés pour un angle  $\beta = \pm 11^\circ$ , est présenté sur la figure 3.16-a). Cependant, seul les phénomènes modulés par le champ THz seront détectés par le tube photomultiplicateur associé à la détection synchrone, du fait de la position du hacheur mécanique sur le trajet du faisceau THz. En conséquence, acquérir la somme des deux expressions précédentes permet de mettre en évidence uniquement la contribution homodyne pure du signal,  $|E_{2\omega}^{\text{PISH}}|^2 = I_{2\omega}^{\text{PISH}}$ . Celle-ci a été mesurée expérimentalement pour deux angles opposés  $\beta = \pm 11^\circ$  et est présentée sur la figure 3.16-b). L'intensité THz a été également mesurée par la détection électro-optique conventionnelle. Les deux formes temporelles sont assez similaires, ce qui confirme la proportionnalité entre le signal de second harmonique induit par l'effet Pockels et l'intensité du champ THz.



**FIGURE 3.16** – a) Signaux de second harmonique générés au sein d’un cristal de ZnTe, mesurés au tube photomultiplicateur pour deux angles opposés de  $\pm 11^\circ$  imposés par la lame quart d’onde, en fonction du délai entre les impulsions optique et THz. b) Comparaison de la composante homodyne pure  $S_{2\omega}^{+\beta} + S_{2\omega}^{-\beta}$  et de l’intensité du champ THz, obtenue par la DEOC (voir le chapitre 2).

Le calcul exact de l’expression de la composante hétérodyne  $\Delta I_{2\omega} = S_{2\omega}^{+\beta} - S_{2\omega}^{-\beta}$  centrée à  $2\omega$  se fait en suivant les mêmes étapes que dans les sections précédentes. Pour l’angle  $+\beta$ , le champ sonde, initialement orienté selon la direction  $\vec{e}_z$ , traverse la lame quart d’onde et s’exprime à l’entrée du cristal sous la forme :

$$\vec{E}_{\omega_s} = \frac{\sqrt{2}}{2} E_s \begin{bmatrix} 0 \\ -i \sin(2\beta) \\ 1 + i \cos(2\beta) \end{bmatrix} \quad (3.39)$$

dans le repère du laboratoire  $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$ .

On effectue ensuite, comme précédemment, les transformations qui permettent de calculer les composantes du champ sonde dans la base propre  $(\vec{V}_1, \vec{V}_2, \vec{V}_3)$  et d’appliquer le déphasage  $\Gamma x$  induit par le champ THz :

$$\vec{\mathcal{E}}^\omega(x) = E_s \left[ \{1 + i \cdot (\cos(2\beta) - \sin(2\beta))\} e^{i\Gamma x} \cdot \vec{V}_2 + \{1 + i \cdot (\cos(2\beta) + \sin(2\beta))\} e^{-i\Gamma x} \cdot \vec{V}_3 \right]. \quad (3.40)$$

L’angle  $\beta$  de la lame quart d’onde étant petit, on peut effectuer un développement limité au premier ordre des expressions  $\sin(2\beta)$  et  $\cos(2\beta)$ , et définir les coefficients  $A'$  et  $B'$  selon :

$$\begin{cases} A' = 1 + i(1 - 2\beta) \\ B' = 1 + i(1 + 2\beta). \end{cases} \quad (3.41)$$

La matrice de passage entre le repère propre et le repère du cristal (voir l’équation (3.12)) permet alors de calculer le champ sonde à la position  $x$  dans le cristal :

$$\vec{\mathcal{E}}^\omega(x) = E_{s,X} \cdot \vec{e}_X + E_{s,Y} \cdot \vec{e}_Y + E_{s,Z} \cdot \vec{e}_Z, \quad (3.42)$$

où les composantes  $E_{s,i}$  dans le repère cristallin sont données par :

$$\begin{aligned} E_{s,X}(x, \beta) = -E_{s,Y}(x, \beta) &= -\frac{E_s}{2} [A' \cdot e^{i\Gamma x} - B' \cdot e^{-i\Gamma x}] \\ \text{et} \quad E_{s,Z}(x, \beta) &= \frac{E_s}{\sqrt{2}} [A' \cdot e^{i\Gamma x} + B' \cdot e^{-i\Gamma x}]. \end{aligned} \quad (3.43)$$

La polarisation non-linéaire du second ordre associée est finalement donnée par l'expression :

$$\begin{cases} P_{s,X}(x, \beta) = -P_{s,Y}(x, \beta) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4\sqrt{2}} [A'^2 e^{2i\Gamma x} - B'^2 e^{-2i\Gamma x}] \\ P_{s,Z}(x, \beta) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{8} [A' e^{i\Gamma x} - B' e^{-i\Gamma x}]^2. \end{cases} \quad (3.44)$$

Les relations de passages données par l'équation (2.17) permettent ensuite d'obtenir les composantes de la polarisation dans le repère du laboratoire, soit :

$$\begin{cases} P_{s,x} = 0 \\ P_{s,y} = -\frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} [A' 2 e^{2i\Gamma x} - B'^2 e^{-2i\Gamma x}] \\ P_{s,z} = -\frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{8} [A' e^{i\Gamma x} - B' e^{-i\Gamma x}]^2. \end{cases} \quad (3.45)$$

La résolution de l'équation non-linéaire (3.18) et la prise en compte de l'approximation  $1 \ll \alpha_{2\omega} \cdot x$  nous permettent finalement d'exprimer les composantes du champ doublé en fréquence dans le repère du laboratoire :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_y^{2\omega}(x, \beta) = -\frac{iE_s^2 \omega}{4n_{2\omega} c} \chi^{(2)} e^{i\Delta k x} \left[ \frac{A'^2 e^{2i\Gamma x}}{2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} - \frac{B'^2 e^{-2i\Gamma x}}{-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} \right] \\ \mathcal{E}_z^{2\omega}(x, \beta) = -\frac{iE_s^2 \omega}{8n_{2\omega} c} \chi^{(2)} e^{i\Delta k x} \left[ \frac{A'^2 e^{2i\Gamma x}}{2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} + \frac{B'^2 e^{-2i\Gamma x}}{-2i\Gamma + i\Delta k + \alpha_{2\omega}} + \frac{2A'B'}{\alpha_{2\omega}} \right]. \end{cases} \quad (3.46)$$

Enfin, le signal de SHG mesuré par le tube photomultiplicateur lorsque la lame quart d'onde est orientée d'un angle  $+\beta$  est tel que :

$$S_{2\omega}^{+\beta} = |\mathcal{E}_y^{2\omega}(x, \beta)|^2 + |\mathcal{E}_z^{2\omega}(x, \beta)|^2, \quad (3.47)$$

De même, le signal de SHG mesuré pour un angle  $-\beta$  est donné par l'expression :

$$S_{2\omega}^{-\beta} = |\mathcal{E}_y^{2\omega}(x, -\beta)|^2 + |\mathcal{E}_z^{2\omega}(x, -\beta)|^2, \quad (3.48)$$

En tenant compte ensuite des mêmes hypothèses que précédemment, soit  $\Gamma \ll \Delta k$  et  $x \leq L_c$ , on peut effectuer un développement limité au second ordre des expressions (3.46) en  $\Gamma x$ . La

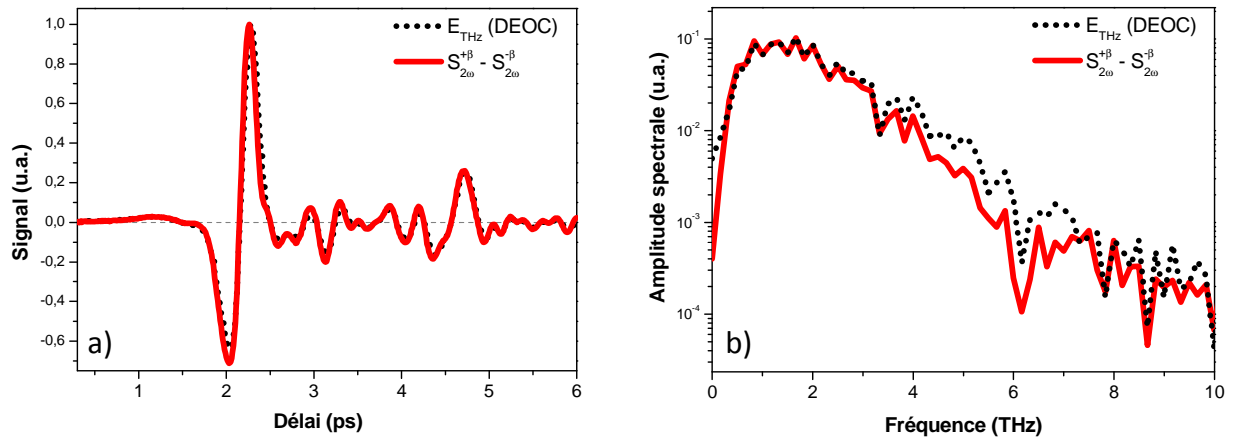
différence des signaux de PISH mesurés indépendamment pour deux angles opposés  $\beta$  et  $-\beta$ , à l'aide du photo-multiplicateur relié à la détection synchrone, est alors donnée par l'expression suivante :

$$\Delta I_{2\omega} = S_{2\omega}^{+\beta} - S_{2\omega}^{-\beta} \propto G^2 \beta \Gamma L_c \propto \beta I_s^2 E_{\text{THz}}, \quad (3.49)$$

avec

$$G = \frac{\omega \chi^{(2)} E_s^2}{4n_{2\omega} c}. \quad (3.50)$$

La différence des deux signaux de second harmonique enregistrés pour deux angles de signes opposés est donc proportionnelle à l'amplitude du champ THz. Ceci est bien confirmé par la figure 3.17a), sur laquelle est présentée l'acquisition de  $\Delta I_{2\omega}$  en fonction du retard entre l'onde THz et l'impulsion sonde, ainsi que le signal électro-optique mesuré dans le même cristal, par ellipsométrie conventionnelle, à l'aide d'une lame quart d'onde, d'un prisme de Wollaston et de deux photodiodes équilibrées. Par transformation de Fourier, nous avons également calculé le spectre pour chacune des deux méthodes, et nous observons une grande similitude entre les deux signaux temporels et spectraux, ce qui confirme la capacité de la détection hétérodyne du second harmonique à mesurer efficacement un champ THz.



**FIGURE 3.17** – a) Signal électro-optique mesuré à l'aide de la détection conventionnelle (en noir) et différence des signaux PISH  $\Delta I_{2\omega}$  enregistrés pour  $\beta = 11^\circ$  (en rouge), en fonction du délai entre les champs sonde et THz. b) Comparaison des spectres associés, obtenus par transformation de Fourier.

Ainsi, nous avons démontré qu'il est possible de détecter un champ THz en utilisant l'effet de second harmonique induit par l'effet Pockels dans un cristal de ZnTe, orienté selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Cette méthode hétérodyne permet d'enregistrer un signal proportionnel au champ électrique THz, mais dont la fréquence est doublée : il peut donc s'agir d'une bonne solution pour effectuer la détection d'impulsions THz générées à partir d'impulsions appartenant au domaine du moyen infrarouge.

En effet, et comme cela a été vu par exemple dans le cas du niobate de lithium au chapitre 1, travailler à des longueurs d'onde de pompe de plus en plus grandes peut être une solution à l'absorption multi-photonique de la pompe, lors de la génération THz induite par redressement optique dans certains matériaux. Cependant, ces longueurs d'onde, qui appartiennent au domaine du moyen infrarouge, vers 2 ou 3  $\mu\text{m}$  pour pomper un cristal d'arséniure de gallium par exemple

---

[172], sont de plus en plus employées [173], mais restent relativement difficiles à détecter : il est donc intéressant de pouvoir éventuellement convertir la fréquence centrale de l'impulsion sonde, pour pouvoir détecter le champ THz, et c'est dans ce cadre que la méthode hétérodyne développée plus haut trouve son intérêt. Notons, en parallèle, que certaines expériences font déjà intervenir le doublage en fréquence pour la détection dans le domaine THz (avec la méthode ABCD par exemple [95] - voir la partie 1.4.1 du chapitre 1). Nous pouvons enfin mentionner que la conversion de fréquence de la sonde peut être également réalisée en amont du cristal électro-optique [174], mais il est alors nécessaire d'utiliser deux cristaux différents pour la détection THz et pour la génération d'harmonique, au contraire de l'alternative que nous proposons. Cette économie de cristaux est cependant à relativiser, dans le sens où le signal de SHG induit par le champ THz atteignant des valeurs faibles, la méthode hétérodyne nécessite un système de détection très sensible et assez complexe à mettre en place.





# Chapitre 4

## Non-linéarités du troisième ordre : effet Kerr THz

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Choix des cristaux zinc-blende</b>	<b>132</b>
4.1.1	Effet Kerr THz : état de l'art	133
4.1.2	Procédés non-linéaires du troisième ordre, induits par un champ THz dans des cristaux de type zinc-blende.	135
<b>4.2</b>	<b>Description du dispositif expérimental</b>	<b>137</b>
<b>4.3</b>	<b>Modèle théorique de l'effet Kerr THz dans un cristal zinc-blende</b>	<b>139</b>
4.3.1	Expression des champs électriques à l'entrée du cristal	139
4.3.2	Expression de la polarisation associée à l'effet Kerr THz	141
4.3.3	Établissement de l'équation de propagation non-linéaire de la sonde	144
4.3.4	Résolution de l'équation de propagation non-linéaire : expression théorique du déphasage induit par effet Kerr THz	145
4.3.5	Détection du déphasage induit par effet Kerr THz	146
<b>4.4</b>	<b>Résultats expérimentaux</b>	<b>149</b>
4.4.1	Étude de la dépendance en intensité	152
4.4.2	Étude de la dépendance angulaire	153
4.4.3	Dynamique temporelle de l'effet Kerr THz : simulation et expérience	155

---

Parmi les procédés non-linéaires du troisième ordre, l'effet Kerr, découvert dès 1875 lors d'expériences menées par J. Kerr [175], peut être décrit comme un changement de l'indice de réfraction d'un matériau, initialement isotrope, lorsqu'un champ électrique externe lui est appliqué. Cette biréfringence est proportionnelle à l'intensité du champ appliqué, au contraire de celle induite par effet Pockels, qui est directement proportionnelle au champ. Par suite, l'indice de réfraction du matériau s'écrit alors sous la forme :

$$n = n_0 + n_1^{\text{Pockels}} + n_2^{\text{Kerr}}, \quad (4.1)$$

où  $n_0$  est l'indice du matériau en l'absence de champ appliqué,  $n_1^{\text{Pockels}} = n_1 \cdot E$  l'indice induit par l'effet Pockels et  $n_2^{\text{Kerr}} = n_2 \cdot E^2$  celui induit par l'effet Kerr,  $E$  étant l'amplitude du champ externe appliqué.

---

Avec l'avènement des lasers impulsionnels au début des années 60, l'effet Kerr induit par des impulsions optiques (Optical Kerr Effect - OKE) a été observé dans les liquides dès 1964 [176]. Dans ce cas particulier, le changement d'indice induit par l'impulsion optique s'écrit :

$$n_2^{\text{Kerr}} = n_2^I \cdot I, \quad (4.2)$$

où  $I$  est l'intensité de l'impulsion et  $n_2^I$  l'indice de réfraction non-linéaire d'ordre 2.

L'effet Kerr optique peut fortement influencer la propagation des ondes dans le milieu modifié, en modifiant leur phase et leur spectre. En conséquence, l'OKE peut mener à de nombreux processus non-linéaires, dont certains peuvent être préjudiciables ou, au contraire, tout à fait intéressants pour diverses applications. Ainsi, l'auto-focalisation d'une impulsion laser dans un milieu modifié par l'effet Kerr peut mener à la destruction d'une partie de ce milieu si elle n'est pas bien maîtrisée [177], ou, dans le cas contraire, être à l'origine d'un verrouillage de phase de certains modes d'une cavité laser et permettre la génération d'impulsions ultracourtes [178]. Par ailleurs, lorsque l'effet Kerr a lieu dans un milieu confiné tel qu'une fibre optique, l'auto-modulation de phase induite peut être exactement compensée par la dispersion, et l'élargissement temporel qui en résulte. C'est ce processus qui est à l'origine des solitons optiques, fondamentaux dans les techniques actuelles de télécommunications optiques [179, 180]. De même, lors du processus d'auto-modulation de phase, l'effet Kerr peut modifier le spectre de l'impulsion initiale en l'élargissant et conduire à la production de supercontinuum optiques. Ceux-ci sont très utilisés par exemple pour la génération d'impulsions ultracourtes [181]. L'effet Kerr est donc de première importance pour de nombreuses applications dans le domaine optique. Mais qu'en est-il du domaine THz ?

Dans ce chapitre, nous présentons une étude de l'effet Kerr THz induit par une impulsion THz intense dans un cristal de phosphore de gallium. Nous justifierons tout d'abord notre choix de ce type de matériau, avant de proposer une analyse théorique de la dynamique temporelle du processus, basée sur l'établissement et la résolution de l'équation d'onde non-linéaire associée. Finalement, nous confronterons les prédictions du modèle avec les résultats obtenus lors de l'étude expérimentale du phénomène.

## 4.1 Choix des cristaux zinc-blende

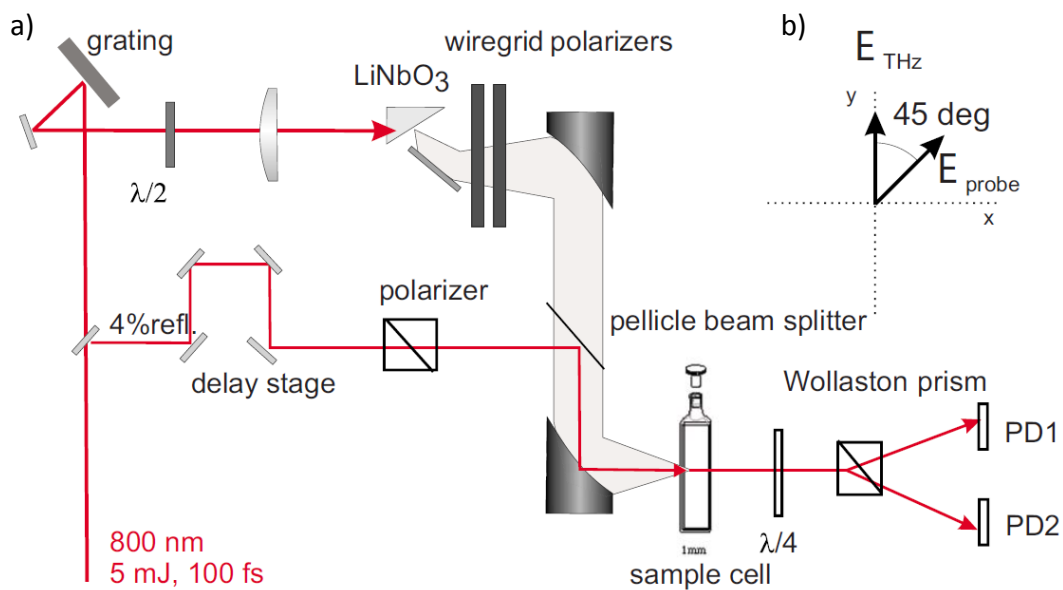
Notre choix d'analyser et de caractériser la dynamique temporelle de l'effet Kerr THz dans des cristaux de structure zinc-blende s'inscrit dans la lignée des expériences qui ont déjà été réalisées sur ce sujet. Nous les détaillerons dans le paragraphe suivant. De plus, l'un des nombreux intérêts des études d'optique non-linéaire effectuées dans le domaine THz est de mettre en évidence le comportement, sous l'effet d'un champ THz intense, de matériaux dont l'actualité n'est plus à démontrer quant à la génération ou à la détection de rayonnements THz. Il est en effet fondamental de bien comprendre les phénomènes impliqués lorsque les intensités mises en jeu sont très élevées. C'est dans cette optique que nous avons souhaité étudier l'effet Kerr induit dans des cristaux de structure zinc-blende, qui sont, comme nous l'avons vu précédemment, des matériaux électro-optiques communément utilisés, soit pour la génération, soit pour la détection d'impulsions THz. Remarquons que l'effet Kerr peut être vu comme un effet électro-optique de type quadratique, tout comme l'effet Pockels se définit comme un effet électro-optique linéaire.

Nous nous attacherons donc, en premier lieu, à détailler les expériences d'effet Kerr THz qui

ont précédé ce travail, puis à décrire les autres phénomènes non-linéaires induits par un champ THz, qui ont été spécifiquement observés dans des cristaux de type zinc-blende. Cet état de l'art nous permettra finalement de justifier le choix de ces matériaux pour les expériences d'effet Kerr THz réalisées au cours de cette thèse.

#### 4.1.1 Effet Kerr THz : état de l'art

En 2009, Hoffmann *et al.* ont induit pour la première fois un effet Kerr THz dans différents liquides en utilisant des impulsions monocycles THz intenses [182]. Ces impulsions, dont le champ électrique excédait  $100 \text{ kV.cm}^{-1}$ , étaient produites au sein d'un cristal de  $\text{LiNbO}_3$  par la méthode de l'inclinaison du front de l'impulsion (voir le chapitre 1). Elles étaient ensuite focalisées dans l'échantillon, dont elles modifiaient l'indice de réfraction. Ce changement était détecté à l'aide d'une impulsion sonde polarisée linéairement et à  $45^\circ$  du champ THz, ceci afin de maximiser l'effet de la biréfringence sur le champ sonde. Le dispositif expérimental est représenté à la figure 4.1.



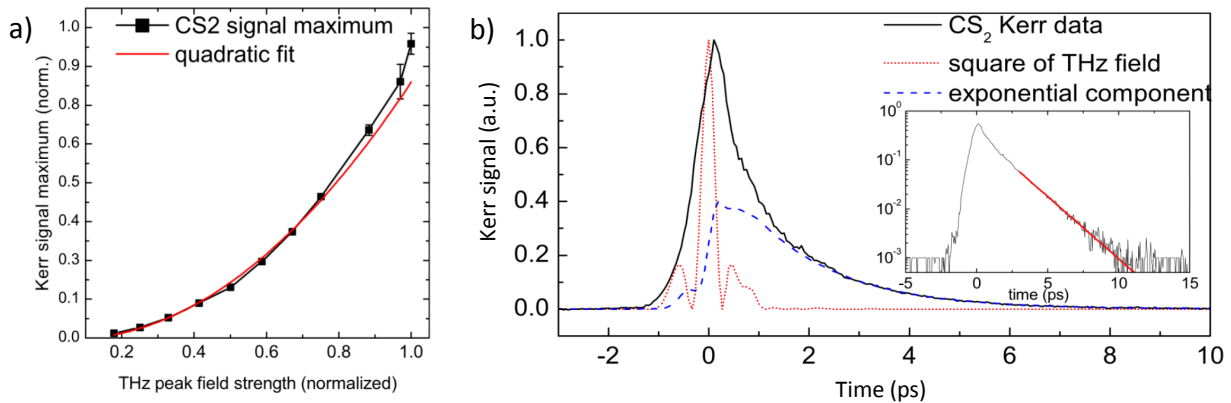
**FIGURE 4.1** – a) Dispositif expérimental utilisé par Hoffmann *et al.* pour étudier l'effet Kerr induit par une impulsion THz intense dans des liquides. La figure est tirée de [182]. b) Le champ THz et le champ sonde sont polarisés linéairement et à  $45^\circ$  l'un de l'autre à l'entrée de la cellule contenant l'échantillon.

Les auteurs ont ainsi pu démontrer que le maximum du signal mesuré était proportionnel au carré du champ électrique THz,  $E_{\text{THz}}^2$ , ce qui confirmait leur assertion d'un effet Kerr induit par ce dernier (voir la figure 4.2-a)). Connaissant la valeur du déphasage induit par le champ THz, qu'ils ont mesuré à l'aide d'un triplet lame quart d'onde - prisme de Wollaston - photodiodes balancées, ils ont pu en déduire les valeurs de l'indice de réfraction non-linéaire,  $n_2^I$ , et du tenseur de susceptibilité du troisième ordre  $\chi^{(3)}(2\Omega \pm \omega; \Omega, \Omega, \pm \omega)$ , où  $\Omega$  est la pulsation centrale de l'impulsion THz, et  $\omega$  celle de la sonde. Rappelons, par ailleurs, que les liquides étudiés par Hoffman *et al.* sont centrosymétriques, *i.e.* ils ont une susceptibilité non-linéaire du second ordre  $\chi^{(2)}$  nulle : ceci facilite la détection de l'effet Kerr, dans le sens où toute contribution qui serait due à l'effet Pockels

est éliminée. De plus, l'évolution temporelle du phénomène a pu être mise en évidence : elle révèle l'existence de deux réponses distinctes du matériau à l'excitation THz. La première, instantanée, est due au réarrangement des électrons appartenant aux molécules, alors que la seconde, beaucoup plus lente, correspond à l'alignement des molécules du liquide le long de la direction du champ électrique appliqué. La figure 4.2-b) présente un exemple de ces deux dynamiques pour le sulfure de carbone CS<sub>2</sub>. Les auteurs ont, enfin, modélisé la biréfringence  $\Delta n$  induite par l'effet Kerr THz sous la forme :

$$\Delta n(\tau) = n_2^e \cdot E_{\text{THz}}^2(\tau) + \frac{n_2^o}{\tau_o} \int_{-\infty}^t E_{\text{THz}}^2(t) \cdot \exp\left(\frac{-(t-\tau)}{\tau_o}\right) dt, \quad (4.3)$$

où  $\tau$  est le retard entre les impulsions THz et sonde,  $n_2^e$  et  $n_2^o$  correspondent respectivement aux contributions électronique et moléculaire,  $\tau_o$  étant le temps de relaxation associé à cette dernière contribution. L'ajustement des dynamiques expérimentales par l'équation (4.3) (voir la figure 4.2-b)) leur ont finalement permis de mesurer non seulement les temps de relaxation  $\tau_0$  associés aux échantillons, mais aussi les valeurs de l'indice de réfraction non-linéaire et la susceptibilité du troisième ordre associée. Celles-ci sont rappelées à la fin de ce chapitre, dans le tableau 4.1.

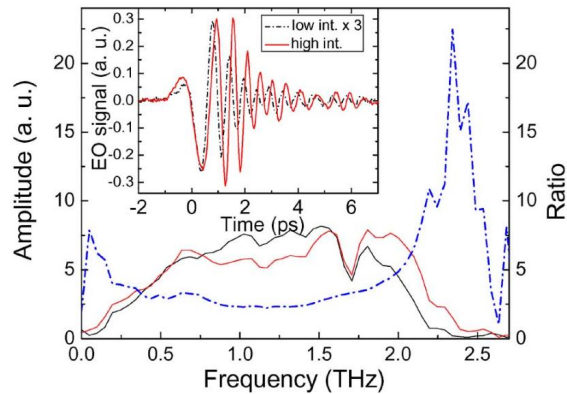


**FIGURE 4.2** – Figures extraites de la référence [182] pour le sulfure de carbone CS<sub>2</sub> : a) Évolution du maximum du signal Kerr en fonction de l'amplitude du champ THz. La courbe d'ajustement quadratique est tracée en rouge. b) Dynamique du signal Kerr en fonction du retard  $\tau$  entre les impulsions sonde et THz, en noir. Le champ THz mis au carré, mesuré expérimentalement par effet Pockels, est superposé à la courbe, en pointillés rouges. La courbe en pointillés bleus provient d'un ajustement effectué à partir de l'équation (4.3). L'encart présente les mêmes données, tracées en échelle logarithmique, avec l'ajustement exponentiel en rouge, permettant de mesurer une constante de temps  $\tau_o$  égale à 1.7 ps pour le CS<sub>2</sub>.

Ainsi, ce travail fondamental sur l'effet Kerr THz a permis d'obtenir pour la première fois des informations sur les coefficients non-linéaires du troisième ordre de plusieurs liquides dans le domaine THz, ainsi que sur la dynamique temporelle de l'orientation des molécules les constituant. Il a été suivi de plusieurs autres études, effectuées dans des milieux isotropes comme certains ferroélectriques, pour lesquels le champ THz excite directement les modes de vibration polaires [183], ou les verres de chalcogénure, dont la réponse à l'excitation THz est de nature quasi-instantanée, en l'absence de résonances spécifiques dans le domaine THz (indice de réfraction presque constant entre 0.2 et 1 THz) [184].

Par ailleurs, l'existence d'un processus d'auto-modulation de phase, découlant de l'effet Kerr THz, a été démontrée lors de la génération d'impulsions THz intenses par la technique de l'incli-

raison du front de l'impulsion, mise en œuvre dans un cristal de  $\text{LiNbO}_3$  pompé à 800 nm [28, 185]. Selon l'intensité du faisceau optique de pompe, le spectre des impulsions THz générées était modulé. La figure 4.3 est tirée de la référence [28] et montre le profil temporel des impulsions THz, mesuré respectivement pour une faible et pour une forte intensité du faisceau pompe. Le profil spectral, obtenu par transformation de Fourier, montre clairement la création de fréquences supplémentaires sur les deux ailes du spectre de l'impulsion THz, ce qui est typique de l'auto-modulation de phase. Le rapport des deux spectres (en bleu) confirme l'élargissement spectral. L'indice de réfraction non-linéaire associé au phénomène a également été calculé par les auteurs. De même, l'auto-modulation de phase d'une impulsion THz a été démontrée dans de l'arséniure de gallium dopé  $n$  [26].



**FIGURE 4.3** – Figure extraites de la référence [28]. Profils temporels et spectraux d'une impulsion THz générée par redressement optique dans un cristal de  $\text{LiNbO}_3$ , mesurés pour un faisceau pompe de faible (en noir) ou forte intensité (en rouge). La courbe en pointillés bleus correspond au rapport entre les deux profils spectraux.

L'effet Kerr THz a donc déjà été étudié dans un certain nombre de matériaux, et certaines de ces conséquences également, telles que l'auto-modulation de phase dans un cristal de  $\text{LiNbO}_3$ . Celle-ci ayant des effets non négligeables sur les caractéristiques temporelles et spectrales du faisceau THz généré par rectification optique dans le matériau, il est légitime de s'interroger sur l'existence de ce type de procédés au sein d'autres cristaux, également utilisés pour la génération ou la détection THz. En l'occurrence, notre choix s'est porté sur les cristaux de structure zinc-blende, comme le GaP. Avant de nous intéresser spécifiquement au processus non-linéaire du troisième ordre de l'effet Kerr THz, nous présenterons ici un rapide panorama - non exhaustif - des différents effets non-linéaires du même ordre qui ont déjà été démontrés dans les cristaux de ce type. Dans cette partie, nous ne reviendrons pas sur les non-linéarités d'ordre 2, sauf dans le cas des effets de cascade, équivalents à des effets du troisième ordre.

#### 4.1.2 Procédés non-linéaires du troisième ordre, induits par un champ THz dans des cristaux de type zinc-blende.

Les cristaux de structure  $\bar{4}3m$  sont naturellement isotropes et ne possèdent pas de biréfringence naturelle. Cependant, lorsqu'on leur applique un champ électrique externe suffisamment intense,

---

plusieurs types de biréfringence induite peuvent apparaître, aux origines diverses. On pourra se référer à [171, 186–188] pour plus de détails.

Si l'on ne considère que les termes du troisième ordre, ils se divisent en plusieurs contributions : les non-linéarités intrinsèques du troisième ordre, et celles provoquées lors de la cascade de deux effets non-linéaires du second ordre. Comme on l'a vu dans le chapitre précédent, ceux-ci peuvent en effet imiter des effets du troisième ordre. Par exemple, en 2002, Caumes *et al.* ont démontré que, lors de la propagation d'une impulsion intense, centrée à 800 nm, dans un cristal de ZnTe, le champ THz généré par le redressement optique de cette dernière pouvait induire un effet Pockels dans le milieu et modifier son indice de réfraction [171]. D'autres études également consacrées au même sujet ont suivi ce travail quelques années plus tard [187, 188].

Cette biréfringence induite par un effet de cascade dû au champ THz,  $n_2^{\text{THz}}$ , entre en compétition avec l'indice Kerr,  $n_2^{\text{Kerr}} \propto I_p$ , dû à la non-linéarité du troisième ordre intrinsèque au cristal.  $I_p$  est ici l'intensité du champ optique de pompe incident sur le matériau. Les auteurs ont également montré qu'il est possible de contrôler le signe et l'amplitude de  $n_2^{\text{THz}}$ , et donc de l'utiliser pour éventuellement compenser, réduire ou augmenter la contribution Kerr,  $n_2^{\text{Kerr}}$ . Notons que, pour mesurer la biréfringence induite par la cascade du redressement optique et de l'effet Pockels, Caumes *et al.* ont utilisé un montage d'effet Kerr optique hétérodyne résolu en temps [165], alors que He *et al.* ont mis en œuvre la technique du Z-scan [187], et ce pour différentes orientations de cristaux de ZnTe. He *et al.* ont ainsi pu mettre en évidence la dépendance angulaire de l'indice de réfraction  $n_2^{\text{THz}}$ , et en déduire que, pour un cristal taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  et pompé sous incidence normale par le faisceau optique, la biréfringence observée est uniquement liée à la non-linéarité Kerr,  $n_2^{\text{Kerr}}$ . Ceci est en accord avec les travaux de Zhang *et al.* effectués auparavant, qui ont démontré que la polarisation non-linéaire du second ordre, associée au redressement optique d'une impulsion pompe en incidence normale sur un cristal taillé selon la direction  $\langle 100 \rangle$ , est nulle [189]. Les effets de cascade d'ordre deux y sont donc également inexistantes.

Dans un tel cristal, taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$ , nous pouvons donc noter que :

- d'une part, il n'y aura pas de génération THz si un faisceau optique de pompe est injecté dans le matériau ;
- d'autre part, l'effet Pockels est également absent lorsqu'un champ THz et un champ optique s'y propagent ensemble.

Ainsi, dans les cristaux de type zinc-blende, l'orientation  $\langle 100 \rangle$  apparaît comme extrêmement avantageuse pour l'étude d'un éventuel effet Kerr THz, puisque toute autre contribution induite par le champ THz impactant le matériau en incidence normale peut être *a priori* éliminée.

Par ailleurs, en 2007, Shen *et al.* ont étudié la modulation de phase croisée induite par un champ THz sur une onde optique se propageant simultanément au travers d'un cristal de ZnTe [147]. En effet, au cours de sa propagation dans le milieu et du fait de la durée temporelle très courte de l'impulsion sonde face à celle de l'impulsion THz, la première peut interagir avec des parties différentes de la seconde, en fonction du décalage temporel imposé entre elles. Ainsi, un champ THz de très forte amplitude, égale à  $400 \text{ kV.cm}^{-1}$ , peut modifier la forme temporelle, le spectre et la phase de l'impulsion optique de faible amplitude qui se propage avec lui [37]. Cette dernière modification peut résulter, soit en une focalisation, soit en une défocalisation du faisceau optique, selon le signe du champ THz.

---

Enfin, en 2009, Chen *et al.* se sont intéressés aux effets non-linéaires ayant lieu dans un cristal de ZnTe taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$  [190]. Dans cette étude, le cristal était utilisé comme émetteur de l'onde THz par redressement optique, et deux unités de détection distinctes permettaient de mesurer les modulations d'amplitude et de phase du faisceau sonde se propageant simultanément avec l'impulsion THz dans le matériau. Le fait que le matériau soit à la fois pompé et sondé à la même longueur d'onde impliquait donc non seulement que l'amplitude du faisceau sonde puisse être légèrement modifiée, du fait des porteurs générés par la pompe lors du processus non-linéaire d'absorption à deux photons, mais, en outre, que son changement de polarisation, induit par le champ THz et mesuré par la technique de z-scan, puisse être dû à des effets non-linéaires d'ordre 3 ou équivalent, comme l'effet Kerr THz et une éventuelle cascade d'effets non-linéaires  $\chi^{(2)}.\chi^{(2)}$ . Au total, au moins trois effets non-linéaires sont donc *a priori* présents au même instant et modifient l'état de polarisation et l'amplitude du faisceau sonde. L'extraction de chacun d'entre eux relève donc d'un processus très complexe. On se reportera à la référence [190] pour plus de détails.

Bien au contraire, l'utilisation d'un cristal électro-optique coupé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  peut permettre, comme on l'a vu précédemment, de faire abstraction de la biréfringence induite par l'effet Pockels. Pour cette orientation cristallographique particulière, le déphasage par unité de longueur induit par l'effet Pockels,  $\Gamma$ , est nul (voir la section 1.4.5). De même, l'absence de génération THz dans un tel cristal implique également l'absence de biréfringence due aux effets de cascade d'ordres deux. La biréfringence éventuellement visible sera donc *a priori* uniquement due à l'effet Kerr THz.

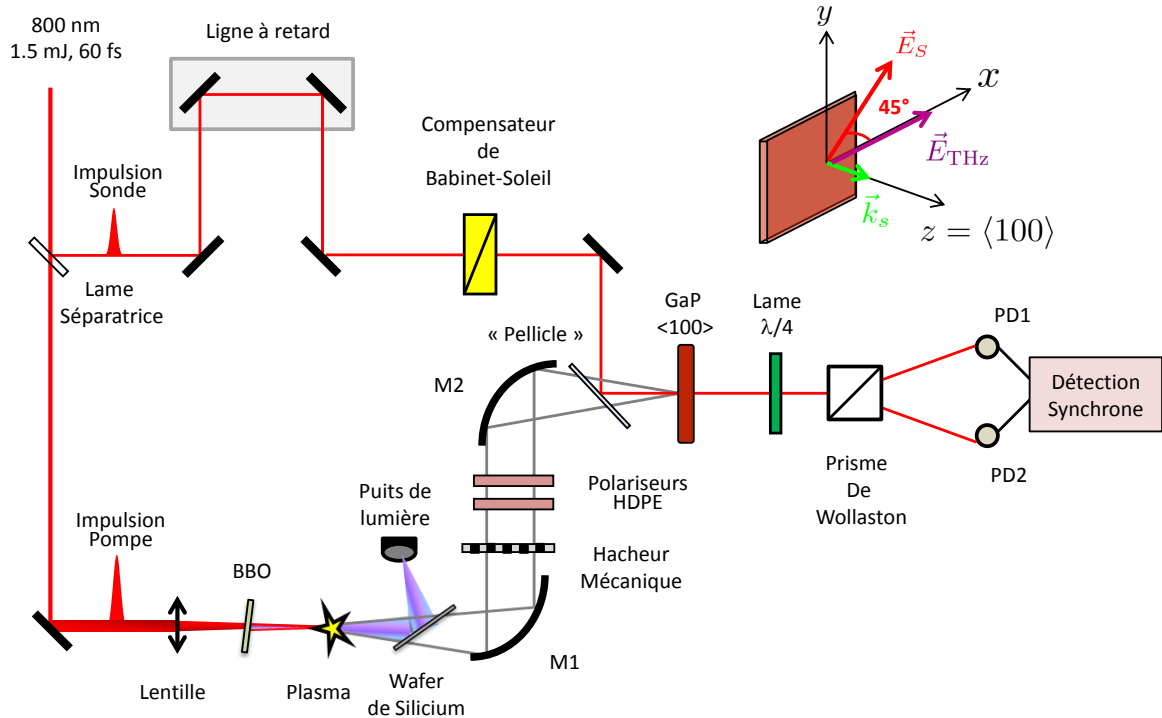
Pour nous en assurer, nous proposons d'utiliser des cristaux de GaP de différentes épaisseurs ( $L_c = 300 \mu\text{m}$  et  $1 \text{ mm}$ ), taillés selon la direction  $\langle 100 \rangle$ . Par ailleurs, les cristaux étant, en règle générale, des milieux plus denses que les verres ou les liquides, nous pouvons supposer que le GaP offrira une susceptibilité non-linéaire d'ordre 3 supérieure d'environ un ordre de grandeur à celle des matériaux susnommés, comme c'est le cas dans le domaine des micro-ondes [118]. Cependant, au contraire de ceux-ci, la réponse non-linéaire du cristal, de structure cubique, dépendra de la direction de polarisation de l'onde THz incidente.

L'étude en intensité, nécessaire pour s'assurer de la dépendance quadratique du signal en fonction de l'amplitude THz, sera donc accompagnée d'une étude angulaire et d'une modélisation du résultat. Nous allons à présent décrire le dispositif expérimental utilisé pour caractériser l'effet Kerr THz dans les cristaux de type zinc-blende.

## 4.2 Description du dispositif expérimental

Nous présentons sur la figure 4.4 le dispositif expérimental mis en place pour étudier l'effet Kerr induit par un champ THz intense dans des cristaux de GaP. Les impulsions THz intenses, polarisées linéairement et horizontalement, sont générées à partir de la source de rayonnement THz basée sur le plasma, décrite au chapitre 1, puis acheminées jusqu'au cristal de GaP à l'aide de deux miroirs paraboliques hors-axe. Deux polariseurs en polyéthylène haute densité sont également placés sur le trajet du faisceau THz, afin de pouvoir contrôler son amplitude et sa polarisation et effectuer l'étude en intensité du signal mesuré. En parallèle, une ligne à retard permet de décaler temporellement l'impulsion sonde par rapport à l'onde THz. Pour maximiser l'effet Kerr, la direction de polarisation du faisceau sonde est inclinée de  $45^\circ$  par rapport à celle du champ THz





**FIGURE 4.4** – Dispositif expérimental pour l’étude de l’effet Kerr THz dans un cristal de GaP taillé selon l’axe  $\langle 100 \rangle$ . M1 et M2 : miroirs paraboliques hors-axe. PD1 et PD2 : photodiodes balancées. Les polariseurs THz sont fabriqués en polyéthylène haute densité (HDPE). Le schéma situé en haut à droite montre la configuration géométrique des polarisations des faisceaux pompe et THz à l’entrée du cristal de GaP, qui se propagent en incidence normale selon l’axe  $\langle 100 \rangle$ .

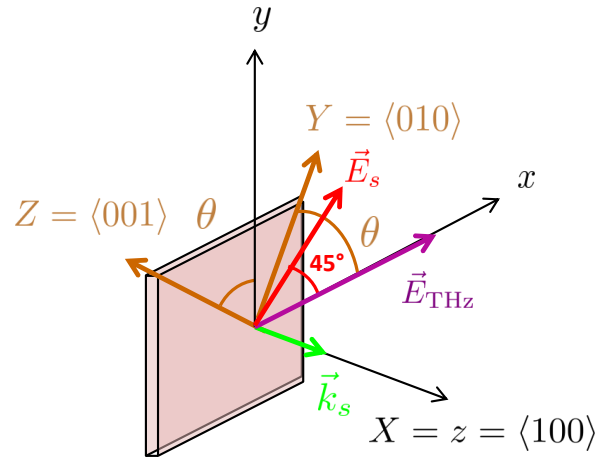
(voir l’encart de la figure 4.4). Le faisceau sonde est ensuite réfléchi par un film transparent au rayonnement THz, dit « pellicle », pour être injecté dans le cristal. Celui-ci dépolarise faiblement l’impulsion sonde lors de la réflexion, nous avons donc utilisé un compensateur de Babinet-Soleil, situé en amont, qui joue le rôle d’une lame demi-onde tout en corrigeant la dépolarisation de l’onde sonde induite par le « pellicle ».

La détection du déphasage induit par l’effet Kerr THz sur l’impulsion sonde est ensuite effectuée à l’aide d’une lame quart d’onde, d’un prisme de Wollaston et d’un système de deux photodiodes équilibrées et reliées à une détection synchrone. Notons que le prisme de Wollaston et les photodiodes ont été tournés d’un angle de  $45^\circ$  par rapport à la direction du champ THz. En parallèle, une détection électro-optique conventionnelle, effectuée en remplaçant simplement l’échantillon par un cristal de GaP de longueur  $200 \mu\text{m}$  et taillé selon l’axe  $\langle 110 \rangle$ , permet de mesurer la forme temporelle, l’amplitude et le spectre de l’impulsion THz. Enfin, la présence d’un hacheur mécanique sur le trajet du faisceau THz, fonctionnant à une fréquence égale à  $500 \text{ Hz}$ , permet d’améliorer le rapport signal sur bruit, en modulant expressément les processus liés au champ THz.

## 4.3 Modèle théorique de l'effet Kerr THz dans un cristal zinc-blende

Avant de détailler les résultats expérimentaux obtenus dans ce travail, nous présentons une analyse théorique de la dynamique temporelle de l'effet Kerr THz, que nous avons calculée pour un cristal de structure zinc-blende. De plus, ce modèle nous permettra d'exprimer la dépendance angulaire de l'effet Kerr THz, en fonction de l'angle  $\theta$  que fait l'axe principal du cristal  $\langle 010 \rangle$  avec la direction du champ THz (voir la figure 4.5). Nous confronterons ensuite les résultats de notre modèle avec les observations issues de l'expérience réalisée dans le GaP.

### 4.3.1 Expression des champs électriques à l'entrée du cristal



**FIGURE 4.5** – Orientation des polarisations des faisceaux THz et sonde à l'entrée du cristal. Ceux-ci se propagent en incidence normale, selon l'axe  $\langle 100 \rangle$ . L'angle  $\theta$  est défini entre l'axe principal du cristal  $\langle 010 \rangle$  et la direction  $\vec{e}_x$ .

Une onde en incidence normale sur le cristal se propage selon la direction  $\vec{e}_X = \vec{e}_z = \langle 100 \rangle$ . Sur la figure 4.5, le repère du laboratoire est associé au trièdre  $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  et le repère cristallographique est, quant à lui, défini par le trièdre  $(\vec{e}_X, \vec{e}_Y, \vec{e}_Z)$ . La correspondance entre les deux repères est donnée par les expressions :

$$\begin{cases} \vec{e}_X = \vec{e}_z \\ \vec{e}_Y = \cos \theta \cdot \vec{e}_x + \sin \theta \cdot \vec{e}_y \\ \vec{e}_Z = -\sin \theta \cdot \vec{e}_x + \cos \theta \cdot \vec{e}_y \end{cases} \quad (4.4)$$

et

$$\begin{cases} \vec{e}_x = \cos \theta \cdot \vec{e}_Y - \sin \theta \cdot \vec{e}_Z \\ \vec{e}_y = \sin \theta \cdot \vec{e}_Y + \cos \theta \cdot \vec{e}_Z \\ \vec{e}_z = \vec{e}_X \end{cases} \quad (4.5)$$

Nous définissons respectivement les champs THz et sonde, de pulsation centrale  $\Omega$  et  $\omega_s$ , par les expressions :

$$\vec{E}_{\text{THz}}(t, z) = \frac{1}{2} [E_{\Omega}(t, z) + E_{-\Omega}(t, z)] \cdot \vec{e}_x = E_{\text{THz}}(t, z) \cdot \vec{e}_x. \quad (4.6)$$

et

$$\vec{E}_s(t, z) = \frac{1}{2} \left[ \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot e^{-i\omega_s t} + \vec{E}_{-\omega_s}(t, z) \cdot e^{i\omega_s t} \right], \quad (4.7)$$

avec, comme les champs sont réels :

$$E_{\Omega}(t, z) = E_{-\Omega}^*(t, z),$$

et

$$\vec{E}_{\omega_s}(t, z) = \vec{E}_{-\omega_s}^*(t, z),$$

où l'étoile désigne le complexe conjugué.

De plus, on a, dans le repère du laboratoire :

$$\vec{E}_{\omega_s}(t, z) = \frac{E_{\omega_s}(t, z)}{\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_x + \frac{E_{\omega_s}(t, z)}{\sqrt{2}} \cdot \vec{e}_y = E_{\omega_s, x}(t, z) \cdot \vec{e}_x + E_{\omega_s, y}(t, z) \cdot \vec{e}_y.$$

Remarquons que, par soucis de simplicité, nous considérerons que le faisceau sonde est constitué d'ondes planes. Les composantes du champ sonde dans le repère du cristal s'écrivent alors sous la forme :

$$E_{\omega_s, \mu}(t, z) = \mathcal{E}_{s, \mu}(t, z) e^{ik_s z} \quad (4.8)$$

où  $\mu = x, y$ ,  $\mathcal{E}_{s, \mu}(t, z)$  est l'enveloppe de l'impulsion et  $k_s$  son vecteur d'onde.

Le passage dans le repère du cristal à l'aide des équations (4.4) donne, pour le champ THz :

$$\vec{E}_{\text{THz}} = E_{\text{THz}}(t, z) \cdot [\cos \theta \cdot \vec{e}_Y - \sin \theta \cdot \vec{e}_Z] = E_{\text{THz}, Y}(t, z) \cdot \vec{e}_Y + E_{\text{THz}, Z}(t, z) \cdot \vec{e}_Z$$

et, pour le champ sonde :

$$\begin{aligned} \vec{E}_{\omega_s} &= \frac{E_{\omega_s}(t, z)}{\sqrt{2}} \cdot (\cos \theta + \sin \theta) \cdot \vec{e}_Y + \frac{E_{\omega_s}(t, z)}{\sqrt{2}} \cdot (\cos \theta - \sin \theta) \cdot \vec{e}_Z \\ &= E_{\omega_s, Y}(t, z) \cdot \vec{e}_Y + E_{\omega_s, Z}(t, z) \cdot \vec{e}_Z \end{aligned}$$

Enfin, le champ électrique total au sein du milieu est donné par l'expression :

$$\vec{E}(t, z) = \vec{E}_{\text{THz}} + \vec{E}_s(t, z) = \frac{1}{2} \left[ \vec{\mathcal{E}}_s(t, z) e^{i(k_s z - \omega_s t)} + c.c. + \vec{E}_{\Omega}(t, z) + c.c. \right], \quad (4.9)$$

où *c.c.* désigne le complexe conjugué, ou encore :

$$\vec{E}(t, z) = \frac{1}{2} \left[ \vec{E}_{\omega_s}(t, z) e^{-i\omega_s t} + c.c. + \vec{E}_{\Omega}(t, z) + c.c. \right]. \quad (4.10)$$

Une fois l'expression du champ total obtenue dans le repère du cristal, il devient possible de calculer chaque composante de la polarisation du troisième ordre  $\vec{P}_s^{(3)}(t, z)$  associée à l'effet Kerr THz. Celle-ci sera ensuite intégrée dans le second membre de l'équation de propagation du champ sonde, établie dans l'annexe A, ce qui nous permettra d'obtenir l'expression du champ sonde à la sortie du cristal et d'en déduire l'expression du déphasage induit par l'effet Kerr THz.

### 4.3.2 Expression de la polarisation associée à l'effet Kerr THz

Intéressons-nous tout d'abord à la polarisation non-linéaire totale du troisième ordre. Sous forme tensorielle, celle-ci s'écrit, selon [142] :

$$\begin{aligned} \vec{P}_s^{(3)}(t, z) = & \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_3 \\ & * \hat{R}^{(3)}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) : \vec{E}(\tau_1, z) \vec{E}(\tau_2, z) \vec{E}(\tau_3, z), \end{aligned} \quad (4.11)$$

où la fonction réponse  $\hat{R}^{(3)}$  est simplement la transformée de Fourier inverse de la susceptibilité non-linéaire  $\hat{\chi}^{(3)}$  :

$$\hat{R}^{(3)}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\chi}^{(3)}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (4.12)$$

Compte-tenu des fréquences apparaissant dans l'expression du champ total (voir l'équation (4.10)), la polarisation non-linéaire,  $\vec{P}_s^{(3)}$ , rassemble des composantes de pulsation  $3\Omega$ ,  $3\omega_s$ ,  $2\omega_s \pm \Omega$ ,  $\omega_s \pm 2\Omega$ ,  $\Omega$  et  $\omega_s$ . Or, seules celles ayant une pulsation voisine de  $\omega_s$  se révèlent intéressantes pour l'analyse de l'effet Kerr THz observé dans l'expérience présente. L'expression de la polarisation qui gouverne la propagation de l'impulsion sonde dans le cristal se réduit donc à :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{1}{2} \left[ \vec{P}_{\omega_s}^{(3)}(t, z) \cdot e^{-i\omega_s t} + c.c. + \vec{P}_{\omega_s + 2\Omega}^{(3)}(t, z) \cdot e^{-i(\omega_s + 2\Omega)t} + c.c. + \vec{P}_{\omega_s - 2\Omega}^{(3)}(t, z) \cdot e^{-i(\omega_s - 2\Omega)t} + c.c. \right].$$

Remarquons que comme  $\Omega \ll \omega_s$ , on a  $\omega_s \pm 2\Omega \approx \omega_s$  et  $k(\omega_s \pm 2\Omega) \approx k(\omega_s) = k_s$ . L'expression précédente peut donc se simplifier en :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{1}{2} \left\{ \vec{P}_{\omega_s}^{(3)}(t, z) + \vec{P}_{\omega_s + 2\Omega}^{(3)}(t, z) + \vec{P}_{\omega_s - 2\Omega}^{(3)}(t, z) \right\} \cdot e^{-i\omega_s t} + c.c. \quad (4.13)$$

Par la suite, en s'inspirant de l'expression 4.8, on pose :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \vec{\mathcal{P}}_s^{(3)}(t, z) e^{ik_s z}. \quad (4.14)$$

Si l'on injecte enfin l'expression du champ total (4.10) dans l'équation (4.11), tout en ne conservant que les termes indiqués ci-dessus, la polarisation non-linéaire associée à l'effet Kerr THz devient :

$$\begin{aligned} \vec{P}_s^{(3)}(t, z) = & \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_3 \\ & * \hat{R}^{(3)}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) : \vec{E}_{\text{THz}}(\tau_1, z) \vec{E}_{\text{THz}}(\tau_2, z) \vec{E}_s(\tau_3, z). \end{aligned} \quad (4.15)$$

On suppose ici qu'on est loin de toutes les résonances vibrationnelles, et que la réponse du milieu,  $\hat{R}^{(3)}$ , est purement électronique et instantanée : l'ordre de grandeur de son temps caractéristique est de la dizaine de femtosecondes, ce qui est très court devant la durée de l'impulsion THz, d'une durée de quelques picosecondes. Par ailleurs, l'intensité de la sonde étant trop faible pour produire un effet non-linéaire additionnel, sa contribution à  $\hat{R}^{(3)}$  peut être réduite à un Dirac. Finalement, la fonction réponse devient :

$$\hat{R}^{(3)}(t - \tau_1, t - \tau_2, t - \tau_3) = \delta(t - \tau_1) \cdot \delta(\tau_1 - \tau_2) \cdot \delta(t - \tau_3) \cdot \hat{R}^{(3)}.$$

et la polarisation devient donc :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \epsilon_0 \hat{R}^{(3)} : \vec{E}_{\text{THz}}(t, z) \cdot \vec{E}_{\text{THz}}(t, z) \vec{E}_s(t, z),$$

ou encore, en projection sur les axes du repère du cristal :

$$P_{s,i}^{(3)}(t, z) = \epsilon_0 \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \cdot E_{s,j}(t, z) \cdot E_{\text{THz},k}(t, z) \cdot E_{\text{THz},l}(t, z). \quad (4.16)$$

où les  $R_{ijkl}^{(3)}$  sont les coefficients du tenseur de la fonction réponse du milieu,  $\hat{R}^{(3)}$ , avec  $i, j, k$  et  $l = X, Y$  ou  $Z$ .

Le tenseur  $\hat{R}^{(3)}$  est symétrique vis à vis des permutations  $(j, \tau_1)$ ,  $(k, \tau_2)$  et  $(l, \tau_3)$  [142]. Si l'on insère les expressions des champs THz et sonde dans l'équation précédente, on obtient donc, pour chaque terme de l'équation (4.13) :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_{\omega_s, i}^{(3)}(t, z) = \epsilon_0 K(-\omega_s; \omega_s, \Omega, -\Omega) \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \cdot E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}(t, z) \cdot E_{\Omega, l}^*(t, z) \\ P_{\omega_s + 2\Omega, i}^{(3)}(t, z) = \epsilon_0 K(-(\omega_s + 2\Omega); \omega_s, \Omega, \Omega) \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \cdot E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}(t, z) \cdot E_{\Omega, l}(t, z) \\ P_{\omega_s - 2\Omega, i}^{(3)}(t, z) = \epsilon_0 K(-(\omega_s - 2\Omega); \omega_s, -\Omega, -\Omega) \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \cdot E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}^*(t, z) \cdot E_{\Omega, l}^*(t, z), \end{array} \right. \quad (4.17)$$

où l'on rappelle que  $K$  est donné par l'expression (2.10) :

$$K(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) = 2^{l+m+n} \cdot p,$$

avec  $p$  le nombre distinct de permutations de  $\omega_1, \dots, \omega_n$ ,  $n$  l'ordre de la non-linéarité,  $l = 1$  si  $\omega_\sigma = 0$  et  $l = 0$  sinon, et enfin  $m$  égal au nombre de champs continus. Dans le cas présent, on a donc  $n = 3$ ,  $m = 0$  et  $l = 0$ . De plus, si  $\omega_\sigma = \omega_s$ , il y a six permutations distinctes de  $\omega_s, \Omega$  et  $-\Omega$ , soit  $K = \frac{3}{2}$ . De même, si  $\omega_\sigma = \omega_s \pm 2\Omega$ , il y a trois permutations distinctes de  $\omega_s, \pm\Omega$  et  $\pm\Omega$ , soit  $K = \frac{3}{4}$ .

Finalement, la composante  $i$  de la polarisation totale s'écrit, dans le repère du cristal :

$$\begin{aligned} P_{s,i}^{(3)}(t, z) &= P_{\omega_s, i}^{(3)}(t, z) + P_{\omega_s + 2\Omega, i}^{(3)}(t, z) + P_{\omega_s - 2\Omega, i}^{(3)}(t, z) \\ &= \epsilon_0 \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \cdot \left[ \frac{3}{2} E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}(t, z) \cdot E_{\Omega, l}^*(t, z) \right. \\ &\quad \left. + \frac{3}{4} E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}(t, z) \cdot E_{\Omega, l}(t, z) + \frac{3}{4} E_{\omega_s, j}(t, z) \cdot E_{\Omega, k}^*(t, z) \cdot E_{\Omega, l}^*(t, z) \right]. \end{aligned} \quad (4.18)$$

En revenant à l'écriture tensorielle, cette expression peut se simplifier sous la forme :

$$\begin{aligned} \vec{P}_s^{(3)}(t, z) &= \epsilon_0 \hat{R}^{(3)} : \left[ \frac{3}{2} \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}^*(t, z) \right. \\ &\quad \left. + \frac{3}{4} \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}(t, z) + \frac{3}{4} \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}^*(t, z) \cdot \vec{E}_{\Omega}^*(t, z) \right], \end{aligned}$$

soit :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0\hat{R}^{(3)} : \left[ \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega(t, z) + \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega^*(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega^*(t, z) \right. \\ \left. + \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega^*(t, z) + \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega^*(t, z) \cdot \vec{E}_\Omega(t, z) \right],$$

ce qui se simplifie finalement en :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0\hat{R}^{(3)} : \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \cdot \left\{ \vec{E}_\Omega(t, z) + \vec{E}_\Omega^*(t, z) \right\} \cdot \left\{ \vec{E}_\Omega(t, z) + \vec{E}_\Omega^*(t, z) \right\}. \quad (4.19)$$

La polarisation totale peut donc s'écrire sous la forme tensorielle :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0\hat{R}^{(3)} : \vec{E}_{\omega_s}(t, z) \vec{E}_{\text{Pu}}(t, z) \vec{E}_{\text{Pu}}(t, z), \quad (4.20)$$

où l'on a introduit le terme  $\vec{E}_{\text{Pu}}(t, z) = 2\vec{E}_{\text{THz}}(t, z) = \vec{E}_\Omega(t, z) + \vec{E}_\Omega^*(t, z)$ . L'équation précédente devient alors :

$$\vec{P}_s^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0\hat{R}^{(3)} : \vec{\mathcal{E}}_s(t, z) \vec{E}_{\text{Pu}}(t, z) \vec{E}_{\text{Pu}}(t, z), \quad (4.21)$$

soit, pour chaque composante  $i$  dans le repère du cristal :

$$\vec{P}_{s,i}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \sum_{j,k,l} R_{ijkl}^{(3)} \vec{\mathcal{E}}_{s,j}(t, z) \vec{E}_{\text{Pu},k}(t, z) \vec{E}_{\text{Pu},l}(t, z). \quad (4.22)$$

Cette équation traduit le fait que le faisceau THz intense modifie les propriétés du milieu et que ce changement est sondé par le champ électrique du faisceau optique. Par ailleurs, les cristaux étudiés ayant un groupe de symétrie  $\bar{4}3m$ , leur tenseur de susceptibilité d'ordre trois ne comporte que quatre éléments indépendants et non nuls [142]. On pourra se reporter pour plus de détails à la section 3.4.1, et l'on définit, dans le cas de l'effet Kerr THz :

$$\begin{cases} a = R_{iiii}^{(3)} \\ b = R_{ijji}^{(3)} = R_{ijji}^{(3)} = R_{ijij}^{(3)}. \end{cases} \quad (4.23)$$

Remplaçons maintenant dans l'équation (4.22) les expressions des champs électriques sonde et THz, obtenues au paragraphe précédent. On obtient alors, pour chacune des composantes de la polarisation non-linéaire dans le repère du cristal :

$$\begin{cases} \mathcal{P}_{s,X}^{(3)}(t, z) = 0, \\ \mathcal{P}_{s,Y}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{2\sqrt{2}} \cdot \epsilon_0 \cdot \mathcal{E}_{s,Y}(t, z) \cdot I_{\text{Pu}}(t, z) \\ \quad \times \left\{ (a \cos^2 \theta + b \sin^2 \theta) \cdot (\cos \theta + \sin \theta) - b \sin(2\theta) \cdot (\cos \theta - \sin \theta) \right\}, \\ \mathcal{P}_{s,Z}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{2\sqrt{2}} \cdot \epsilon_0 \cdot \mathcal{E}_{s,Z}(t, z) \cdot I_{\text{Pu}}(t, z) \\ \quad \times \left\{ (a \sin^2 \theta + b \cos^2 \theta) \cdot (\cos \theta - \sin \theta) - b \sin(2\theta) \cdot (\cos \theta + \sin \theta) \right\}, \end{cases}$$

avec  $I_{\text{Pu}}(t, z) = 4 \cdot E_{\text{THz}}^2(t, z)$ .

Pour la suite, on pose  $u = a/b$ , et le retour dans le repère du laboratoire se fait à l'aide de l'expression (4.4). On obtient alors :

$$\begin{cases} \mathcal{P}_{s,x}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{2\sqrt{2}} \cdot \epsilon_0 \cdot \mathcal{E}_{s,x}(t, z) \cdot I_{\text{Pu}}(t, z) \cdot b \cdot \left\{ u - \frac{u-3}{2} \sin^2(2\theta) + \frac{u-3}{4} \sin(4\theta) \right\}, \\ \mathcal{P}_{s,y}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{2\sqrt{2}} \cdot \epsilon_0 \cdot \mathcal{E}_{s,y}(t, z) \cdot I_{\text{Pu}}(t, z) \cdot b \cdot \left\{ 1 + \frac{u-3}{2} \sin^2(2\theta) + \frac{u-3}{4} \sin(4\theta) \right\}, \\ \mathcal{P}_{s,z}^{(3)}(t, z) = 0. \end{cases} \quad (4.24)$$

On réécrit les deux premières expressions sous la forme :

$$\mathcal{P}_{s,\mu}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4} \cdot \epsilon_0 \cdot \delta R_{\mu\mu}(t, z) \cdot \mathcal{E}_{s,\mu}(t, z), \quad (4.25)$$

où

$$\text{et} \quad \begin{cases} \delta R_{xx}(t, z) = b \cdot \left\{ u - \frac{u-3}{2} \sin^2(2\theta) + \frac{u-3}{4} \sin(4\theta) \right\} \cdot I_{\text{Pu}}(t, z) \\ \delta R_{yy}(t, z) = b \cdot \left\{ 1 + \frac{u-3}{2} \sin^2(2\theta) + \frac{u-3}{4} \sin(4\theta) \right\} \cdot I_{\text{Pu}}(t, z). \end{cases} \quad (4.26)$$

Ce terme de polarisation non-linéaire doit maintenant être injecté comme second membre dans l'équation de propagation non-linéaire de l'onde sonde. Celle-ci sera établie dans la partie suivante.

### 4.3.3 Établissement de l'équation de propagation non-linéaire de la sonde

Si l'on se reporte à l'annexe A, l'équation de propagation non-linéaire de la sonde s'écrit, dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable et en négligeant la dispersion de la vitesse de groupe,  $v_g$ , sous la forme (A.11) :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s}{2n_s \epsilon_0 c} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(z, t'). \quad (4.27)$$

où  $t' = t - z/v_g$ .

Dans le cas présent, la polarisation non-linéaire  $\vec{P}_s^{\text{NL}}$  est simplement égale à celle du troisième ordre  $\vec{P}_s^{(3)}$  : la polarisation du second ordre est nulle, quant à elle, du fait de la coupe du cristal selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  (voir la section 1.4.5). De plus, on considère ici des ondes planes, qui se propagent uniquement selon la direction  $\vec{e}_z$ . L'équation précédente devient donc :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s}{2n_s \epsilon_0 c} \mathcal{P}_s^{(3)}(z, t'),$$

ou encore :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \mathcal{P}_s^{(3)}(z, t'). \quad (4.28)$$

Nous allons maintenant résoudre analytiquement cette équation, afin d'obtenir l'expression du déphasage induit par l'effet Kerr THz en fonction de l'angle  $\theta$  que fait la direction de polarisation du champ THz avec la direction  $\vec{e}_Y$  du cristal.

### 4.3.4 Résolution de l'équation de propagation non-linéaire : expression théorique du déphasage induit par effet Kerr THz

Nous avons établi, au paragraphe précédent, l'équation de propagation non-linéaire pour l'enveloppe de l'impulsion sonde traversant un cristal de type zinc-blende affecté par l'effet Kerr THz :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \mathcal{P}_s^{(3)}(z, t'). \quad (4.29)$$

De plus, nous rappelons ici l'expression de la polarisation non-linéaire, donnée à l'équation (4.25) en fonction de la variable  $t$  :

$$\mathcal{P}_{s,\mu}^{(3)}(t, z) = \frac{3}{4} \cdot \epsilon_0 \cdot \delta R_{\mu\mu}(t, z) \cdot \mathcal{E}_{s,\mu}(t, z),$$

où  $\delta R_{\mu\mu}(t, z)$  est proportionnel au terme  $I_{\text{Pu}}(t, z) = 4E_{\text{THz}}^2(t, z)$ . Comme le champ THz ne se propage pas à la vitesse  $v_g$  contrairement au champ sonde, le changement de variable  $t \rightarrow t'$  donne simplement :

$$\mathcal{P}_{s,\mu}^{(3)}(t', z) = \frac{3}{4} \cdot \epsilon_0 \cdot \delta R_{\mu\mu}(t' + \frac{z}{v_g}, z) \cdot \mathcal{E}_{s,\mu}(t', z).$$

L'équation non-linéaire devient donc :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{s,\mu}(z, t')}{\partial z} = \frac{3}{4} \cdot \frac{i\omega_s^2}{2k_s c^2} \delta R_{\mu\mu}(t' + \frac{z}{v_g}, z) \cdot \mathcal{E}_{s,\mu}(t', z).$$

soit, avec  $\frac{\omega_s^2}{2k_s c^2} = \frac{\pi}{n_s \lambda_s}$  et en intégrant entre  $z = 0$  et  $z = L_c$  :

$$\int_0^{L_c} \frac{d\mathcal{E}_{s,\mu}(z, t')}{\mathcal{E}_{s,\mu}(t', z)} = \frac{3\pi}{4n_s \lambda_s} \int_0^{L_c} \delta R_{\mu\mu}(t' + \frac{z}{v_g}, z) dz.$$

L'expression des composantes, dans le repère du laboratoire, de l'enveloppe du champ électrique du faisceau sonde après sa traversée du cristal, de longueur  $L_c$ , est donc la suivante :

$$\mathcal{E}_{s,\mu}(L_c, t') = \mathcal{E}_s(0, t') \cdot \exp \{i\phi_\mu(L_c, t')\}, \quad (4.30)$$

avec

$$\phi_\mu(L_c, t') = \frac{3\pi}{4\lambda_s n_s} \int_0^{L_c} \delta R_{\mu\mu}(z, t' + \frac{z}{v_g}) dz, \quad (4.31)$$

où  $n_s$  et  $\lambda_s$  sont respectivement l'indice de réfraction et la longueur d'onde de l'impulsion sonde, et où l'on a toujours  $\mu = x$  ou  $y$ .

Finalement, le retard de phase accumulé par l'impulsion sonde au cours de sa propagation dans le cristal est donné par l'expression suivante :

$$\Delta\phi(t') = \phi_y - \phi_x = f(\theta) \cdot \int_0^{L_c} I_{\text{Pu}}(z, t' + \frac{z}{v_g}) dz, \quad (4.32)$$

avec

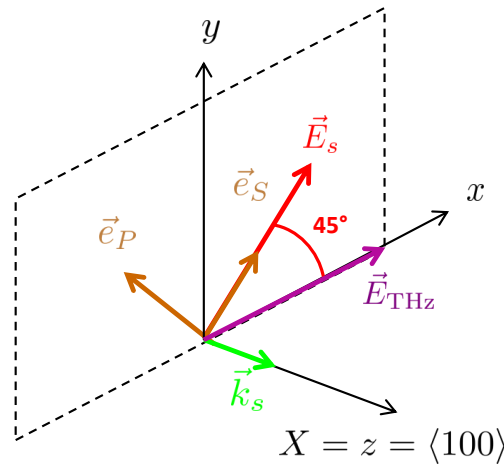
$$f(\theta) = \frac{3\pi b}{4\lambda_s n_s} [u - 1 - (u - 3) \sin^2(2\theta)]. \quad (4.33)$$



Au lieu d'un retard de phase directement proportionnel au champ électrique, comme c'est le cas lors de l'effet Pockels, le déphasage est ici, comme prévu, proportionnel au carré du champ THz,  $I_{Pu} = 4E_{\text{THz}}^2$ . En parallèle, la fonction  $f(\theta)$  permet d'obtenir une expression théorique de la dépendance du déphasage en fonction de l'angle de rotation  $\theta$  du cristal. Par ailleurs, on remarque que le rapport  $u$  intervient aussi dans l'expression : l'obtention de la dépendance angulaire expérimentale nous permettra donc, *a priori*, de mesurer directement les deux coefficients  $a = R_{iii}^{(3)}$  et  $b = R_{ijj}^{(3)} = R_{ijji}^{(3)} = R_{ijij}^{(3)}$  du tenseur de susceptibilité non-linéaire.

### 4.3.5 Détection du déphasage induit par effet Kerr THz

Nous avons vu précédemment que le déphasage induit par un champ THz à la sortie d'un cristal de type zinc-blende est détecté expérimentalement à l'aide d'une lame quart d'onde, d'un prisme de Wollaston et de deux photodiodes équilibrées. Cette partie vise à décrire mathématiquement le principe du fonctionnement de ces optiques pour la détection du déphasage induit par effet Kerr THz.



**FIGURE 4.6** – Détection du déphasage induit par effet Kerr THz lorsque les impulsions sonde et THz sont orientées à  $45^\circ$  l'une de l'autre : les axes neutres de la lame quart d'onde sont dirigés selon les vecteurs  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$ , *i.e.* orientés à  $45^\circ$  de la polarisation du faisceau sonde. Le prisme de Wollaston est, quant à lui, orienté de telle sorte qu'il sépare les composantes du faisceau sonde polarisées suivant les vecteurs  $\vec{e}_S$  et  $\vec{e}_P$ .

À la sortie du cristal, le champ sonde s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{E}_s(t', L_c) &= e^{ik_s L_c} \left[ \mathcal{E}_{s,y}(t', 0) \cdot e^{i\phi_y(t', L_c)} \cdot \vec{e}_y + \mathcal{E}_{s,x}(t', 0) \cdot e^{i\phi_x(t', L_c)} \cdot \vec{e}_x \right] \\ &= e^{i(k_s L_c + \phi_x)} \left[ \mathcal{E}_{s,y}(t', 0) \cdot e^{i\Delta\phi(t', L_c)} \cdot \vec{e}_y + \mathcal{E}_{s,x}(t', 0) \cdot \vec{e}_x \right]. \end{aligned} \quad (4.34)$$

L'onde incidente étant polarisée à  $45^\circ$  des directions  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$ , on a :

$$\mathcal{E}_{s,x}(t', 0) = \mathcal{E}_{s,y}(t', 0) = \frac{1}{\sqrt{2}} \mathcal{E}_s(t', 0), \quad (4.35)$$

ce qui donne :

$$\vec{E}_s(t', L_c) = \frac{1}{\sqrt{2}} \mathcal{E}_s(t', 0) \cdot e^{i(k_s L_c + \phi_x)} \left[ e^{i\Delta\phi(t', L_c)} \cdot \vec{e}_y + \vec{e}_x \right]. \quad (4.36)$$

Cette onde va maintenant traverser la lame quart d'onde, dont les lignes neutres sont dirigées selon les vecteurs  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$ , orientés à  $45^\circ$  de la direction de polarisation de l'impulsion sonde initiale (voir la figure 4.6). Lorsque le champ THz est nul, l'impulsion sonde n'est pas modifiée lors de son passage à travers le cristal et l'orientation de la lame quart d'onde permet simplement de transformer la polarisation initialement rectiligne du faisceau sonde en polarisation circulaire. Au contraire, lorsque le champ THz est non nul, la lame quart d'onde déphase l'une des composantes d'un facteur  $\pi/2$  par rapport à l'autre. À sa sortie, le champ sonde s'écrit donc :

$$\vec{E}_s(t', L_c) = \frac{1}{\sqrt{2}} \mathcal{E}_s(t', 0) \cdot e^{i(k_s L_c + \phi_x)} \left[ e^{i\Delta\phi(t', L_c)} \cdot \vec{e}_y + i \cdot \vec{e}_x \right]. \quad (4.37)$$

Par ailleurs, le prisme de Wollaston est orienté à  $45^\circ$  de la direction  $\vec{e}_y$ , il va donc séparer les composantes  $S$  et  $P$  du champ sonde (voir la figure 4.6). La décomposition du champ dans la base associée permet d'exprimer ce dernier comme :

$$\begin{aligned} \vec{E}_s(t', L_c) &= E_{s,S}(t', L_c) \cdot \vec{e}_S + E_{s,P}(t', L_c) \cdot \vec{e}_P \\ &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_s(t', 0) \cdot e^{i(k_s L_c + \phi_x)} \times \left[ (i + e^{i\Delta\phi(t', L_c)}) \cdot \vec{e}_S + (i - e^{i\Delta\phi(t', L_c)}) \cdot \vec{e}_P \right] \\ &= \frac{1}{2} \mathcal{E}_s(t', 0) \cdot e^{i(k_s L_c + \phi_x)} \times \left[ \{\cos \Delta\phi(t', L_c) + i(1 + \sin \Delta\phi(t', L_c))\} \cdot \vec{e}_S \right. \\ &\quad \left. + \{-\cos \Delta\phi(t', L_c) + i(1 - \sin \Delta\phi(t', L_c))\} \cdot \vec{e}_P \right]. \end{aligned} \quad (4.38)$$

Enfin, comme on l'a vu auparavant, le signal détecté par les photodiodes balancées s'exprime sous la forme :

$$\Delta I = I_S - I_P, \quad (4.39)$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} I_S(\tau) = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} |E_{s,S}(t' - \tau, L_c)|^2 dt' = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\mathcal{E}_s(t' - \tau, 0)|^2}{2} [1 + \sin \Delta\phi(t', L_c)] dt' \\ I_P(\tau) = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} |E_{s,P}(t' - \tau, L_c)|^2 dt' = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\mathcal{E}_s(t' - \tau, 0)|^2}{2} [1 - \sin \Delta\phi(t', L_c)] dt', \end{cases}$$

où l'on a tenu compte de l'efficacité du détecteur  $\eta$  et du fait que les impulsions sonde et THz peuvent être décalées d'un délai  $\tau$ .

Le signal mesuré par la détection balancée est donc finalement donné par :

$$\Delta I(\tau) = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}_s(t' - \tau, 0)|^2 \sin \Delta\phi(t', L_c) dt', \quad (4.40)$$

soit, si  $\Delta\phi \ll 1$  :

$$\Delta I(\tau) = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}_s(t' - \tau, 0)|^2 \Delta\phi(t', L_c) dt'. \quad (4.41)$$

En considérant que l'impulsion sonde a un profil d'intensité gaussien, et en négligeant, dans un premier temps, sa dispersion au cours de sa propagation dans le matériau, sa fonction enveloppe peut s'exprimer sous la forme :

$$\mathcal{E}_s(t, z = 0) = E_0 \cdot e^{-2\ln 2 \cdot \left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2}, \quad (4.42)$$

avec  $\tau_0 = 60$  fs la largeur à mi-hauteur de l'impulsion. On en déduit ensuite que :

$$|\mathcal{E}_s(t, z = 0)|^2 = E_0^2 \cdot e^{-\left(\frac{t}{\sigma_0}\right)^2}, \quad (4.43)$$

avec  $\sigma_0 = \frac{\tau_0}{2\sqrt{\ln 2}}$ .

D'autre part, on peut définir l'intensité totale de l'impulsion sonde en l'absence de champ THz comme  $I_0 = I_S^0 + I_P^0$ , avec  $I_S^0 = I_S(E_{\text{THz}} = 0)$  et  $I_P^0 = I_P(E_{\text{THz}} = 0)$ , soit :

$$I_S^0 = I_P^0 = \eta \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\mathcal{E}_s(t' - \tau, 0)|^2}{2} dt'. \quad (4.44)$$

À l'aide des équations (4.43) et (4.44), on a alors :

$$\frac{\Delta I(\tau)}{I_0} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \Delta\phi(t', L_c) e^{-\left(\frac{t'-\tau}{\sigma_0}\right)^2} dt'}{\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{t'-\tau}{\sigma_0}\right)^2} dt'} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \Delta\phi(t', L_c) e^{-\left(\frac{t'-\tau}{\sigma_0}\right)^2} dt'}{\sigma_0 \sqrt{\pi}}, \quad (4.45)$$

ce que l'on peut réécrire simplement sous la forme :

$$\frac{\Delta I(\tau)}{I_0} = \int_{-\infty}^{+\infty} F_s(t' - \tau) \cdot \Delta\phi(t', L_c) dt', \quad (4.46)$$

où  $F_s(t)$  est le profil d'intensité normalisé de l'impulsion sonde, donné par l'expression suivante :

$$F_s(t) = \frac{1}{\sigma_0 \sqrt{\pi}} \exp \left\{ - \left( \frac{t}{\sigma_0} \right)^2 \right\}. \quad (4.47)$$

Dans la limite où l'impulsion sonde est ultracourte *i.e.*  $\sigma_0 \rightarrow 0$ , on a  $F_s(t) \rightarrow \delta(t)$  [191] et l'on peut alors en déduire que :

$$\frac{\Delta I(\tau)}{I_0} \approx \Delta\phi(t', L_c), \quad (4.48)$$

ce qui est cohérent avec ce qui a été montré précédemment pour la détection d'un champ électrique (voir le chapitre 1).

Au final, l'expression théorique du signal induit par effet Kerr THz dans un cristal de structure zinc-blende taillé selon la direction  $\langle 110 \rangle$  (voir l'équation (4.32)) et mesuré par ellipsométrie est la suivante :

$$\frac{\Delta I(\tau)}{I_0} = f(\theta) \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_0^{L_c} F_s(t' - \tau) \cdot I_{\text{Pu}}(z, t' + \frac{z}{v_g}) dz, \quad (4.49)$$

où l'on rappelle que  $\tau$  est le délai entre les impulsions sonde et THz, et  $I_{\text{Pu}} = 4E_{\text{THz}}^2$ . Cette expression théorique traduit donc bien le fait que le déphasage induit par l'effet Kerr THz soit proportionnel à l'intensité du champ THz. Par ailleurs, la dispersion pour l'impulsion optique a été négligée lors de l'établissement de cette expression. Notons qu'il en sera tenu compte dans les simulations numériques de la dynamique temporelle de l'effet Kerr, analyse qui sera explicitée dans la section 4.4.3.

Nous allons maintenant présenter les résultats expérimentaux obtenus à l'aide du dispositif expérimental présenté à la section 4.2.

## 4.4 Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux que nous présentons dans cette partie du manuscrit ont été observés dans deux cristaux de GaP de longueur  $300 \mu\text{m}$  et  $1 \text{ mm}$ . En premier lieu, la figure 4.8 présente un exemple typique des signaux Kerr mesurés lors de l'expérience et sur lesquels sont fondées les études en intensité et en angle. Remarquons à ce propos que, pour pouvoir représenter la valeur du déphasage en radians, la détection a dû être calibrée. Nous avons pu effectuer cette calibration de deux manières distinctes :

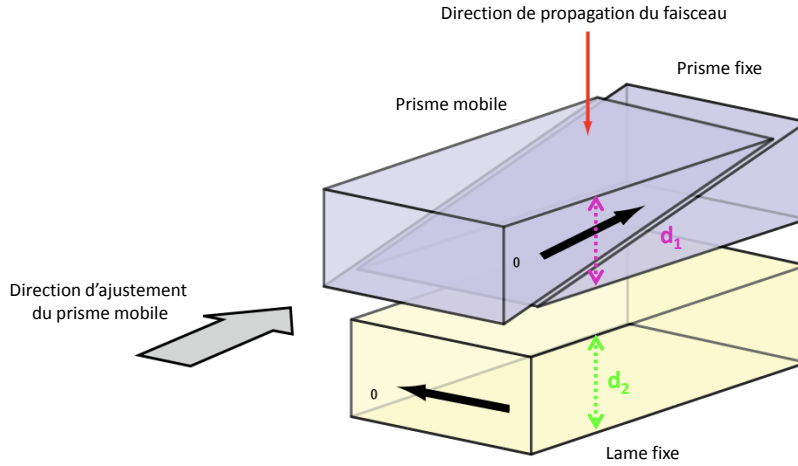
- La première méthode nous a permis de mesurer directement le déphasage en radians au maximum du champ THz et s'inspire de ce qui a été utilisé préalablement pour mesurer le champ THz avec la détection électro-optique conventionnelle (voir la partie 1.3.2.3). En pratique, il suffit de mesurer le signal  $\Delta I$  à la détection synchrone et de diviser cette valeur par  $I_0$ , *i.e.* le double de l'intensité mesurée avec une seule photodiode en l'absence du champ THz. On obtient alors directement le déphasage en radians, comme vu à l'équation (4.48) :

$$\left. \frac{\Delta I}{I_0} \right)_{\text{max}} = \Delta\phi_{\text{max}}.$$

- La seconde méthode, plus précise, a consisté à calibrer le signal délivré par la détection synchrone, en fonction d'un déphasage de valeur connue. Pour imposer ce déphasage au faisceau sonde, nous avons utilisé le compensateur de Babinet - Soleil en l'absence de champ THz. Celui-ci est constitué de deux prismes biréfringents, d'indices ordinaire  $n_o$  et extraordinaire  $n_e$ , qui peuvent être translatés l'un par rapport à l'autre afin de modifier l'épaisseur du verre traversé par le faisceau sonde, ainsi que d'une lame compensatrice (voir la figure 4.7). On peut donc imposer un déphasage connu entre les composantes du champ optique. La relation entre le déphasage imposé et l'épaisseur totale des prismes  $d_1$  est simplement donnée par :

$$\delta\phi_{\text{cal}} = \frac{2\pi \cdot (n_o - n_e)(d_1 - d_2)}{\lambda_s}$$

où  $d_2$  est l'épaisseur de la lame compensatrice. Nous avons pu en déduire une droite d'étalonnage et une relation de proportionnalité entre le déphasage imposé et le signal délivré par la détection synchrone, tant que le déphasage n'était pas trop important. Cette calibration a été utilisée pour chacun des deux cristaux de GaP et est cohérente avec la première méthode.



**FIGURE 4.7** – Fonctionnement d’un compensateur de Babinet - Soleil, extrait des spécifications Thorlabs©. L’utilisateur peut ajuster l’épaisseur des prismes traversée par le faisceau optique, afin d’imposer un déphasage de valeur connue.

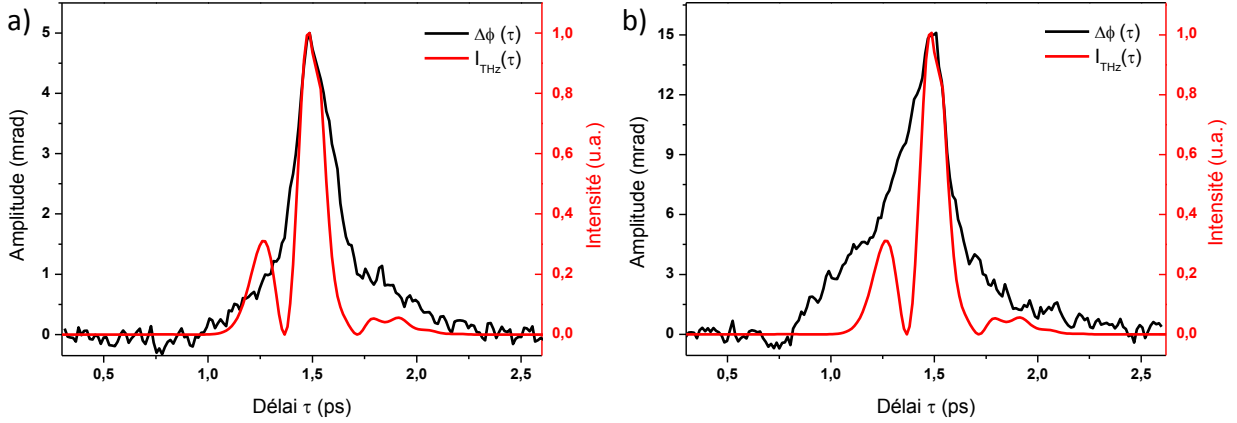
En parallèle, nous avons mesuré la forme temporelle du champ électrique THz grâce à une détection électro-optique conventionnelle, dans un cristal de GaP taillé selon l’axe  $\langle 110 \rangle$  et d’épaisseur  $200 \mu\text{m}$ . Ce signal, élevé au carré, permet d’accéder à l’évolution temporelle de l’intensité THz, que nous avons normalisée par rapport au déphasage maximal, avant de la représenter en rouge sur la figure 4.8. Nous pouvons constater, en particulier pour l’échantillon fin dont la longueur est peu éloignée de celle du cristal de détection, que les signaux temporels ont des évolutions relativement proches l’une de l’autre. Par ailleurs, le signal Kerr peut être vu comme le résultat d’une corrélation entre l’intensité THz et l’intensité du champ sonde (voir l’équation (4.49)). Dans le cristal fin, en comparaison du champ THz mesuré par la détection électro-optique et simplement élevé au carré, le signal Kerr, résultant de l’intégrale de la corrélation de deux termes strictement positifs, ne pourra pas prendre de valeur nulle aux points  $\tau = 1.3 \text{ ps}$  et  $\tau = 1.7 \text{ ps}$ , pour lesquels l’intensité THz passe par 0. Remarquons que le même phénomène était observé lors de l’étude de l’effet Pockels - on se reportera à la section 2.2.1 pour plus de détails à ce sujet.

De plus, nous constatons sur la figure 4.8 que  $\Delta\phi \ll 1$ , ce qui nous permet de confirmer l’approximation effectuée pour obtenir l’expression (4.49). Par ailleurs, et comme on l’a vu au chapitre 1 (voir la figure 1.26-a)), l’accord de phase entre l’onde sonde et l’impulsion THz dans le GaP n’est pas obtenu pour toutes les fréquences THz. Au fur et à mesure de leur propagation dans le cristal, les différentes composantes spectrales de l’impulsion THz ne se propagent pas à la même vitesse que l’impulsion sonde, elles vont progressivement se décaler et le déphasage maximal, qui résulte de leur interaction à la sortie du cristal, s’exprimera de la manière suivante :

$$\Delta\phi_{\text{max}} \approx f(\theta) \cdot L_{\text{eff}} \cdot (2 \times E_{\text{THz}})^2 \quad (4.50)$$

où  $L_{\text{eff}}$  est une longueur effective, introduite pour tenir compte du désaccord de phase entre la vitesse de phase de l’onde THz et la vitesse de groupe de l’impulsion sonde. Si l’on considère l’une des composantes du spectre de l’impulsion THz incidente sur le cristal, de pulsation  $\Omega$ , d’après [113], sa longueur effective d’interaction dans le GaP est définie par :

$$L_{\text{eff}}(\Omega) = \left| \int_0^{L_c} dz \exp \left\{ i \frac{\Omega \cdot \tilde{n}(\Omega) \cdot z}{c} - i \frac{\Omega \cdot z}{v_g} \right\} \right|, \quad (4.51)$$



**FIGURE 4.8** – Exemple type de signaux Kerr THz (en noir) mesurés pour un angle  $\theta = 40^\circ$ , en fonction du délai  $\tau$  entre les impulsions sonde et THz, dans des cristaux de GaP de différentes longueurs : a)  $L_c = 300 \mu\text{m}$  et b)  $L_c = 1 \text{ mm}$ . L'évolution du déphasage induit par l'effet Kerr THz et calibré en radians grâce au compensateur de Babinet-Soleil est représentée (en noir) en parallèle de l'intensité THz normalisée par son maximum (en rouge), *i.e.* le carré de la forme temporelle du champ, mesurée par ellipsométrie dans un cristal de GaP de longueur  $200 \mu\text{m}$ .

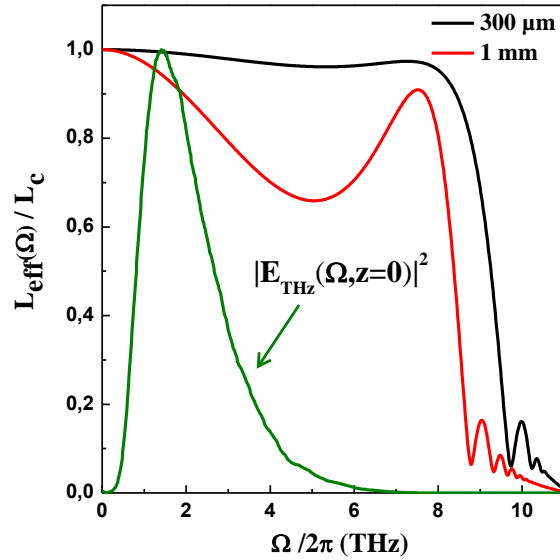
où  $\tilde{n}(\Omega)$  est l'indice complexe du GaP dans le domaine THz (voir la figure 1.26-a) et la référence [129]).

Le rapport des longueurs  $L_{\text{eff}}(\Omega)/L_c$  en fonction de la fréquence de l'impulsion THz a été calculé pour  $L_c = 300 \mu\text{m}$  et  $L_c = 1 \text{ mm}$  et est représenté, en fonction de la fréquence, sur la figure 4.9. En parallèle, on a également représenté (en vert) le spectre de l'impulsion THz incidente,  $|E_{\text{THz}}(\Omega, z = 0)|^2$ , obtenu par transformation de Fourier de la forme temporelle du champ,  $E_{\text{THz}}(z = 0, t)$ . On constate que pour un cristal suffisamment fin, la longueur effective d'interaction reste constante pour toutes les fréquences de l'impulsion THz, cependant que, lorsque le cristal a une longueur plus importante, elle diminue en fonction de la fréquence, en atteignant un minimum autour de 5 THz. L'interaction entre les impulsions optique et THz a donc lieu sur une longueur globalement plus faible que la longueur réelle du cristal. En particulier, pour le cristal épais, on remarque que les fréquences qui appartiennent au domaine situé entre 3.5 et 6 THz interagissent sur une longueur efficace bien inférieure à  $L_c = 1 \text{ mm}$  (seulement  $650 \mu\text{m}$  autour de 5 THz). Cependant, ces composantes spectrales sont aussi les moins présentes dans le spectre : en conséquence, le poids de ces fréquences sur la réduction de la longueur d'interaction effective ne sera pas très important, si bien que, globalement, l'interaction sera majoritairement portée par les petites fréquences, pour lesquelles  $L_{\text{eff}}(\Omega) \approx L_c$ .

En définissant alors la longueur  $L_{\text{eff}}$  comme la moyenne de  $L_{\text{eff}}(\Omega)$ , avec, pour densité de probabilité, le spectre normalisé de l'impulsion THz, on a :

$$L_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{+\infty} L_{\text{eff}}(\Omega) \times |E_{\text{THz}}(\Omega, z = 0)|^2 d\Omega}{\int_0^{+\infty} |E_{\text{THz}}(\Omega, z = 0)|^2 d\Omega}, \quad (4.52)$$

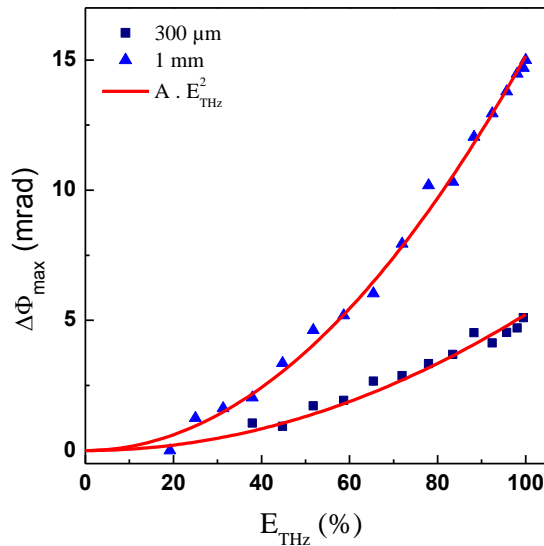
et on trouve que, pour  $L_c = 300 \mu\text{m}$ ,  $L_{\text{eff}} = 295 \mu\text{m}$  et pour  $L_c = 1 \text{ mm}$ ,  $L_{\text{eff}} = 880 \mu\text{m}$ . Ces résultats sont proches de la longueur réelle du cristal, ce qui confirme l'explication donnée précédemment.



**FIGURE 4.9** – Évolution de la longueur effective d’interaction  $L_{\text{eff}}/L_c$ , en fonction de la fréquence  $\Omega/2\pi$  pour  $L_c = 300 \mu\text{m}$  (en noir) et  $L_c = 1 \text{ mm}$  (en rouge). Le spectre normalisé  $|E_{\text{THz}}(z = 0, \Omega)|^2$  de l’impulsion THz incidente sur le cristal est également représenté en vert.

Afin de nous assurer définitivement de l’origine des signaux observés, nous présentons maintenant leur étude en intensité.

#### 4.4.1 Étude de la dépendance en intensité



**FIGURE 4.10** – Évolution de la valeur maximale du retard de phase,  $\Delta\phi_{\text{max}}$ , en fonction de la valeur du champ THz appliqué pour deux cristaux de longueurs respectives  $L_c = 300 \mu\text{m}$  (carrés) et  $L_c = 1 \text{ mm}$  (triangles). Les courbes rouges correspondent à un ajustement quadratique des données.

À l’aide des deux polariseurs placés sur le faisceau THz, nous avons pu mesurer l’évolution de la valeur maximale du signal Kerr, en fonction de l’amplitude du champ électrique THz,  $E_{\text{THz}}$ . Nous

présentons les résultats expérimentaux obtenus pour les deux cristaux de longueurs différentes à la figure 4.10. Les données ont également été ajustées à l'aide d'une courbe d'équation  $\Delta\phi_{\max} = A \cdot E_{\text{THz}}^2$ , et le résultat confirme bien la dépendance quadratique en intensité du phénomène (voir l'équation (4.49)). De plus, le rapport des coefficients  $A(1 \text{ mm})/A(300 \mu\text{m})$  est égal à 2.90 et, selon l'équation (4.50), le coefficient  $A$  est proportionnel à la longueur effective  $L_{\text{eff}}$ . Le rapport des longueurs effectives  $L_{\text{eff}}(1 \text{ mm})/L_{\text{eff}}(300 \mu\text{m})$  donne, quant à lui, une valeur de 2.98, très proche de celle trouvée grâce aux courbes d'ajustement.

L'étude de la dépendance en intensité du signal nous permet donc de confirmer l'hypothèse d'une interaction non-linéaire de type effet Kerr THz. Nous allons maintenant présenter la dépendance angulaire du signal et nous la comparerons avec la dépendance théorique issue du modèle développé précédemment à la partie 4.3, afin d'en déduire les valeurs des coefficients du tenseur de réponse non-linéaire du troisième ordre du GaP,  $\hat{R}^{(3)}$ , dans le domaine THz.

#### 4.4.2 Étude de la dépendance angulaire

Nous présentons les résultats de l'étude de la dépendance angulaire de l'effet Kerr THz sur la figure 4.11, pour chaque cristal de longueurs respectives 300  $\mu\text{m}$  et 1 mm. Notons que les données correspondent au maximum du retard de phase induit par l'effet Kerr THz, mesuré pour différents angles  $\theta$ , ce dernier étant défini entre l'axe  $\langle 010 \rangle$  et la direction de polarisation du champ THz,  $\vec{e}_x$  (voir la figure 4.5). Pour cette étude, nous avons placé l'échantillon de GaP dans une monture rotative et mesuré le déphasage maximal tous les 10°. La difficulté principale rencontrée lors de ce travail a été causée par le fait que les deux faces de l'échantillon n'étaient pas parfaitement parallèles, et lorsque celui-ci tournait, la trajectoire du faisceau à la sortie du cristal pouvait dévier assez fortement de l'axe optique et la détection devait alors être réalignée. Nous suspectons également que les cristaux, dont l'épaisseur n'atteignait au maximum qu'un millimètre, n'étaient pas bien fixés dans leur monture, et que le faisceau sonde n'était donc pas toujours en incidence normale sur la face du cristal. Pour corriger ces artefacts, la monture rotative pouvait donc être inclinée à l'aide d'une platine micrométrique, afin de corriger la trajectoire du faisceau. Cette difficulté peut être à l'origine des différences observées entre les résultats expérimentaux (carrés noirs) et les courbes d'ajustement provenant du modèle théorique (en rouge), présentés sur la figure 4.11. Malgré cela, le comportement global du déphasage maximal dû à l'effet Kerr en fonction de l'angle  $\theta$  du cristal s'accorde plutôt bien avec les courbes théoriques.

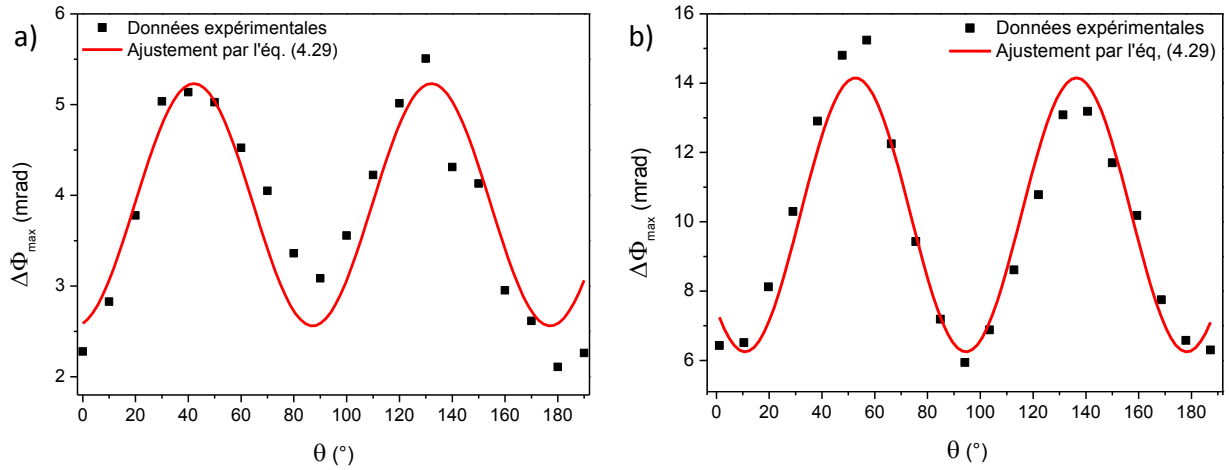
À l'aide des paramètres tirés de l'ajustement réalisé grâce aux équations (4.33) et (4.50), nous avons pu extraire les coefficients  $a$  et  $b$  pour chaque cristal, et obtenir, en valeur moyenne,  $a = R_{iiii}^{(3)} = 7.4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{V}^{-2}$  et  $b = R_{ijjj}^{(3)} = 4.0 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{V}^{-2}$ . Ceux-ci sont du même ordre de grandeur que les valeurs mesurées dans le cas des verres de chalcogénure [184] et on peut en déduire l'indice de réfraction non-linéaire induit par l'effet Kerr THz,  $n_2^I$ , introduit à l'équation (4.1) et tel que :

$$n_2^I = \frac{\Delta n}{I_{\text{THz}}}, \quad (4.53)$$

où  $\Delta n$  est défini usuellement comme :

$$\Delta n = \frac{\Delta\phi_{\max} \cdot \lambda_s}{2\pi \cdot L_{\text{eff}}}, \quad (4.54)$$





**FIGURE 4.11** – Évolution de la valeur maximale du retard de phase,  $\Delta\phi_{\max}$ , en fonction de l'angle  $\theta$  du cristal, pour deux cristaux de longueurs respectives : a)  $L_c = 300 \mu\text{m}$  et b)  $L_c = 1 \text{ mm}$ . Les courbes représentées en rouge correspondent à l'ajustement des données, effectué à l'aide des équations (4.3) et (4.5).

et l'intensité THz comme :

$$I_{\text{THz}} = \epsilon_0 \cdot c \cdot n_{\text{THz}} \cdot E_{\text{THz}}^2 \quad (4.55)$$

On obtient alors l'expression de  $n_2^I$  en fonction de l'angle  $\theta$  :

$$n_2^I(\theta) = \frac{3 \cdot b}{2\epsilon_0 \cdot c \cdot n_{\text{THz}} \cdot n_s} [u - 1 - (u - 3) \sin^2(2\theta)] \quad (4.56)$$

et on a donc, en valeur moyenne :

$$\langle n_2^I \rangle_\theta = \frac{3(a + b)}{4\epsilon_0 \cdot c \cdot n_{\text{THz}} \cdot n_s} = 1.2 \times 10^{-13} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1} \quad (4.57)$$

où la valeur de l'indice de réfraction THz,  $n_{\text{THz}}$ , a été prise à 1.5 THz (voir la figure 4.12-a)).

Le tableau 4.1 rassemble les valeurs numériques des paramètres non-linéaires du troisième ordre,  $\chi^{(3)}$ ,  $\Delta n$  et  $n_2^I$ , mesurés pour différents matériaux dans le domaine THz, ainsi que, pour comparaison, l'indice non-linéaire  $n_2^{\text{NIR}}$  mesuré pour une longueur d'onde  $\lambda_s$  égale à 532 nm ou 1040 nm selon les cas. On constate que le GaP a des coefficients non-linéaires du même ordre de grandeur que ceux mesurés dans certains verres de chalcogénure, et largement supérieurs à ceux des liquides. Par ailleurs, son indice de réfraction non-linéaire THz est du même ordre de grandeur que l'indice Kerr mesuré dans le proche infrarouge, à  $\lambda_s = 1040 \text{ nm}$  [192].

Ainsi, l'étude de la dépendance angulaire de l'effet Kerr THz nous a permis de mesurer les coefficients du tenseur de réponse non-linéaire d'ordre trois pour le GaP, et d'en déduire l'indice non-linéaire associé. À présent, nous allons discuter l'évolution temporelle des signaux Kerr à travers l'exemple présenté à la figure 4.8, en le comparant aux résultats issus du modèle présenté précédemment.

Matériau	$\chi^{(3)}$ ( $10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-2}$ )	$\Delta n$ ( $10^{-6}$ )	$n_2^{\text{I}}$ ( $10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ )	$n_2^{\text{NIR}}$ ( $10^{-14} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ )
As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	$9.96 \pm 0.50$	6.30	$3.44 \pm 0.17$	11.4 à 1.05 $\mu\text{m}$
As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	$4.84 \pm 0.24$	5.34	$1.75 \pm 0.09$	2.5 à 1.05 $\mu\text{m}$
CS <sub>2</sub>	2.08	4.3	4.40	3.32 à 532 nm [193]
Benzène	0.22	0.5	0.56	1.68 à 532 nm [193]
CCl <sub>4</sub>	0.10	0.23	0.27	0.15 à 532 nm [193]
CHCl <sub>3</sub>	0.04	0.086	0.10	0.30 à 532 nm [193]
CH <sub>2</sub> I <sub>2</sub>	0.70	1.4	1.40	14.7 à 532 nm [193]
ZnTe	$\chi^{(3)} = 30$	—	—	7 à 790 nm [187]
ZnSe	$\chi^{(3)} = 10$	—	—	6.2 à 532 nm [194]
GaP	$R_{iiii}^{(3)} = 7.4$ $R_{ijjj}^{(3)} = 4.0$	6.52	12	6.5 à 1.04 $\mu\text{m}$ [192]

**TABLE 4.1** – Effet Kerr THz : valeurs numériques des paramètres non-linéaires associés au GaP et à différents semi-conducteurs [171], liquides [182] et verres [184]. L'indice de réfraction Kerr mesuré dans le proche infrarouge ou le visible est également indiqué dans la dernière colonne, pour comparaison.

### 4.4.3 Dynamique temporelle de l'effet Kerr THz : simulation et expérience

À l'aide du modèle développé à la partie 4.3, nous pouvons simuler numériquement la dynamique temporelle de l'effet Kerr THz dans le GaP. Pour ce faire, nous avons suivi plusieurs étapes :

- Grâce à la détection électro-optique effectuée dans le GaP de 200  $\mu\text{m}$ , la forme temporelle expérimentale du champ électrique THz est connue et son spectre peut être calculé par transformation de Fourier (TF) :

$$E_{\text{THz}}^{\text{exp}}(\tau, z = 0) \xrightarrow{\text{TF}} E_{\text{THz}}(\Omega, z = 0)$$

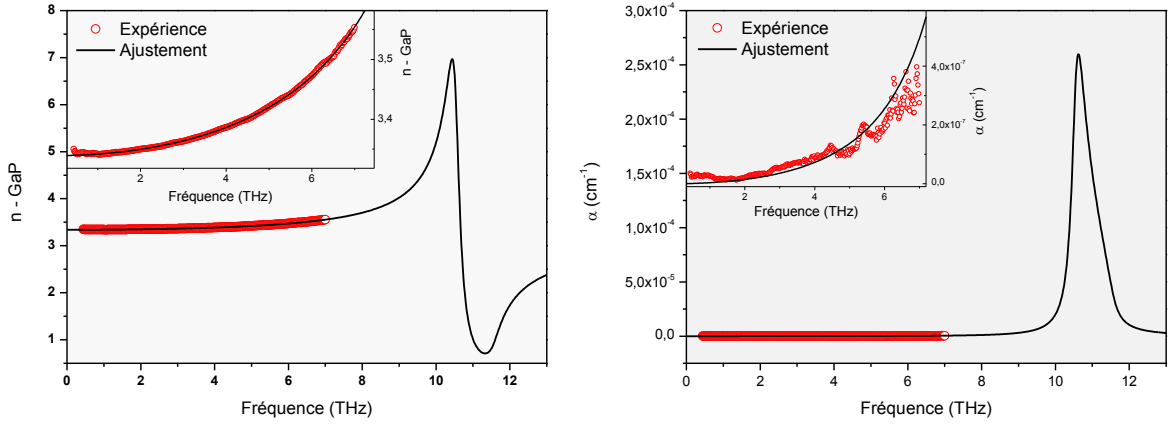
- La propagation de toutes les composantes spectrales de l'impulsion THz sur une distance  $z$  est ensuite traduite mathématiquement par l'ajout d'un terme de déphasage, tel que :

$$E_{\text{THz}}(\Omega, z = 0) \rightarrow E_{\text{THz}}(\Omega, z) = E_{\text{THz}}(\Omega) \cdot e^{\left\{i \cdot \left(\Omega \cdot \frac{\tilde{n}(\Omega) \cdot z}{c} - \Omega \cdot \frac{z}{v_g}\right)\right\}}, \quad (4.58)$$

où le terme  $e^{-i\Omega \cdot z/v_g}$  permet de prendre en compte la dépendance du terme  $I_{\text{Pu}}$  en  $t' + \frac{z}{v_g}$  dans l'équation (4.49), et où la dispersion et l'absorption du milieu sont intégrées à l'analyse par l'intermédiaire de l'indice de réfraction complexe du GaP dans le domaine THz :

$$\tilde{n}_{\text{THz}}(\Omega) = n(\Omega) + i\alpha(\Omega) \cdot \frac{c}{2\Omega}. \quad (4.59)$$

Celui-ci a été directement mesuré par spectroscopie THz-TDS de notre échantillon, entre 0.5 THz et 7 THz : les données expérimentales, présentées en rouge sur la figure 4.12, ont ensuite été ajustées à l'aide de l'équation (1.40) (courbe noire), afin d'obtenir l'indice de réfraction complexe sur une étendue spectrale courant jusqu'à 10 THz. Notons que les valeurs des coefficients utilisés,  $\epsilon_\infty = 9.26$ ,  $A_1 = 1.88$ ,  $\Omega_1/2\pi = 10.53$  THz et  $\gamma_1 = 0.15$ , sont très proches des valeurs tabulées (voir la section 1.7).



**FIGURE 4.12** – Spectroscopie THz - TDS du cristal de GaP taillé selon l'axe  $\langle 100 \rangle$  et de longueur  $300 \mu\text{m}$  et extraction de son indice de réfraction complexe  $\tilde{n}_{\text{THz}}$  : a) indice de réfraction et b) coefficient d'absorption. Les données expérimentales sont représentées par les cercles rouges et leur ajustement est présenté en noir.

- Une transformation de Fourier inverse permet enfin de revenir dans le domaine temporel et d'exprimer le champ électrique de l'impulsion THz au point  $z$  dans le cristal :

$$E_{\text{THz}}(\Omega, z) \xrightarrow{\text{TF}^{-1}} E_{\text{THz}}\left(t' + \frac{z}{v_g}, z\right). \quad (4.60)$$

Ce dernier, élevé au carré, permet ensuite d'obtenir le terme  $I_{\text{Pu}}(t' + z/v_g, z) \propto E_{\text{THz}}^2(t' + z/v_g, z)$ .

- En ce qui concerne l'impulsion sonde, nous avons considéré à la section 4.3.4 un profil d'intensité gaussien (voir l'équation (4.47)) et dans les simulations numériques, nous prenons maintenant en compte la dispersion de l'impulsion, que nous avons négligée précédemment. En effet, les composantes spectrales de l'impulsion sonde ne se déplacent pas toutes à la même vitesse (voir la figure 1.26-a dans le chapitre 1) dans le milieu. Selon [154], cela se traduit alors, dans le cas d'une impulsion gaussienne, par le fait que la durée initiale de l'impulsion  $\tau_0 = 60$  fs s'élargit au cours de sa propagation selon  $z$  de la façon suivante :

$$\tau(z) = \tau_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{z}{L_d}\right)^2}, \quad (4.61)$$

où  $L_d$  est une longueur caractéristique définie par :

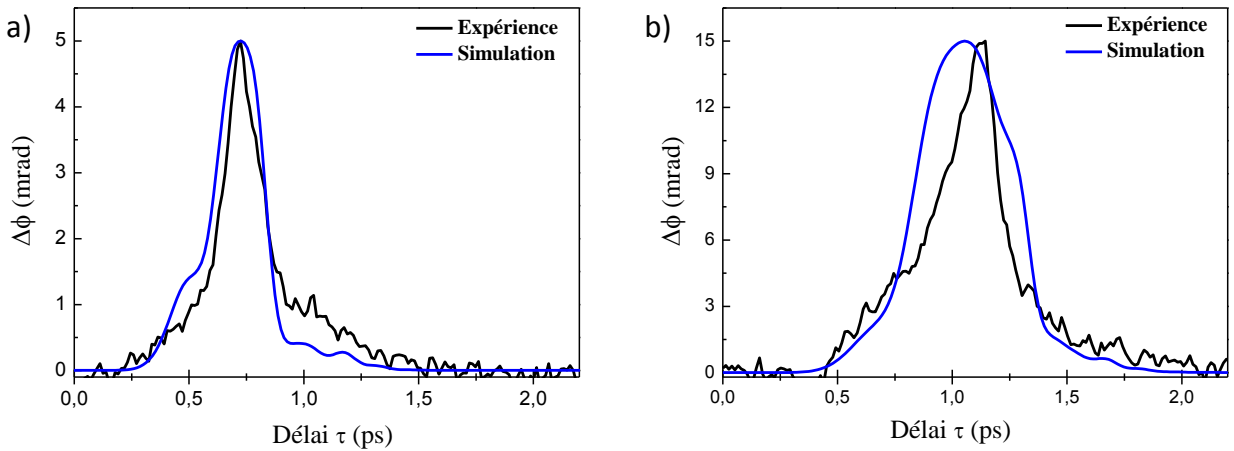
$$L_d = \frac{\tau_0^2}{4 \ln 2 \cdot \beta_s}. \quad (4.62)$$

Les valeurs numériques utilisées dans cette simulation pour la dispersion de la vitesse de groupe  $\beta_s$  proviennent de [128]. En conséquence, le profil d'intensité normalisé de l'impulsion sonde,  $F_s(t)$ , donné précédemment à l'équation (4.47) et pour lequel la dispersion de la vitesse de groupe n'était pas prise en compte, devient :

$$F_s(z, t) = \frac{1}{\sigma(z)\sqrt{\pi}} \exp \left\{ - \left( \frac{t}{\sigma(z)} \right)^2 \right\}, \quad (4.63)$$

avec  $\sigma(z) = \sigma_0 \cdot \sqrt{1 + \left( \frac{z}{L_d} \right)^2}$ .

Nous avons donc obtenu une expression numérique de tous les termes contenus dans l'équation (4.49) établie à la partie précédente, et il est maintenant possible de simuler l'évolution du déphasage  $\Delta\phi(\tau)$  induit par l'effet Kerr THz dans le GaP. Les résultats sont présentés sur la figure 4.13.



**FIGURE 4.13** – Comparaison entre les signaux expérimentaux dus à l'effet Kerr THz, mesurés expérimentalement (en noir) et simulés numériquement (en bleu), obtenus pour un angle  $\theta = 40^\circ$ , en fonction du délai  $\tau$  entre les impulsions sonde et THz, dans des cristaux de GaP de différentes longueurs  $L_c$  : a)  $L_c = 300 \mu\text{m}$  et b)  $L_c = 1 \text{ mm}$ .

Nous constatons que, pour le cristal le plus fin (voir la figure 4.13-a)), la simulation de la dynamique temporelle du déphasage Kerr  $\Delta\phi(\tau)$  est en très bon accord avec l'expérience, avec deux largeurs à mi-hauteur très proches l'une de l'autre et de l'ordre de 200 fs. Cependant, et malgré leur forme temporelle relativement similaires, la courbe de la simulation du déphasage Kerr THz induit dans un cristal d'épaisseur plus importante (voir la figure 4.13-b)) présente une largeur temporelle de près de 500 fs, soit près du double de celle du signal expérimental, égale à 280 fs.

---

Nous proposons plusieurs explications à ces différences. Tout d'abord, dans notre modèle, nous n'avons pas tenu compte de la dispersion de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre dans le domaine THz. Par ailleurs, rappelons que la forme temporelle du champ THz, point de départ de notre modèle, a été détectée expérimentalement par ellipsométrie dans un cristal de GaP. En conséquence, et comme cela a été vu précédemment au chapitre consacré à la détection, celui-ci filtre les composantes spectrales du champ THz réel situées au-delà de 8 THz (voir la figure 1.20), alors que ces dernières peuvent s'étendre jusqu'à la centaine de THz [64], selon la durée de l'impulsion optique de pompe. Nous pouvons donc raisonnablement supposer que l'étendue du spectre THz réel utilisé dans cette expérience est largement suffisante pour exciter le phonon transverse optique de l'échantillon, situé autour de 11 THz (voir la figure 4.12). Ainsi, il est probable que la résonance qui découle de cette interaction influence l'évolution temporelle du déphasage Kerr. Pour améliorer notre compréhension du phénomène, nous suggérons de remplacer la détection électro-optique utilisée dans ce travail par des méthodes alternatives plus favorables à la mesure du spectre réel de l'impulsion THz, comme, par exemple, la détection ABCD (voir le chapitre 1, section 1.4.1).





# Conclusion générale

L'objectif principal de ce travail a été d'étudier plusieurs procédés non-linéaires du second et du troisième ordre ou équivalent dans le domaine THz, grâce aux sources intenses développées au laboratoire. Celles-ci, au nombre de deux, ont été largement décrites dans le premier chapitre. La première d'entre elles, basée sur le redressement optique d'une impulsion laser dans un cristal de niobate de lithium par la méthode de l'inclinaison du front de l'impulsion, permet d'obtenir des champs électriques dont l'amplitude est de l'ordre de 20 kV/cm, alors que la seconde, fondée sur la génération THz par interaction d'un champ laser bichromatique avec l'air et création d'un plasma, autorise quant à elle des champs électriques de l'ordre de 80 kV/cm. Bien qu'elles soient relativement peu intenses au regard des valeurs publiées dans la littérature, pour laquelle le record est établi autour du MV/cm, ces sources génèrent, à notre connaissance, des amplitudes de champ électrique parmi les plus élevées en France. Notons, par ailleurs, que les caractéristiques de la plate-forme laser COLA à l'origine des impulsions de pompe ne sont pas optimales pour la source basée sur le niobate de lithium et sont bien adaptées à celle induite par le plasma.

La génération d'une impulsion va naturellement de pair avec la détection de celle-ci. Un certain nombre de rappels à ce propos ont été proposés à la fin du chapitre 1 : un premier point a consisté à s'intéresser aux diverses possibilités existantes aujourd'hui pour effectuer la détection du champ électrique dans le domaine THz. Nous avons ensuite rappelé le principe de l'effet Pockels, qui représente l'un des processus non-linéaires couramment utilisé pour la détection d'une impulsion THz, lorsque celle-ci est générée à partir d'un laser femtoseconde. Nous avons également justifié le choix de deux cristaux particuliers, le tellure de zinc et le phosphore de gallium, comme matériaux électro-optiques bien adaptés à la détection des rayonnements THz issus des deux sources construites au laboratoire. Pour finir, nous avons détaillé le fonctionnement de la détection électro-optique en elle-même, en présentant une technique d'ellipsométrie fréquemment employée dans les laboratoires.

Le chapitre 2 a été consacré à l'effet Pockels. Nous avons vu que cet effet induit par le faisceau THz se traduisait par une modulation du spectre du champ sonde en sortie du cristal. En particulier, nous avons montré que, dans le cas d'un cristal de tellure de zinc taillé selon l'axe  $\langle 110 \rangle$ , une orientation particulière des champs électriques THz et sonde incidents sur le cristal permettait l'apparition d'une composante du champ optique, qualifiée de champ électro-optique, déphasée de  $\pi/2$  par rapport au champ sonde, et dirigée orthogonalement à ce dernier. Ce champ électro-optique, obtenu par sommation et différence de fréquence entre l'impulsion optique incidente et le champ THz, contient toute l'information relative à ce dernier (phase et amplitude). Nous avons alors, d'une part, démontré les possibilités offertes en termes de détection du champ THz par hétérodynage du champ électro-optique dans cette configuration géométrique spécifique : cette méthode, dite intensimétrique, offre le même rapport signal sur bruit et la même résolution



---

que la technique conventionnelle. D'autre part, l'étude du spectre de cette composante en fonction du retard entre les impulsions THz et optique, a notamment permis de démontrer la possibilité de mesurer la dérive en fréquence de l'impulsion sonde grâce au champ THz. Le tracé de l'évolution de la fréquence en fonction du délai entre les impulsions THz et optique permet alors de visualiser des cartes, équivalentes aux traces obtenues par la méthode du X-FROG (Crossed-Frequency Resolved Optical Gating) qui fait interagir deux impulsions optiques de caractéristiques spectrales distinctes, par sommation ou différence de fréquence. Nous avons ainsi démontré la possibilité de déterminer une valeur moyenne de la dispersion quadratique de l'impulsion sonde en utilisant le champ THz, et, en parallèle, nous avons effectué des mesures par auto-corrélation, afin de comparer les résultats. Les deux méthodes permettent d'obtenir des résultats cohérents, malgré le manque de précision sur la mesure des dispersions quadratiques de faible valeur avec les spectrogrammes THz. Nous avons également développé une analyse mathématique poussée de l'effet Pockels, qui a été accompagnée de diverses modélisations numériques. Celles-ci ont finalement permis de simuler à la fois la forme des spectrogrammes résultant de l'interaction des impulsions sonde et THz, et les traces X-FROG associées, dans le cas d'une impulsion de référence limitée par transformée de Fourier. Malgré quelques difficultés, en particulier l'absence de certaines caractéristiques visibles sur le spectre expérimental, nous avons observé une concordance relativement bonne des simulations et des résultats expérimentaux. Ce chapitre a donc permis d'établir une nouvelle méthode de mesure de la phase spectrale d'une impulsion optique, qui repose sur l'interaction de celle-ci avec une impulsion THz, et fonctionne de manière analogue au X-FROG.

Les différents systèmes présentés dans les deux premiers chapitres ont ensuite été exploités dans les chapitres 3 et 4, pour des expériences d'optique non-linéaire dans le domaine THz. Le chapitre 3 a été consacré à l'étude, au sein d'un cristal de tellure de zinc, du processus de PISH (Pockels Induced Second Harmonic Generation), *i.e.* la cascade de deux effets non-linéaires du second ordre : l'effet Pockels et la génération de second harmonique. Ce procédé est apparu de manière inopinée, alors que notre objectif initial était de démontrer l'existence du TFISH (Terahertz Field Induced Second Harmonic Generation) dans ce matériau, processus du troisième ordre menant à la génération de second harmonique par l'intermédiaire du champ THz. Une étude préliminaire, puis des mesures plus poussées de la dépendance en intensité du procédé, ont révélé la probable cascade de deux procédés du second ordre et l'équivalence avec le TFISH. La mesure de la dépendance angulaire du signal observé est venue renforcer cette première hypothèse, et la construction d'un modèle théorique a permis d'analyser très finement le phénomène. Faisant état d'une excellente concordance avec les résultats expérimentaux obtenus pour le PISH, le modèle a également permis d'expliquer l'impossibilité d'observer le TFISH dans les conditions expérimentales mises en œuvre lors de l'étude.

Dans le dernier chapitre, nous nous sommes enfin intéressés à l'effet Kerr THz ayant lieu dans des cristaux de phosphore de gallium de différentes épaisseurs. Notons que l'orientation du cristal a été spécialement choisie pour ne pas générer d'effets non-linéaires du second ordre tels que l'effet Pockels, pouvant amener une confusion sur l'origine des signaux observés. Nous avons donc démontré l'existence d'une biréfringence induite dans le milieu, proportionnelle à l'intensité du champ THz appliqué, signature d'un effet non-linéaire du troisième ordre. La dépendance angulaire du signal a également été calculée théoriquement, grâce à un modèle mathématique basé sur la résolution de l'équation non-linéaire de propagation du champ sonde, puis comparée aux mesures expérimentales effectuées en parallèle. Nous avons pu mettre en évidence une bonne similitude entre les données, ce qui confirme la présence de l'effet Kerr THz dans nos conditions expérimentales. Cette comparaison nous a également permis de mesurer la valeur moyenne des

---

coefficients du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre du phosphore de gallium, que nous avons confrontées aux valeurs de susceptibilité d'autres matériaux comme les verres ou certains liquides, extraites de la littérature. Enfin, le modèle théorique nous a permis de mieux appréhender la dynamique temporelle de l'effet Kerr, avec des résultats numériques similaires aux données expérimentales, en particulier pour le cristal fin.

À l'issue de cette thèse, plusieurs perspectives de recherche peuvent être envisagées afin d'améliorer les résultats présentés dans ce manuscrit. Concernant le développement de sources THz intenses, qui a constitué la première partie de ce travail, des améliorations peuvent être apportées principalement à la production d'impulsions THz intenses par redressement optique d'une impulsion pompe dans un cristal de niobate de lithium. Les principales difficultés résidaient dans le fait que les caractéristiques du laser de pompe n'étaient pas idéales avec, en particulier, une durée de l'impulsion pompe très courte devant la durée optimale, cette dernière étant au moins égale à plusieurs centaines de femtosecondes. Le fait d'avoir travaillé à température ambiante était également dommageable pour obtenir une bonne efficacité de conversion, et, enfin, le bon alignement des différentes optiques situées en amont du cristal de niobate de lithium s'est révélé complexe à réaliser. En premier lieu, nous préconisons de placer le cristal dans un cryostat, ce qui permettra déjà d'améliorer largement l'efficacité de conversion énergétique, les autres modifications possibles (changement de longueur d'onde, de durée d'impulsion...) se révélant véritablement radicales.

Si l'on se concentre à présent sur les applications concernant l'optique non-linéaire dans le domaine THz, une première amélioration à apporter concerne les simulations numériques qui ont été effectuées dans le chapitre 2. Nous y avons démontré la possibilité de mesurer la phase spectrale d'une impulsion sonde lors de son interaction par effet Pockels avec un champ THz dans un cristal de tellure de zinc. À l'heure actuelle, les modélisations effectuées ne nous permettent pas de simuler correctement chacun des lobes visibles sur les spectrogrammes expérimentaux à chaque oscillation du champ THz, et ce, quelle que soit la dérive de fréquence de l'impulsion optique incidente sur le cristal de tellure de zinc. Cet aspect des simulations nécessite donc d'être considérablement amélioré. En parallèle, le développement d'un algorithme itératif sur le modèle de ceux qui sont utilisés dans les techniques usuelles de X-FROG permettrait sans doute d'améliorer largement la capacité de notre méthode à caractériser la phase spectrale de l'impulsion optique se propageant en parallèle du champ THz. Ceci représente cependant un travail de grande ampleur, assez éloigné de la thématique principalement expérimentale de cette thèse, et qui nécessite de bonnes connaissances en algorithmique. Enfin, une dernière ouverture possible sur ce sujet pourrait être l'étude éventuelle du phosphore de gallium à la place du tellure de zinc utilisé dans ce travail : ce dernier est en effet communément utilisé pour la détection d'impulsions THz et pourrait donc être intégré assez facilement dans un système THz-X-FROG construit en laboratoire.

Enfin, concernant la démonstration de l'existence d'un effet Kerr induit par une impulsion THz intense dans un cristal de phosphore de gallium, le modèle mathématique que nous avons développé afin d'obtenir une expression analytique de la dépendance angulaire du signal est basé, entre autres, sur l'hypothèse d'une réponse instantanée du milieu à l'excitation THz. Celle-ci est alors considérée comme indépendante du délai entre les différentes impulsions THz et optique, et, à la fin du raisonnement, les valeurs des coefficients du tenseur associé sont obtenues de manière relativement grossière, sans que leur dépendance temporelle soit prise en compte. Nous suggérons donc de modéliser plus finement la fonction réponse du milieu, afin de tenir compte de sa dépendance temporelle. Cela apportera des informations supplémentaires quant à la dispersion en fréquence de la susceptibilité du troisième ordre,  $\chi^{(3)}(\Omega)$ . Nous pourrions ainsi distinguer la contribution à

---

l'origine de l'auto-modulation de phase (partie réelle du  $\chi^{(3)}$ ) de celle à l'origine de l'absorption à deux photons (partie imaginaire du  $\chi^{(3)}$ ). Ce traitement plus complet permettra alors d'affiner notre connaissance du comportement du matériau dans le domaine THz.





# Annexe A

## Établissement de l'équation de propagation non-linéaire du champ sonde

### A.1 Equation de propagation non-linéaire

À partir des équations macroscopiques de Maxwell et des relations constitutives du milieu [143], on peut établir l'équation générale de propagation d'un champ électrique  $\vec{E}_s(\vec{r}, t)$  dans un milieu non magnétique et isotrope :

$$\Delta \vec{E}_s(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_s(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_s(\vec{r}, t)}{\partial t^2}, \quad (\text{A.1})$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide et  $\vec{P}_s$  la polarisation totale.

Cette dernière est égale à la somme des polarisations linéaire  $\vec{P}_s^{(1)}$  et non-linéaire, notée  $\vec{P}_s^{\text{NL}}$ . Celle-ci peut s'exprimer comme un développement en série des puissances du champ électrique, ce qui donne :

$$\begin{aligned} \vec{P}_s(\vec{r}, t) &= \vec{P}_s^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}_s^{\text{NL}}(\vec{r}, t) \\ &= \vec{P}_s^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}_s^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{P}_s^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \\ &= \epsilon_0 \cdot \left[ \chi^{(1)} \vec{E}(\vec{r}, t) + \chi^{(2)} \vec{E}^2(\vec{r}, t) + \chi^{(3)} \vec{E}^3(\vec{r}, t) + \dots \right], \end{aligned}$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide, le terme  $\chi^{(1)}$  est appelé susceptibilité linéaire et les quantités  $\chi^{(2)}$  and  $\chi^{(3)}$  sont respectivement les susceptibilités non-linéaires du deuxième et troisième ordre. Par ailleurs, on considère ici des ondes planes, qui se propagent uniquement selon la direction  $\vec{e}_z$ .

L'équation (A.1) devient donc :

$$\frac{\partial^2 \vec{E}_s(z, t)}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}_s(z, t)}{\partial t^2} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_s^{(1)}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_s^{\text{NL}}(z, t)}{\partial t^2}. \quad (\text{A.2})$$

Par la suite, on supposera que les vecteurs  $\vec{E}_s$  et  $\vec{P}_s$  sont polarisés suivant la même direction, ce qui nous permet d'exprimer les équations en termes de scalaires et non plus de vecteurs. Pour plus de commodité, on passe dans l'espace des fréquences, en effectuant une transformation de Fourier. L'équation (A.2) devient alors :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_s(z, \omega)}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{E}_s(z, \omega) + \frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{P}_s^{(1)}(z, \omega) = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{P}_s^{\text{NL}}(z, \omega), \quad (\text{A.3})$$

où  $\tilde{E}_s(z, \omega)$  est la transformée de Fourier de  $E_s(z, t)$  et  $\tilde{P}_s^{(i)}(z, \omega)$  celle de  $P_s^{(i)}(z, t)$ .

De plus, dans beaucoup de situations physiques, l'équation précédente peut être ramenée à une équation différentielle du premier ordre, en faisant l'approximation de l'enveloppe lentement variable. Il est en effet naturel de rechercher une solution à cette équation sous la forme du produit d'une fonction, dite enveloppe, et d'une onde plane solution de l'équation homogène associée à (A.3). Au vu de la notation complexe régulièrement adoptée dans les chapitres de ce manuscrit, le champ sonde peut donc s'écrire, dans l'espace de Fourier, sous la forme :

$$\tilde{E}_s(z, \omega) = \frac{1}{2} \tilde{\mathcal{E}}_s(\omega, z) e^{ik_s z} + c.c. \quad (\text{A.4})$$

où  $k_s$  est le vecteur d'onde associée à la pulsation centrale  $\omega_s$ , avec  $k_s = n_s \omega_s / c$  et où  $\tilde{\mathcal{E}}_s(\omega, z)$  est la transformée de Fourier de l'enveloppe du champ électrique. On peut noter la polarisation d'une façon équivalente, en introduisant le terme  $\mathcal{P}_s^{\text{NL}}$  :

$$\tilde{P}_s^{(3)}(z, \omega) = \frac{1}{2} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(\omega, z) e^{ik_s z} + c.c. \quad (\text{A.5})$$

où  $\mathcal{P}_s^{(\text{NL})}(\omega, z)$  est la transformée de Fourier de l'amplitude de la polarisation non-linéaire.

D'autre part, la composante de la polarisation linéaire est reliée au champ électrique par l'expression :

$$\tilde{P}_s^{(1)}(z, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \tilde{E}_s(z, \omega). \quad (\text{A.6})$$

Sachant que l'indice de réfraction  $n$  s'exprime sous la forme  $n(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$  et que  $k_\omega = n(\omega)\omega/c$ , l'équation A.3 devient finalement :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_s(z, \omega)}{\partial z^2} + k_\omega^2 \tilde{E}_s(z, \omega) = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{P}_s^{\text{NL}}(z, \omega). \quad (\text{A.7})$$

## A.2 Approximation de l'enveloppe lentement variable

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, les variations d'amplitude de l'enveloppe du champ sonde sont considérées comme très lentes devant les oscillations, très rapides, de la porteuse [195]. En effet, avec la convention (A.4) adoptée précédemment pour l'écriture du champ sonde, la totalité de la dépendance spatiale rapide de celui-ci est contenue dans le facteur exponentiel complexe. L'expression du champ sonde sous la forme de l'équation

(4.8) permet alors de simplifier l'écriture de l'équation (A.2), dans le sens où l'on peut alors y négliger la dérivée seconde de l'enveloppe :

$$\left| \frac{\partial^2 \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega)}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_s \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega)}{\partial z} \right|.$$

On obtient alors l'expression suivante pour la dérivée seconde du champ électrique :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_s(z, \omega)}{\partial z^2} = \frac{1}{2} \cdot e^{ik_s z} \cdot \left( 2ik_s \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega)}{\partial z} - k_s^2 \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega) \right) + c.c.$$

et l'équation d'onde non-linéaire dans le domaine spectral (A.7) devient :

$$2ik_s \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega)}{\partial z} + (k_\omega^2 - k_s^2) \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega) = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \tilde{\mathcal{P}}_s^{\text{NL}}(z, \omega). \quad (\text{A.8})$$

### A.3 Dispersion du vecteur d'onde

Dans les milieux dispersifs comme les semi-conducteurs étudiés au cours de ce travail, l'indice de réfraction  $n$  et le vecteur d'onde  $k_\omega$  dépendent de la pulsation  $\omega$ . Lorsque la pulsation  $\omega_s$  est loin de toute résonance dans le milieu, on peut effectuer un développement limité à l'ordre 2 de  $k_\omega$  autour de  $\omega_s$ . Ce dernier est alors donné par l'expression suivante :

$$k_\omega = k_s + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega_s} \cdot (\omega - \omega_s) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_s} \cdot (\omega - \omega_s)^2,$$

soit :

$$k_\omega = k_s + \frac{1}{v_g} \cdot (\omega - \omega_s) + \frac{1}{2} \beta_s \cdot (\omega - \omega_s)^2,$$

avec  $v_g = \left. \frac{\partial \omega}{\partial k} \right|_{\omega_s}$  la vitesse de groupe de l'impulsion optique et  $\beta_s = \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_s}$  la dispersion de la vitesse de groupe autour de  $v_g$ .

On a alors :

$$k_\omega^2 - k_s^2 \approx \frac{2k_s}{v_g} \cdot (\omega - \omega_s) + \left( \frac{1}{v_g^2} + \frac{k_s \cdot \beta_s}{2} \right) \cdot (\omega - \omega_s)^2$$

et l'équation d'onde (A.8) devient, en négligeant la dispersion de la vitesse de groupe :

$$i \frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \cdot (\omega - \omega_s) \tilde{\mathcal{E}}_s(z, \omega) = -\frac{\omega^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \tilde{\mathcal{P}}_s^{\text{NL}}(z, \omega). \quad (\text{A.9})$$

Finalement, le retour dans le domaine temporel permet d'obtenir l'équation suivante pour la fonction enveloppe :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t)}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t)}{\partial t} = \frac{i\omega_s^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(z, t),$$



---

soit, en posant  $t' = t - z/v_g$  :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s^2}{2k_s \epsilon_0 c^2} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(z, t'). \quad (\text{A.10})$$

ou encore :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\omega_s}{2n_s \epsilon_0 c} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(z, t'), \quad (\text{A.11})$$

d'où, avec  $\omega_s = \frac{2\pi c}{\lambda_s}$  :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s(z, t')}{\partial z} = \frac{i\pi}{n_s \epsilon_0 \lambda_s} \mathcal{P}_s^{\text{NL}}(z, t'), \quad (\text{A.12})$$





# Bibliographie

- [1] Damien Bigourd. *Study and detection of atmospheric pollutants in the Terahertz frequency range*. Thèses, Université du Littoral Côte d'Opale, October 2006. Bourse financée par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) et par la région Nord Pas de Calais.
- [2] Kodo Kawase, Yuichi Ogawa, Yuuki Watanabe, and Hiroyuki Inoue. Non-destructive Terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints. *Opt. Express*, 11(20) :2549–2554, Oct 2003.
- [3] S. Wang, B. Ferguson, D. Abbott, and X.-C. Zhang. T-ray imaging and tomography. *Journal of Biological Physics*, 29(2-3) :247–256, 2003.
- [4] Jean-Baptiste Masson, Martin-Pierre Sauviat, Jean-Louis Martin, and Guilhem Gallot. Ionic contrast Terahertz near-field imaging of axonal water fluxes. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 103(13) :4808–4812, 2006.
- [5] P. Mounaix, A. Younus, J. C. Delagnes, E. Abraham, L. Canioni, and M. Fabre. Spectroscopy and Terahertz imaging for sigillography applications. *Journal of the European Optical Society - Rapid publications*, 6, 2011.
- [6] Jean-Pascal Caumes, Ayesha Younus, Simon Salort, Bruno Chassagne, Benoît Recur, Anne Ziéglé, Alain Dautant, and Emmanuel Abraham. Terahertz tomographic imaging of XVIIIth dynasty egyptian sealed pottery. *Appl. Opt.*, 50(20) :3604–3608, Jul 2011.
- [7] J.Bianca Jackson, Julien Labaune, Rozenn Bailleul-Lesuer, Laura D'Alessandro, Alison Whyte, JohnW. Bowen, Michel Menu, and Gerard Mourou. Terahertz pulse imaging in archaeology. *Frontiers of Optoelectronics*, 8(1) :81–92, 2015.
- [8] E. Abraham, A. Younus, J.C. Delagnes, and P. Mounaix. Non-invasive investigation of art paintings by Terahertz imaging. *Applied Physics A*, 100(3) :585–590, 2010.
- [9] Franck Ospald, Wissem Zouathi, René Beigang, Carsten Matheis, Joachim Jonuscheit, Benoît Recur, Jean-Paul Guillet, Patrick Mounaix, Wouter Vleugels, Pablo Venegas Bosom, Laura Vega Gonzalez, Ion Lopez, Rafael Martinez Edo, Yehuda Sternberg, and Marjike Vandewal. Aeronautics composite material inspection with a Terahertz time-domain spectroscopy system. *Optical Engineering*, 53(3) :031208 (1–14), March 2014.
- [10] Fabien Destic. *Imagerie térahertz utilisant des lasers à cascade quantique : application au contrôle non destructif de matériaux*. Thèse de doctorat, Institut supérieur de l'aéronautique et de l'espace, Toulouse, France, 2014.
- [11] Heinrich Rubens and E. F. Nichols. Heat rays of great wavelength. *Phys. Rev. (Series I)*, 4 :314–323, Jan 1897.

- 
- [12] Masayoshi Tonouchi. Cutting-edge Terahertz technology. *Nat Photon*, 1(2) :97–105, February 2007.
- [13] Jean-Louis Coutaz, Laurent Chusseau, and Jean et al. Demaison. *Optoélectronique térahertz*. EDP Sciences, Les Ulis, France, May 2008.
- [14] R A Lewis. A review of Terahertz sources. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 47(37) :374001, 2014.
- [15] S. Casalbuoni, H. Schlarb, B. Schmidt, P. Schmöser, B. Steffen, and A. Winter. Numerical studies on the electro-optic detection of femtosecond electron bunches. *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, 11 :072802, Jul 2008.
- [16] Ziran Wu, Alan S. Fisher, John Goodfellow, Matthias Fuchs, Dan Daranciang, Mark Hogan, Henrik Loos, and Aaron Lindenberg. Intense Terahertz pulses from SLAC electron beams using coherent transition radiation. *Review of Scientific Instruments*, 84(2) :022701, 2013.
- [17] Carlo Vicario, Balazs Monoszlai, and Christoph P. Hauri. GV/m single-cycle terahertz fields from a laser-driven large-size partitioned organic crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 112 :213901, May 2014.
- [18] Carlo Vicario, Andrey Ovchinnikov, Sergey Ashitkov, S. I. Agranat, Vladimir E. Fortov, and Christoph P. Hauri. Generation of mJ THz pulses in organic crystal pumped by a Cr :Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> laser. In *CLEO : 2015*, page SM2H.2. Optical Society of America, 2015.
- [19] T. I. Oh, Y. J. Yoo, Y. S. You, and K. Y. Kim. Generation of strong Terahertz fields exceeding 8 MV/cm at 1kHz and real-time beam profiling. *Applied Physics Letters*, 105(4) :041103, 2014.
- [20] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka. Single-cycle Terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO<sub>3</sub>. *Applied Physics Letters*, 98(9) :091106, 2011.
- [21] D.J. Paul. The progress towards Terahertz quantum cascade lasers on silicon substrates. *Laser & Photonics Reviews*, 4(5) :610–632, 2010.
- [22] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736) :493–494, August 1960.
- [23] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7 :118–119, Aug 1961.
- [24] Kevin F. Lee, Kevin J. Kubarych, Adeline Bonvalet, and Manuel Joffre. Characterization of mid-infrared femtosecond pulses - invited. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(6) :A54–A62, Jun 2008.
- [25] Harold Y. Hwang, Sharly Fleischer, Nathaniel C. Brandt, Bradford G. Perkins, Mengkun Liu, Kebin Fan, Aaron Sternbach, Xin Zhang, Richard D. Averitt, and Keith A. Nelson. A review of non-linear Terahertz spectroscopy with ultrashort tabletop-laser pulses. *Journal of Modern Optics*, pages 1–33, 2014.
- [26] Dmitry Turchinovich, Jørn M. Hvam, and Matthias C. Hoffmann. Self-phase modulation of a single-cycle Terahertz pulse by nonlinear free-carrier response in a semiconductor. *Phys. Rev. B*, 85 :201304, May 2012.
- [27] I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka. Ferroelectric soft mode in a SrTiO<sub>3</sub> thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :097401, Feb 2012.

- 
- [28] János Hebling, Ka-Lo Yeh, Matthias C. Hoffmann, and Keith A. Nelson. High-power terahertz generation, terahertz nonlinear optics and terahertz nonlinear spectroscopy. *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page CFZ4, 2008.
- [29] K. Tanaka, H. Hirori, and M. Nagai. Terahertz nonlinear spectroscopy of solids. *Terahertz Science and Technology, IEEE Transactions on*, 1(1) :301–312, Sept 2011.
- [30] H. Hirori and K. Tanaka. Nonlinear optical phenomena induced by intense single-cycle terahertz pulses. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 19(1) :8401110–8401110, 2013.
- [31] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka. Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse. *Nat Commun*, 2 :594, December 2011.
- [32] Matthias C. Hoffmann, János Hebling, Harold Y. Hwang, Ka-Lo Yeh, and Keith A. Nelson. Terahertz-pump/terahertz-probe spectroscopy of semiconductors at high field strengths - invited. *J. Opt. Soc. Am. B*, 26(9) :A29–A34, Sep 2009.
- [33] J. Hebling, Matthias C. Hoffmann, Harold Y. Hwang, Ka-Lo Yeh, and Keith A. Nelson. Nonlinear optical effects in germanium in the Terahertz range : Terahertz-pump - Terahertz-probe measurement of carrier dynamics. In *Ultrafast Phenomena XVI : Proceedings of the 16th International Conference, Palazzo dei Congressi Stresa, Italy, June 9–13, 2008*. Springer Science & Business Media, 2010.
- [34] Matthias C. Hoffmann, János Hebling, Harold Y. Hwang, Ka-Lo Yeh, and Keith A. Nelson. Impact ionization in InSb probed by Terahertz pump - Terahertz probe spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 79 :161201, Apr 2009.
- [35] János Hebling, Matthias C. Hoffmann, Harold Y. Hwang, Ka-Lo Yeh, and Keith A. Nelson. Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si, and GaAs by terahertz pump-terahertz probe measurements. *Phys. Rev. B*, 81 :035201, Jan 2010.
- [36] Harold Y. Hwang, Nathaniel C. Brandt, Hootan Farhat, Allen L. Hsu, Jing Kong, and Keith A. Nelson. Nonlinear thz conductivity dynamics in p-type cvd-grown graphene. *The Journal of Physical Chemistry B*, 117(49) :15819–15824, 2013. PMID : 24102144.
- [37] Yuzhen Shen, G. L. Carr, James B. Murphy, Thomas Y. Tsang, Xijie Wang, and Xi Yang. Spatiotemporal control of ultrashort laser pulses using intense single-cycle Terahertz pulses. *Phys. Rev. A*, 78 :043813, Oct 2008.
- [38] Ibraheem Al-Naib, J. E. Sipe, and Marc M. Dignam. High harmonic generation in undoped graphene : Interplay of inter- and intraband dynamics. *Phys. Rev. B*, 90 :245423, Dec 2014.
- [39] S. Linden, H. Giessen, and J. Kuhl. XFROG : A new method for amplitude and phase characterization of weak ultrashort pulses. *Physica Status Solidi (b)*, 206(1) :119–124, 1998.
- [40] Ajay Nahata and Tony F. Heinz. Detection of freely propagating Terahertz radiation by use of optical second-harmonic generation. *Opt. Lett.*, 23(1) :67–69, Jan 1998.
- [41] Matthias C. Hoffmann, Ka-Lo Yeh, János Hebling, and Keith A. Nelson. Efficient Terahertz generation by optical rectification at 1035 nm. *Opt. Express*, 15(18) :11706–11713, Sep 2007.
- [42] Matthias C Hoffmann and Jozsef Andreas Fulops. Intense ultrashort Terahertz pulses : generation and applications. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 44(8) :083001, 2011.
- [43] S. Vidal, J. Degert, M. Tondusson, J. Oberlé, and E. Freysz. Impact of dispersion, free carriers, and two-photon absorption on the generation of intense Terahertz pulses in ZnTe crystals. *Applied Physics Letters*, 98(19) :191103, 2011.

- 
- [44] Dinesnaddegaard Erschens, Dmitry Turchinovich, and Peter Uhd Jepsen. Optimized optical rectification and electro-optic sampling in ZnTe crystals with chirped femtosecond laser pulses. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 32(12) :1371–1381, 2011.
- [45] J. A. Fülöp, L. Palfalvi, G. Almasi, and J. Hebling. Design of high-energy Terahertz sources based on optical rectification. *Opt. Express*, 18(12) :12311–12327, Jun 2010.
- [46] János Hebling, Ka-Lo Yeh, Matthias C. Hoffmann, Balázs Bartal, and Keith A. Nelson. Generation of high-power Terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(7) :B6–B19, Jul 2008.
- [47] 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  $\mu\text{J}$  single-cycle Terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal. *Opt. Express*, 15(20) :13212–13220, Oct 2007.
- [48] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 Terahertz. *Applied Physics Letters*, 76(22) :3191–3193, 2000.
- [49] L. Palfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, A. Peter, and K. Polgar. Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> in the Terahertz range. *Journal of Applied Physics*, 97(12) :123505, 2005.
- [50] F. Blanchard, B. E. Schmidt, X. Ropagnol, N. Thiré, T. Ozaki, R. Morandotti, D. G. Cooke, and F. Légaré. Terahertz pulse generation from bulk GaAs by a tilted-pulse-front excitation at 1.8  $\mu\text{m}$ . *Applied Physics Letters*, 105(24) :241106, 2014.
- [51] Janos Hebling, Gabor Almasi, Ida Kozma, and Jurgen Kuhl. Velocity matching by pulse front tilting for large area Terahertz-pulse generation. *Opt. Express*, 10(21) :1161–1166, Oct 2002.
- [52] Andrei G. Stepanov, Janos Hebling, and Jurgen Kuhl. Efficient generation of subpicosecond Terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts. *Applied Physics Letters*, 83(15) :3000–3002, 2003.
- [53] A. Stepanov, J. Kuhl, I. Kozma, E. Riedle, G. Almási, and J. Hebling. Scaling up the energy of terahertz pulses created by optical rectification. *Opt. Express*, 13(15) :5762–5768, Jul 2005.
- [54] K. Reimann, R. P. Smith, A. M. Weiner, T. Elsaesser, and M. Woerner. Direct field-resolved detection of Terahertz transients with amplitudes of MV/cm. *Opt. Lett.*, 28(6) :471–473, Mar 2003.
- [55] Daryoosh Saeedkia and Safieddin Safavi-Naeini. Terahertz photonics : Optoelectronic techniques for generation and detection of terahertz waves. *J. Lightwave Technol.*, 26(15) :2409–2423, Aug 2008.
- [56] Nick C. J. van der Valk, Paul C. M. Planken, Anton N. Buijserd, and Huib J. Bakker. Influence of pump wavelength and crystal length on the phase matching of optical rectification. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(8) :1714–1718, Aug 2005.
- [57] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :2725–2728, Oct 1993.
- [58] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone. Short-pulse Terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas. *Phys. Rev. E*, 49 :671–677, Jan 1994.

- 
- [59] H.G. Roskos, M.D. Thomson, M. Krey, and T. Laffler. Broadband terahertz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses : From fundamentals to applications. *Laser & Photonics Reviews*, 1(4) :349–368, 2007.
- [60] D. J. Cook and R. M. Hochstrasser. Intense Terahertz pulses by four-wave rectification in air. *Opt. Lett.*, 25(16) :1210–1212, Aug 2000.
- [61] Markus Kress, Torsten Löffler, Susanne Eden, Mark Thomson, and Hartmut G. Roskos. Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves. *Opt. Lett.*, 29(10) :1120–1122, May 2004.
- [62] T. Bartel, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, and T. Elsaesser. Generation of single-cycle Terahertz transients with high electric-field amplitudes. *Opt. Lett.*, 30(20) :2805–2807, Oct. 2005.
- [63] Ki-Yong Kim, James H. Glowina, Antoinette J. Taylor, and George Rodriguez. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields. *Opt. Express*, 15(8) :4577–4584, Apr 2007.
- [64] Mark D. Thomson, Volker Blank, and Hartmut G. Roskos. Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields. *Opt. Express*, 18(22) :23173–23182, Oct 2010.
- [65] George Rodriguez and Georgi L. Dakovski. Scaling behavior of ultrafast two-color Terahertz generation in plasma gas targets : energy and pressure dependence. *Opt. Express*, 18(14) :15130–15143, Jul 2010.
- [66] Min Li, Wenxue Li, Yi Shi, Peifen Lu, Haifeng Pan, and Heping Zeng. Verification of the physical mechanism of Terahertz generation by dual-color ultrashort laser pulses. *Applied Physics Letters*, 101(16) :161104, 2012.
- [67] Yasuo Minami, Takayuki Kurihara, Keita Yamaguchi, Makoto Nakajima, and Tohru Suetomo. High-power Terahertz wave generation in plasma induced by polarization adjusted two-color laser pulses. *Applied Physics Letters*, 102(4) :041105, 2013.
- [68] J. Hebling, A.G. Stepanov, G. Almajsi, B. Bartal, and J. Kuhl. Tunable terahertz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts. *Applied Physics B*, 78 :593–599, 2004.
- [69] A.G. Stepanov, J. Hebling, and J. Kuhl. Terahertz generation via optical rectification with ultrashort laser pulse focused to a line. *Applied Physics B*, 81 :23–26, 2005.
- [70] K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and Keith A. Nelson. Generation of 10  $\mu$ J ultrashort Terahertz pulses by optical rectification. *Applied Physics Letters*, 90(17) :171121, 2007.
- [71] Ka-Lo Yeh, Janos Hebling, Matthias C. Hoffmann, and Keith A. Nelson. Generation of high average power 1 kHz shaped terahertz pulses via optical rectification. *Optics Communications*, 281(13) :3567 – 3570, 2008.
- [72] Masaya Nagai, Mukesh Jewariya, Yuki Ichikawa, Hideyuki Ohtake, Toshiharu Sugiura, Yuzuru Uehara, and Koichiro Tanaka. Broadband and high power Terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via  $\chi^{(2)}$  cascaded processes in LiNbO<sub>3</sub>. *Opt. Express*, 17(14) :11543–11549, Jul 2009.
- [73] Masaya Nagai, Eiichi Matsubara, and Masaaki Ashida. High-efficiency Terahertz pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated raman scattering process. *Opt. Express*, 20(6) :6509–6514, Mar 2012.



- 
- [74] J. A. Fulop, L. Palfalvi, S. Klingebiel, G. Almasi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling. Generation of sub-mJ Terahertz pulses by optical rectification. *Opt. Lett.*, 37(4) :557–559, Feb 2012.
- [75] C. Vicario, B. Monoszlai, Cs. Lombosi, A. Mareczko, A. Courjaud, J. A. Fülöp, and C. P. Hauri. Pump pulse width and temperature effects in lithium niobate for efficient terahertz generation. *Opt. Lett.*, 38(24) :5373–5376, Dec 2013.
- [76] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, Cs. Lombosi, C. Skrobol, S. Klingebiel, L. Palfalvi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling. Efficient generation of Terahertz pulses with 0.4 mJ energy. *Opt. Express*, 22(17) :20155–20163, Aug 2014.
- [77] W. Ronny Huang, Shu-Wei Huang, Eduardo Granados, Koustuban Ravi, Kyung-Han Hong, Luis E. Zapata, and Franz X. Kartner. Highly efficient Terahertz pulse generation by optical rectification in stoichiometric and cryo-cooled congruent lithium niobate. *Journal of Modern Optics*, pages 1–8, 2014.
- [78] Yoshihiro Ochi, Keisuke Nagashima, Momoko Maruyama, Masaaki Tsubouchi, Fumiko Yoshida, Nanase Kohno, Michiaki Mori, and Akira Sugiyama. Yb :Yag thin-disk chirped pulse amplification laser system for intense Terahertz pulse generation. *Opt. Express*, 23(11) :15057–15064, Jun 2015.
- [79] A. Barker and R. Loudon. Dielectric properties and optical phonons in lithium niobate. *Phys. Rev.*, 158 :433–445, Jun 1967.
- [80] B. Bartal, I.Z. Kozma, A.G. Stepanov, G. Almajsi, J. Kuhl, E. Riedle, and J. Hebling. Toward generation of  $\mu\text{J}$  range sub-ps Terahertz pulses by optical rectification. *Applied Physics B*, 86(3) :419–423, 2007.
- [81] Koustuban Ravi, Wenqian Ronny Huang, Sergio Carbajo, Emilio A. Nanni, Damian N. Schimpf, Erich P. Ippen, and Franz. X. Kärtner. Theory of Terahertz generation by optical rectification using tilted-pulse-fronts. *Opt. Express*, 23(4) :5253–5276, Feb 2015.
- [82] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition*. Academic Press, Amsterdam ; Boston, third edition, 2008.
- [83] Jozsef Andreas Fülöp, Laszlo Palfalvi, Matthias C. Hoffmann, and Janos Hebling. Towards generation of mJ-level ultrashort Terahertz pulses by optical rectification. *Opt. Express*, 19(16) :15090–15097, Aug 2011.
- [84] Sébastien Vidal. *Étude théorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d’impulsions térahertz*. PhD thesis, Université de Bordeaux 1, 2009.
- [85] Maksim Kunitski, Martin Richter, Mark D. Thomson, Arno Vredenburg, Jian Wu, Till Jahnke, Markus Schöffler, Horst Schmidt-Böcking, Hartmut G. Roskos, and Reinhard Dörner. Optimization of single-cycle Terahertz generation in  $\text{LiNbO}_3$  for sub-50 femtosecond pump pulses. *Opt. Express*, 21(6) :6826–6836, Mar 2013.
- [86] Zoltan Ollmann, Janos Hebling, and Gabor Almasi. Design of a contact grating setup for mJ-energy Terahertz pulse generation by optical rectification. *Applied Physics B*, 108 :821–826, 2012.
- [87] Yasuo Minami, Yusuke Hayashi, Jun Takeda, and Ikufumi Katayama. Single-shot measurement of a Terahertz electric-field waveform using a reflective echelon mirror. *Applied Physics Letters*, 103(5) :051103, 2013.
- [88] Z. Ollmann, J.A. Fülöp, J. Hebling, and G. Almajsi. Design of a high-energy Terahertz pulse source based on ZnTe contact grating. *Optics Communications*, 315(0) :159 – 163, 2014.

- 
- [89] David E. Zelmon, David L. Small, and Dieter Jundt. Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol.% magnesium oxide -doped lithium niobate. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(12) :3319 – 3322, Dec 1997.
- [90] G. Gallot and D. Grischkowsky. Electro-optic detection of Terahertz radiation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(8) :1204–1212, Aug 1999.
- [91] Keldysh LV. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *JETP*, 20 :1307, 1965.
- [92] Vladimir S Popov. Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (Keldysh theory). *Physics-Uspekhi*, 47(9) :855, 2004.
- [93] Xu Xie, Jianming Dai, and X.-C. Zhang. Coherent control of terahertz wave generation in ambient air. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :075005, Feb 2006.
- [94] A. Zaïr. *Production et caractérisation d'impulsions attosecondes VUV par génération d'harmoniques d'ordre élevé*. PhD thesis, Université de Bordeaux 1, 2006.
- [95] Jianming Dai, Xu Xie, and X.-C. Zhang. Detection of broadband terahertz waves with a laser-induced plasma in gases. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :103903, Sept 2006.
- [96] K Kim, Taylor A. J., Glowina J. H., and Rodriguez G. Coherent control of Terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions. *Nat Photon*, 2(10) :605–609, October 2008.
- [97] N. Karpowicz and X.-C. Zhang. Coherent terahertz echo of tunnel ionization in gases. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :093001, Mar 2009.
- [98] Nicholas Karpowicz, Xiaofei Lu, and X.-C. Zhang. Terahertz gas photonics. *Journal of Modern Optics*, 56(10) :1137–1150, 2009.
- [99] Aurélien Houard, Yi Liu, Bernard Prade, and André Mysyrowicz. Polarization analysis of Terahertz radiation generated by four-wave mixing in air. *Opt. Lett.*, 33(11) :1195–1197, Jun 2008.
- [100] Shojiro Nemoto. Determination of waist parameters of a gaussian beam. *Appl. Opt.*, 25(21) :3859–3863, Nov 1986.
- [101] Anthony E. Siegman, M.W. Sasnett, and T.F. Johnston. Choice of clip levels for beam width measurements using knife-edge techniques. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 27(4) :1098–1104, Apr 1991.
- [102] Moussa Gueye. Sources térahertz intenses et optique non linéaire. Master's thesis, Master 2 Professionnel - Signal & Imagerie, 2012.
- [103] F. Blanchard, Gargi Sharma, L. Razzari, X. Ropagnol, H.-C. Bandulet, F. Vidal, Roberto Morandotti, J. Kieffer, Tsuneyuki Ozaki, H. Tiedje, H. Haugen, M. Reid, and F. Hegmann. Generation of intense terahertz radiation via optical methods. *Selected Topics in IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17(1) :5–16, Jan 2011.
- [104] D.H. Auston and M.C. Nuss. Electro-optical generation and detection of femtosecond electrical transients. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(2) :184–197, Feb 1988.
- [105] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar. Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses. *Opt. Lett.*, 18(4) :290–292, Feb 1993.
- [106] M. Joffre, A. Bonvalet, A. Migus, and J.-L. Martin. Femtosecond diffracting Fourier-transform infrared interferometer. *Opt. Lett.*, 21(13) :964–966, Jul 1996.
- [107] Marcel J. E. Golay. Theoretical consideration in heat and infrared detection, with particular reference to the pneumatic detector. *Review of Scientific Instruments*, 18(5) :347–356, 1947.

- 
- [108] D. Saeedkia. *Handbook of Terahertz technology for imaging, sensing, and communications*. Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Material, 2013.
- [109] Masaaki Ashida. Ultra-broadband terahertz wave detection using photoconductive antenna. *Japanese Journal of Applied Physics*, 47(10) :8221, 2008.
- [110] Jianming Dai, Jingle Liu, and Xi-Cheng Zhang. Terahertz wave air photonics : Terahertz wave generation and detection with laser-induced gas plasma. *Selected Topics in IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17(1) :183–190, 2011.
- [111] Nicholas Karpowicz, Jianming Dai, Xiaofei Lu, Yunqing Chen, Masashi Yamaguchi, Hongwei Zhao, X.-C. Zhang, Liangliang Zhang, Cunlin Zhang, Matthew Price-Gallagher, Clark Fletcher, Orval Mamer, Alain Lesimple, and Keith Johnson. Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire "terahertz gap". *Applied Physics Letters*, 92(1) :011131, 2008.
- [112] Hu Wang, Kejia Wang, Jinsong Liu, Houmei Dai, and Zhengang Yang. Theoretical research on Terahertz air-breakdown coherent detection with the transient photocurrent model. *Opt. Express*, 20(17) :19264–19270, Aug 2012.
- [113] Q. Wu and X.-C. Zhang. Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses. *Applied Physics Letters*, 71(10) :1285–1286, 1997.
- [114] Fabian D. J. Brunner, Jeremy A. Johnson, Sebastian Gröbel, Andrés Ferrer, Steven L. Johnson, and Thomas Feurer. Distortion-free enhancement of Terahertz signals measured by electro-optic sampling. I. Theory. *J. Opt. Soc. Am. B*, 31(4) :904–910, Apr 2014.
- [115] Jeremy A. Johnson, Fabian D. J. Brunner, Sebastian Gröbel, Andrés Ferrer, Steven L. Johnson, and Thomas Feurer. Distortion-free enhancement of Terahertz signals measured by electro-optic sampling. II. Experiment. *J. Opt. Soc. Am. B*, 31(5) :1035–1040, May 2014.
- [116] Zhiping Jiang and X.-C. Zhang. Electro-optic measurement of Terahertz field pulses with a chirped optical beam. *Applied Physics Letters*, 72(16) :1945–1947, Apr 1998.
- [117] José Philippe Pérez. *Optique, fondements et applications*. Masson, 1996.
- [118] G. D. Boyd and M. A. Pollack. Microwave nonlinearities in anisotropic dielectrics and their relation to optical and electro-optical nonlinearities. *Phys. Rev. B*, 7 :5345–5359, Jun 1973.
- [119] Michel Aillerie. *Étude comparée des méthodes de mesure des coefficients électro-optiques : application au LiNbO<sub>3</sub>*. Metz, January 1991.
- [120] Amnon Yariv and Pochi Yeh. *Photonics : Optical Electronics in Modern Communications*. Oxford University Press, New York, 6 edition edition, January 2006.
- [121] Q. Wu and X.-C. Zhang. Ultrafast electro-optic field sensors. *Applied Physics Letters*, 68(12) :1604–1606, 1996.
- [122] B. Monozslai, C. Vicario, M. Jazbinsek, and C. P. Hauri. High-energy Terahertz pulses from organic crystals : DAST and DSTMS pumped at Ti :sapphire wavelength. *Opt. Lett.*, 38(23) :5106–5109, Dec 2013.
- [123] Jasprit Singh. *Physics of semiconductors and their heterostructures*. McGraw-Hill (New-York), 1993.
- [124] A. S. Barker. Dielectric dispersion and phonon line shape in gallium phosphide. *Phys. Rev.*, 165 :917–922, Jan 1968.
- [125] J.J Carey. *Near-Field Effects of Terahertz Pulses*. PhD thesis, University of Strathclyde, 2002.

- 
- [126] G. Gallot, Jiangquan Zhang, R. W. McGowan, Tae-In Jeon, and D. Grischkowsky. Measurements of the Terahertz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of Terahertz radiation. *Applied Physics Letters*, 74(23) :3450–3452, 1999.
- [127] D. T. F. Marple. Refractive index of ZnSe, ZnTe, and CdTe. *Journal of Applied Physics*, 35(3) :539–542, 1964.
- [128] F. L. Madarasz, J. O. Dimmock, N. Dietz, and K. J. Bachmann. Sellmeier parameters for ZnGaP<sub>2</sub> and GaP. *Journal of Applied Physics*, 87(3) :1564–1565, 2000.
- [129] Daniel Dietze, Karl Unterrainer, and Juraj Darmo. Dynamically phase-matched Terahertz generation. *Opt. Lett.*, 37(6) :1047–1049, Mar 2012.
- [130] M. Schall and P. Uhd Jepsen. Above-band gap two-photon absorption and its influence on ultrafast carrier dynamics in ZnTe and CdTe. *Applied Physics Letters*, 80(25) :4771–4773, 2002.
- [131] Q. Wu and X.-C. Zhang. 7 Terahertz broadband gap electro-optic sensor. *Applied Physics Letters*, 70(14) :1784–1786, 1997.
- [132] Q. Chen, M. Tani, Zhiping Jiang, and X.-C. Zhang. Electro-optic transceivers for Terahertz-wave applications. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(6) :823–831, Jun 2001.
- [133] Q. Wu and X.-C. Zhang. Free-space electro-optic sampling of Terahertz beams. *Applied Physics Letters*, 67(24) :3523–3525, 1995.
- [134] Natsuki Nemoto, Takuya Higuchi, Natsuki Kanda, Kuniaki Konishi, and Makoto Kuwata-Gonokami. Highly precise and accurate Terahertz polarization measurements based on electro-optic sampling with polarization modulation of probe pulses. *Opt. Express*, 22(15) :17915–17929, Jul 2014.
- [135] Q. Wu, M. Litz, and X.-C. Zhang. Broadband detection capability of ZnTe electro-optic field detectors. *Applied Physics Letters*, 68(21) :2924–2926, 1996.
- [136] 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*, 74(11) :1516–1518, 1999.
- [137] Paul C. M. Planken, Han-Kwang Nienhuys, Huib J. Bakker, and Tom Wenckebach. Measurement and calculation of the orientation dependence of Terahertz pulse detection in ZnTe. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(3) :313–317, Mar 2001.
- [138] Nick C. J. van der Valk, Tom Wenckebach, and Paul C. M. Planken. Full mathematical description of electro-optic detection in optically isotropic crystals. *J. Opt. Soc. Am. B*, 21(3) :622–631, Mar 2004.
- [139] B. Pradarutti, G. Matthaus, C. Bruckner, J. Limpert, S. Riehemann, G. Notni, S. Nolte, and A. Tannermann. Electrooptical sampling of ultra-short terahertz pulses by fs-laser pulses at 1060nm. *Applied Physics B*, 85(1) :59–62, 2006.
- [140] Masahiko Tani, Kazuki Horita, Tetsuya Kinoshita, Christopher T. Que, Elmer Estacio, Kohji Yamamoto, and Michael I. Bakunov. Efficient electro-optic sampling detection of Terahertz radiation via Cherenkov phase matching. *Opt. Express*, 19(21) :19901–19906, Oct 2011.
- [141] M. Brunken, H. Genz, C. Hessler, H. Loos, A. Richter, P. Göttlicher, M. Hüning, H. Schlarb, S. Simrock, P. Schmüser, and D. Suetterlin. Electro-optic sampling at the TESLA Test Accelerator : Experimental setup and first results. Technical report, TU Darmstadt, DESY, Univ. Hamburg, PSI, RWTH Aachen, 2003.

- 
- [142] P.N. Butcher and D. Cotter. *The Elements of Nonlinear Optics*. Cambridge Studies in Modern Optics. Cambridge University Press, 1991.
- [143] Annie Le Calvez. *Etude par des méthodes d'optique non linéaires de milieux semi-organisés (cristaux liquides et films Langmuir-Blodgett) et amorphes (verres polis)*. PhD thesis, Université Bordeaux I, 1997. Thèse de doctorat dirigée par Freysz, Éric.
- [144] Sébastien Montant. *Etude des non linéarités optiques d'ordre deux et trois de verres*. PhD thesis, Université Bordeaux I, 1999. Thèse de doctorat dirigée par Freysz, Eric.
- [145] Minhaeng Cho, Mei Du, Norbert F. Scherer, Graham R. Fleming, and Shaul Mukamel. Off-resonant transient birefringence in liquids. *The Journal of Chemical Physics*, 99(4) :2410–2428, 1993.
- [146] C.A. Gautier, J.C. Loulergue, and J. Etchepare. Homodyne and heterodyne impulsive Raman Kerr nonlinearities in crystals : Application to E-symmetry polariton modes in PbTiO<sub>3</sub>. *Solid State Communications*, 100(3) :133 – 136, 1996.
- [147] Y. Shen, T. Watanabe, D. A. Arena, C.-C. Kao, J. B. Murphy, T. Y. Tsang, X. J. Wang, and G. L. Carr. Nonlinear cross-phase modulation with intense single-cycle terahertz pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :043901, Jul 2007.
- [148] Rick Trebino, Kenneth W. DeLong, David N. Fittinghoff, John N. Sweetser, Marco A. Krumbiegel, Bruce A. Richman, and Daniel J. Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Review of Scientific Instruments*, 68(9) :3277–3295, 1997.
- [149] Baatarchuluun Tsermaa, Byung-Kwan Yang, Myung-Whun Kim, and Jin-Seung Kim. Characterization of supercontinuum and ultraviolet pulses by using XFROG. *J. Opt. Soc. Korea*, 13(1) :158–165, Mar 2009.
- [150] D. T. Reid, P. Loza-Alvarez, C. T. A. Brown, T. Beddard, and W. Sibbett. Amplitude and phase measurement of mid-infrared femtosecond pulses by using cross-correlation frequency-resolved optical gating. *Opt. Lett.*, 25(19) :1478–1480, Oct 2000.
- [151] Max Born, Emil Wolf, A. B. Bhatia, P. C. Clemmow, D. Gabor, A. R. Stokes, A. M. Taylor, P. A. Wayman, and W. L. Wilcock. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge University Press, Cambridge ; New York, 7 edition, October 1999.
- [152] Ajay Nahata, Aniruddha S. Weling, and Tony F. Heinz. A wideband coherent Terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling. *Applied Physics Letters*, 69(16) :2321–2323, 1996.
- [153] Stefan Linden, Jürgen Kuhl, and Harald Giessen. Xfrog<sup>o</sup>cross-correlation frequency-resolved optical gating. In *Frequency-Resolved Optical Gating : The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*, pages 313–322. Springer US, 2000.
- [154] J.C. Diels, W. Rudolph, P.F. Liao, and P. Kelley. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Optics and photonics. Elsevier Science, 2006.
- [155] D.J. Kane and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 29(2) :571–579, Feb 1993.
- [156] Rick Trebino. *Frequency-Resolved Optical Gating : The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Springer US, Boston, MA, 2000.
- [157] R. W. Terhune, P. D. Maker, and C. M. Savage. Optical harmonic generation in calcite. *Phys. Rev. Lett.*, 8 :404–406, May 1962.

- 
- [158] Tony F Heinz. Second-order nonlinear optical effects at surfaces and interfaces. *Nonlinear surface electromagnetic phenomena*, pages 353–416, 1991.
- [159] B. F. Levine and C. G. Bethea. Second and third order hyperpolarizabilities of organic molecules. *The Journal of Chemical Physics*, 63(6) :2666–2682, 1975.
- [160] Hamzeh M. Abdel-Halim. Electric field induced second harmonic generation : Second and third-order hyperpolarizabilities of 4-amino-4-nitrodiphenyl sulfoxide. *The Journal of Chemical Physics*, 119(1) :484–487, 2003.
- [161] D.J. Cook, J.X. Chen, E.A. Morlino, and R.M. Hochstrasser. Terahertz-field-induced second-harmonic generation measurements of liquid dynamics. *Chemical Physics Letters*, 309 :221 – 228, 1999.
- [162] G. Kaur and X-C Zhang. Terahertz field induced second harmonic generation in biomolecules. In *Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-Terahertz), 2011 36th International Conference on*, page 1, 2011.
- [163] Jian Chen, Pengyu Han, and X.-C. Zhang. Terahertz-field-induced second-harmonic generation in a beta barium borate crystal and its application in Terahertz detection. *Applied Physics Letters*, 95(1) :011118, 2009.
- [164] L. Ward. Zinc selenide, zinc telluride. In Edward D. Palik, editor, *Handbook of Optical Constants of Solids*, pages 737–758. Academic Press, Burlington, 1997.
- [165] Jean-Pascal Caumes. *Caractérisation de l'indice non linéaire induit en présence de génération de ssecond harmonique ou de redressement optique : application à la compensation de l'intégrale de rupture*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2002.
- [166] Christian Kolléck. Cascaded second-order contribution to the third-order nonlinear susceptibility. *Phys. Rev. A*, 69 :053812, May 2004.
- [167] G. Schreiber, H. Suche, Y.L. Lee, W. Grundkatter, V. Quiring, R. Ricken, and W. Sohler. Efficient cascaded difference frequency conversion in periodically poled Ti : LiNbO<sub>3</sub> waveguides using pulsed and CW pumping. *Applied Physics B*, 73(5-6) :501–504, 2001.
- [168] Mukesh Jewariya, Masaya Nagai, and Koichiro Tanaka. Enhancement of Terahertz wave generation by cascaded  $\chi^{(2)}$  processes in LiNbO<sub>3</sub>. *J. Opt. Soc. Am. B*, 26(9) :A101–A106, Sep 2009.
- [169] Manuel Cardona and Gunther Harbeke. Absorption spectrum of germanium and zinc-blende type materials at energies higher than the fundamental absorption edge. *Journal of Applied Physics*, 34(4) :813–818, 1963.
- [170] Zhao Zhen-Yu, Hameau Sophie, and Tignon Jérôme. Terahertz generation by optical rectification and competition with other nonlinear processes. *Chinese Physics Letters*, 25(5) :1868, 2008.
- [171] J-P. Caumes, L. Videau, C. Rouyer, and E. Freysz. Kerr-like nonlinearity induced via terahertz generation and the electro-optical effect in zinc blende crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :047401, Jul 2002.
- [172] Konstantin L. Vodopyanov, Yun-Shik Lee, Vladimir G. Kozlov, and Martin M. Fejer. Generation of Terahertz radiation in orientation-patterned semiconductors. *Patent*, US7339718 B1(US7339718 B1), March 2008. U.S. Classification 359/326, 359/330; International Classification G02F1/35, G02F2/02; Cooperative Classification G02F1/3558, G02F1/39, G02F2203/13; European Classification G02F1/39.

- 
- [173] Walter C. Hurlbut. *The Nonlinear Optical Properties of Gallium Arsenide Pertaining to Terahertz Generation*. ProQuest, 2007.
- [174] Z. Yang, L. Mutter, M. Stillhart, B. Ruiz, S. Aravazhi, M. Jazbinsek, A. Schneider, V. Gramlich, and P. Günter. Large-size bulk and thin-film stilbazolium-salt single crystals for nonlinear optics and terahertz generation. *Advanced Functional Materials*, 17(13) :2018–2023, 2007.
- [175] P. Weinberger. John Kerr and his effects found in 1877 and 1878. *Philosophical Magazine Letters*, 88(12) :897–907, 2008.
- [176] P. D. Maker, R. W. Terhune, and C. M. Savage. Intensity-dependent changes in the refractive index of liquids. *Phys. Rev. Lett.*, 12 :507–509, May 1964.
- [177] J. Rolle. *Study of a dynamical plasma response in laser filamentation induced in silica glasses in presence of stimulated Brillouin scattering and in KDP crystals*. Thèses, Université Paris Sud - Paris XI, September 2014.
- [178] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett. 60-fs pulse generation from a self-mode-locked Ti :sapphire laser. *Opt. Lett.*, 16(1) :42–44, Jan 1991.
- [179] Akira Hasegawa and Frederick Tappert. Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. I. Anomalous dispersion. *Applied Physics Letters*, 23(3) :142–144, 1973.
- [180] Akira Hasegawa and Frederick Tappert. Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. II. Normal dispersion. *Applied Physics Letters*, 23(4) :171–172, 1973.
- [181] Sergei V Chekalin and Valeriy P Kandidov. From self-focusing light beams to femtosecond laser pulse filamentation. *Physics-Uspekhi*, 56(2) :123, 2013.
- [182] Matthias C. Hoffmann, Nathaniel C. Brandt, Harold Y. Hwang, Ka-Lo Yeh, and Keith A. Nelson. Terahertz Kerr effect. *Applied Physics Letters*, 95(23) :231105, 2009.
- [183] Harold Y. Hwang, Matthias C. Hoffmann, Nathaniel C. Brandt, and Keith A. Nelson. Terahertz Kerr effect in relaxor ferroelectrics. In *International Conference on Ultrafast Phenomena*, page ThE41. Optical Society of America, 2010.
- [184] M. Zalkovskij, A. C. Strikwerda, K. Iwaszczuk, A. Popescu, D. Savastru, R. Malureanu, A. V. Lavrinenko, and P. U. Jepsen. Terahertz-induced Kerr effect in amorphous chalcogenide glasses. *Applied Physics Letters*, 103(22) :221102, 2013.
- [185] Sergey B. Bodrov, Aleksey A. Murzanev, Yury A. Sergeev, Yury A. Malkov, and Andrey N. Stepanov. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes. *Applied Physics Letters*, 103(25) :251103, 2013.
- [186] Ch. Bosshard, R. Spreiter, M. Zgonik, and P. Günter. Kerr nonlinearity via cascaded optical rectification and the linear electro-optic effect. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :2816–2819, Apr 1995.
- [187] Wei-Qiang He, Chun-Ming Gu, and Wen-Zhong Shen. Direct evidence of Kerr-like nonlinearity by femtosecond Z-scan technique. *Opt. Express*, 14(12) :5476–5483, Jun 2006.
- [188] Zhen Tian, Changlei Wang, Qirong Xing, Jianqiang Gu, Yanfeng Li, Mingxia He, Lu Chai, Qingyue Wang, and Weili Zhang. Quantitative analysis of Kerr nonlinearity and Kerr-like nonlinearity induced via Terahertz generation in ZnTe. *Applied Physics Letters*, 92(4) :041106, 2008.
- [189] X.C. Zhang, Y. Jin, and X. F. Ma. Coherent measurement of terahertz optical rectification from electro-optic crystals. *Applied Physics Letters*, 61(23) :2764–2766, 1992.

- 
- [190] Xiaoshu Chen, Shan He, Zhen Shen, Fu Li Zhao, K. Y. Xu, Gang Wang, Reng Wang, and Ning Dai. Influence of nonlinear effects in ZnTe on generation and detection of Terahertz waves. *Journal of Applied Physics*, 105(2) :023106, 2009.
- [191] Claude Cohen-Tannoudji and Bernard Diu. *Mécanique quantique - Tome 2*. Collection enseignement des sciences ; 0768-0341, 16. Hermann, Paris, 1977.
- [192] Feng Liu, Yanfeng Li, Qirong Xing, Lu Chai, Minglie Hu, Changlei Wang, Yuqiang Deng, Qing Sun, and Chingyue Wang. Three-photon absorption and Kerr nonlinearity in undoped bulk GaP excited by a femtosecond laser at 1040 nm. *Journal of Optics*, 12(9) :095201, 2010.
- [193] Richard L. Sutherland. *Handbook of Nonlinear Optics*. CRC Press, New York, 2 edition, April 2003.
- [194] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T. H. Wei, J. Wang, J. Young, and E. W. Van Stryland. Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe. *J. Opt. Soc. Am. B*, 9(3) :405–414, Mar 1992.
- [195] Jean-Baptiste Dherbecourt. *Nonlinear processes for mid-infrared widely tunable picosecond pulses generation*. Theses, Ecole Polytechnique X, March 2011.
- [196] Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu. Evaluation of polarized Terahertz waves generated by Cherenkov phase matching. *Appl. Opt.*, 53(8) :1518–1522, Mar 2014.
- [197] Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Motoaki Tamura, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jun Takayanagi, Tomoya Takada, and Kodo Kawase. Broadband Terahertz-wave generation by satisfying the noncollinear phase-matching condition with a reflected signal beam. *Appl. Opt.*, 52(34) :8305–8309, Dec 2013.
- [198] Yuri Avestisyan, Caihong Zhang, Iwao Kawayama, Hironaru Murakami, Toshihiro Somekawa, Haik Chosrowjan, Masayuki Fujita, and Masayoshi Tonouchi. Terahertz generation by optical rectification in lithium niobate crystal using a shadow mask. *Opt. Express*, 20(23) :25752–25757, Nov 2012.
- [199] Yuri Avestisyan and Masayoshi Tonouchi. Terahertz generation in quasi-phase-matching structure formed by a phase mask. *Opt. Lett.*, 37(19) :4155–4157, Oct 2012.
- [200] Michael I. Bakunov, Sergey B. Bodrov, and Eugene A. Mashkovich. Terahertz generation with tilted-front laser pulses : dynamic theory for low-absorbing crystals. *J. Opt. Soc. Am. B*, 28(7) :1724–1734, Jul 2011.
- [201] M. I. Bakunov, M. V. Tsarev, and E. A. Mashkovich. Terahertz difference-frequency generation by tilted amplitude front excitation. *Opt. Express*, 20(27) :28573–28585, Dec 2012.
- [202] F. Blanchard, X. Ropagnol, H. Hafez, H. Razavipour, M. Bolduc, R. Morandotti, T. Ozaki, and D. G. Cooke. Effect of extreme pump pulse reshaping on intense Terahertz emission in lithium niobate at multimillijoule pump energies. *Opt. Lett.*, 39(15) :4333–4336, Aug 2014.
- [203] Sergey B. Bodrov, Igor E. Ilyakov, Boris V. Shishkin, and Andrey N. Stepanov. Efficient Terahertz generation by optical rectification in Si-LiNbO<sub>3</sub>-air-metal sandwich structure with variable air gap. *Applied Physics Letters*, 100(20) :201114, 2012.
- [204] Alexander V. Borodin, Mikhail N. Esaulkov, Ilya I. Kuritsyn, Igor A. Kotelnikov, and Alexander P. Shkurinov. On the role of photoionization in generation of Terahertz radiation in the plasma of optical breakdown. *J. Opt. Soc. Am. B*, 29(8) :1911–1919, Aug 2012.



- 
- [205] E. Budiarto, J. Margolies, S. Jeong, J. Son, and J. Bokor. High-intensity Terahertz pulses at 1-kHz repetition rate. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 32(10) :1839–1846, Oct 1996.
- [206] Sara Casalbuoni, Holger Schlarb, Bernhard Schmidt, Peter Schmüser, Bernd Steffen, Axel Winter, and Deutsches Elektronen-synchrotron Desy. Numerical studies on the electro-optic sampling of relativistic electron bunches, 2005.
- [207] Daniel Chemla. Propriétés diélectriques linéaires et non linéaires des cristaux à structure tétraédrique. *Annales des Télécommunications*, 27(7-8) :311–340, 1972.
- [208] A Chirakadze, S Machavariani, A Natsvlishvili, and B Hvitia. Dispersion of the linear electro-optic effect in lithium niobate. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 23(9) :1216, 1990.
- [209] Michael M. Choy and Robert L. Byer. Accurate second-order susceptibility measurements of visible and infrared nonlinear crystals. *Phys. Rev. B*, 14 :1693–1706, Aug 1976.
- [210] Matteo Clerici, Daniele Faccio, Lucia Caspani, Marco Peccianti, Eleonora Rubino, Luca Razzari, François Légaré, Tsuneyuki Ozaki, and Roberto Morandotti. CCD-based imaging and 3D space and time mapping of Terahertz fields via Kerr frequency conversion. *Opt. Lett.*, 38(11) :1899–1901, Jun 2013.
- [211] Christopher M. Collier, Mark H. Bergen, Trevor J. Stirling, Mark A. DeWachter, and Jonathan F. Holzman. Optimization processes for pulsed Terahertz systems. *Appl. Opt.*, 54(3) :535–545, Jan 2015.
- [212] Marion Cornet, Jérôme Degert, Emmanuel Abraham, and Eric Freysz. Terahertz-field-induced second harmonic generation through pockels effect in zinc telluride crystal. *Opt. Lett.*, 39(20) :5921–5924, Oct 2014.
- [213] Martin van Exter, Ch. Fattinger, and D. Grischkowsky. Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor. *Opt. Lett.*, 14(20) :1128–1130, Oct 1989.
- [214] Ed Ghahramani, D. J. Moss, and J. E. Sipe. Full-band-structure calculation of first-, second-, and third-harmonic optical response coefficients of ZnSe, ZnTe, and CdTe. *Phys. Rev. B*, 43 :9700–9710, Apr 1991.
- [215] Z.M. Sheng H.W. Du, M. Chen and J. Zhang. Numerical studies on Terahertz radiation generated from two-color laser pulse interaction with gas targets. *Laser and Particle Beams*, 29 :447–452, 11 2011.
- [216] Jae Won Hahn and Eun Seong Lee. Measurement of nonresonant third-order susceptibilities of various gases by the nonlinear interferometric technique. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(6) :1021–1027, Jun 1995.
- [217] Christoph P. Hauri, Clemens Ruchert, Carlo Vicario, and Fernando Ardana. Strong-field single-cycle thz pulses generated in an organic crystal. *Applied Physics Letters*, 99(16) :161116, 2011.
- [218] Ming-Zhu Huang and W. Y. Ching. Calculation of optical excitations in cubic semiconductors. II. second-harmonic generation. *Phys. Rev. B*, 47 :9464–9478, Apr 1993.
- [219] Shu-Wei Huang, Eduardo Granados, Wenqian Ronny Huang, Kyung-Han Hong, Luis E. Zapata, and Franz X. Kärtner. High conversion efficiency, high energy Terahertz pulses by optical rectification in cryogenically cooled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 38(5) :796–798, Mar 2013.

- 
- [220] I. E. Ilyakov, G. Kh. Kitaeva, B. V. Shishkin, and R. A. Akhmedzhanov. Terahertz wave electro-optic measurements with optical spectral filtering. *Applied Physics Letters*, 106(12) :121101, 2015.
- [221] I. E. Ilyakov, G. Kh. Kitaeva, B. V. Shishkin, and R. A. Akhmedzhanov. Laser pulse amplitude changes induced by Terahertz waves under linear electro-optic effect. *Applied Physics Letters*, 104(15) :151107, 2014.
- [222] G. A. Mourou J. A. Valdmanis and C. W. Gabel. Subpicosecond electrical sampling. *IIEE Journal of Quantum Electronics*, QE-19(4) :664, April 1983.
- [223] G. S. Jenkins, A. B. Sushkov, D. C. Schmadel, N. P. Butch, P. Syers, J. Paglione, and H. D. Drew. Terahertz Kerr and reflectivity measurements on the topological insulator  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ . *Phys. Rev. B*, 82 :125120, Sep 2010.
- [224] P. Uhd Jepsen, C. Winnewisser, M. Schall, V. Schyja, S. R. Keiding, and H. Helm. Detection of Terahertz pulses by phase retardation in lithium tantalate. *Phys. Rev. E*, 53 :R3052–R3054, Apr 1996.
- [225] Zhiping Jiang, F. G. Sun, Q. Chen, and X.-C. Zhang. Electro-optic sampling near zero optical transmission point. *Applied Physics Letters*, 74(9) :1191–1193, 1999.
- [226] Zhiping Jiang and Xi-Cheng Zhang. Free-space electro-optic techniques. In Daniel Mittleman, editor, *Sensing with Terahertz Radiation*, volume 85 of *Springer Series in Optical Sciences*, pages 155–192. Springer Berlin Heidelberg, 2003.
- [227] Tobias Kampfrath, Koichiro Tanaka, and Keith A. Nelson. Resonant and nonresonant control over matter and light by intense Terahertz transients. *Nat Photon*, 7(9) :680–690, September 2013.
- [228] S. Kielich. Doubling and mixing of laser light frequencies in crossed electric and magnetic fields. *Optics Communications*, 2(5) :197 – 199, 1970.
- [229] Jens Kiessling, Karsten Buse, and Ingo Breunig. Temperature-dependent Sellmeier equation for the extraordinary refractive index of 5 mol % MgO-doped  $\text{LiNbO}_3$  in the Terahertz range. *J. Opt. Soc. Am. B*, 30(4) :950–952, Apr 2013.
- [230] G.K. Kitaeva, S.P. Kovalev, I.I. Naumova, R.A. Akhmedzhanov, I.E. Ilyakov, B.V. Shishkin, and E.V. Suvorov. Quasi-phase-matched probe-energy electro-optic sampling as a method of narrowband Terahertz detection. *Applied Physics Letters*, 96(7) :071106–071106–3, Feb 2010.
- [231] S.P. Kovalev and G.Kh. Kitaeva. Two alternative approaches to electro-optical detection of Terahertz pulses. *JETP Letters*, 94(2) :91–96, 2011.
- [232] S. P. Kovalev and G. Kh. Kitaeva. Terahertz electro-optical detection : optical phase or energy measurements. *J. Opt. Soc. Am. B*, 30(10) :2650–2656, Oct 2013.
- [233] Alexandre Kudlinski. *Etude des non-linearités d'ordre 2 créées dans les verres de silice par poling thermique*. PhD thesis, Université de Lille 1, 2005.
- [234] Kuehn. *Nonlinear Terahertz Spectroscopy in One and Two Dimensions*. PhD thesis, Humboldt University, 2011.
- [235] Kuzyk. *Characterization Techniques and Tabulations for Organic Nonlinear Optical Materials - SHG*. CRC Press, May 1998.
- [236] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. Roskos. Large-area electro-optic ZnTe Terahertz emitters. *Opt. Express*, 13(14) :5353–5362, Jul 2005.

- 
- [237] Yun-Shik Lee. *Principles of Terahertz Science and Technology*. Springer, 2000.
- [238] B. F. Levine and C. G. Bethea. Nonlinear susceptibility of GaP ; relative measurement and use of measured values to determine a better absolute value. *Applied Physics Letters*, 20(8) :272–275, 1972.
- [239] Zachary H. Levine and Douglas C. Allan. Calculation of the nonlinear susceptibility for optical second-harmonic generation in III-V semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 66 :41–44, Jan 1991.
- [240] H. H. Li. Refractive index of ZnS, ZnSe, and ZnTe and its wavelength and temperature derivatives. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 13(1) :103–150, 1984.
- [241] O. Martinez. Pulse distortions in tilted pulse schemes for ultrashort pulses. *Optics Communications*, 59(3) :229–232, March 1986.
- [242] Robert C. Miller. Optical second-harmonic generation in piezoelectric crystals. *Applied Physics Letters*, 5(1) :17–19, 1964.
- [243] Robert C. Miller and William A. Nordland. Absolute signs of second-harmonic generation coefficients of piezoelectric crystals. *Phys. Rev. B*, 2 :4896–4902, Dec 1970.
- [244] H. G. Muller. An efficient propagation scheme for the time-dependent Schroedinger equation in the velocity gauge. *Laser Physics*, 9 :138–148, 1999.
- [245] Keisuke Nagashima and Atsushi Kosuge. Design of rectangular transmission gratings fabricated in LiNbO<sub>3</sub> for high-power terahertz-wave generation. *Japanese Journal of Applied Physics*, 49(12) :122504, 2010.
- [246] Ajay Nahata, David H. Auston, Tony F. Heinz, and Chengjiu Wu. Coherent detection of freely propagating Terahertz radiation by electro-optic sampling. *Applied Physics Letters*, 68(2) :150–152, 1996.
- [247] Kenichi Oguchi, Naoya Yasumatsu, and Shinichi Watanabe. Polarization detection of Terahertz radiation via the electro-optic effect using zinc blende crystal symmetry. *J. Opt. Soc. Am. B*, 31(12) :3170–3180, Dec 2014.
- [248] Taek il Oh. *Intense Terahertz generation via two-color laser filamentation*. PhD thesis, University of Maryland (College Park, Md.), 2013.
- [249] L. Palfalvi, J. A. Fulop, G. Almasi, and J. Hebling. Novel setups for extremely high power single-cycle Terahertz pulse generation by optical rectification. *Applied Physics Letters*, 92(17) :171107, 2008.
- [250] Xinjian Pan, Yi Cai, Xuanke Zeng, Xiaowei Lu, Dongping Zhang, Jingzhen Li, Hongyi Chen, and Shixiang Xu. Modified terahertz electro-optic sampling for high optical modulation depth, large dynamical range, and low background noises. *Opt. Lett.*, 39(13) :3778–3781, Jul 2014.
- [251] Michael Porer, Jean-Michel Ménard, and Rupert Huber. Shot noise reduced Terahertz detection via spectrally postfiltered electro-optic sampling. *Opt. Lett.*, 39(8) :2435–2438, Apr 2014.
- [252] Koustuban Ravi, W. Ronny Huang, Sergio Carbajo, Xiaojun Wu, and Franz Kärtner. Limitations to terahertz generation by optical rectification using tilted pulse fronts. *Opt. Express*, 22(17) :20239–20251, Aug 2014.
- [253] Joseph D. Rowley, Derek A. Bas, Kevin T. Zawilski, Peter G. Schunemann, and Alan D. Bristow. Terahertz emission from ZnGeP<sub>2</sub> : phase-matching, intensity, and length scalability. *J. Opt. Soc. Am. B*, 30(11) :2882–2888, Nov 2013.

- 
- [254] J. D. Rowley, J. K. Pierce, A. T. Brant, L. E. Halliburton, N. C. Giles, P. G. Schunemann, and A. D. Bristow. Broadband Terahertz pulse emission from ZnGeP<sub>2</sub>. *Opt. Lett.*, 37(5) :788–790, Mar 2012.
- [255] D. Saeedkia. Terahertz photoconductive antennas : Principles and applications. *Proceedings of the 5th European Conference*, pages 3326 –3328, april 2011.
- [256] Mohsen Sajadi, Martin Wolf, and Tobias Kampfrath. Terahertz field enhancement via coherent superposition of the pulse sequences after a single optical-rectification crystal. *Applied Physics Letters*, 104(9) :091118, 2014.
- [257] Arno Schneider, Ivan Biaggio, and Peter Günter. Terahertz-induced lensing and its use for the detection of Terahertz pulses in a birefringent crystal. *Applied Physics Letters*, 84(13) :2229–2231, 2004.
- [258] Arno Schneider, Ivan Biaggio, and Peter Günter. Optimized generation of terahertz pulses via optical rectification in the organic salt DAST. *Optics Communications*, 224 :337 – 341, 2003.
- [259] Arno Schneider and Peter Günter. Measurement of the Terahertz-induced phase shift in electro-optic sampling for an arbitrary biasing phase. *Appl. Opt.*, 45(25) :6598–6601, Sep 2006.
- [260] W. Schneider, A. Ryabov, Cs. Lombosi, T. Metzger, Zs. Major, J. A. Fülöp, and P. Baum. 800 fs, 330  $\mu$ J pulses from a 100 W regenerative Yb :YAG thin-disk amplifier at 300 kHz and Terahertz generation in LiNbO<sub>3</sub>. *Opt. Lett.*, 39(23) :6604–6607, Dec 2014.
- [261] O. Schubert, Hohenleutner M., Langer F., Urbanek B., Lange C., Huttner U., Golde D., Meier T., Kira M., Koch S. W., and Huber R. Sub-cycle control of Terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations. *Nat Photon*, 8(2) :119–123, February 2014.
- [262] Alexander Sell, Alfred Leitenstorfer, and Rupert Huber. Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable Terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm. *Opt. Lett.*, 33(23) :2767–2769, Dec 2008.
- [263] Ichiro Shoji, Takashi Kondo, Ayako Kitamoto, Masayuki Shirane, and Ryoichi Ito. Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(9) :2268–2294, Sep 1997.
- [264] Andrei G. Stepanov, Luigi Bonacina, Sergei V. Chekalin, and Jean-Pierre Wolf. Generation of 30  $\mu$ J single-cycle Terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification. *Opt. Lett.*, 33(21) :2497–2499, Nov 2008.
- [265] Andrei G. Stepanov, Andrii Rogov, Luigi Bonacina, Jean-Pierre Wolf, and Christoph P. Hauri. Tailoring single-cycle electromagnetic pulses in the 2-9 Terahertz frequency range using DAST/SiO<sub>2</sub> multilayer structures pumped at Ti :sapphire wavelength. *Opt. Express*, 22(18) :21618–21625, Sep 2014.
- [266] Masahiko Tani, Tetsuya Kinoshita, Tomohiro Nagase, Kazuki Horita, Christopher T. Que, Elmer Estacio, Kohji Yamamoto, and Michael I. Bakunov. Non-ellipsometric detection of Terahertz radiation using heterodyne EO sampling in the Cherenkov velocity matching scheme. *Opt. Express*, 21(8) :9277–9288, Apr 2013.
- [267] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri. Generation of 0.9-mJ terahertz pulses in DSTMS pumped by a Cr : Mg<sub>2</sub> SiO<sub>4</sub> laser. *Opt. Lett.*, 39(23) :6632–6635, Dec 2014.

- 
- [268] Weimin Wang, Zhengming Sheng, Yutong Li, Liming Chen, Quanli Dong, Xin Lu, Jinglong Ma, and Jie Zhang. Studies on the mechanisms of powerful Terahertz radiations from laser plasmas (invited paper). *Chin. Opt. Lett.*, 9(11) :110002, Nov 2011.
- [269] C. Winnewisser, P. Uhd Jepsen, M. Schall, V. Schyja, and H. Helm. Electro-optic detection of terahertz radiation in LiTaO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub> and ZnTe. *Applied Physics Letters*, 70(23) :3069–3071, 1997.
- [270] Q. Wu, T. D. Hewitt, and X.-C. Zhang. Two dimensional electro-optic imaging of terahertz beams. *Applied Physics Letters*, 69(8) :1026–1028, 1996.
- [271] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Waves in Crystals - Propagation and Control of Laser Radiation*. John Wiley and Sons, New York, 1984.
- [272] Ka-Lo Yeh. *Broadband and high power Terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via  $\chi^{(2)}$  cascaded processes in LiNbO<sub>3</sub>*. PhD thesis, MIT, 2009.
- [273] Caihong Zhang, Yuri Avetisyan, Gevorg Abgaryan, Iwao Kawayama, Hironaru Murakami, and Masayoshi Tonouchi. Tunable narrowband Terahertz generation in lithium niobate crystals using a binary phase mask. *Opt. Lett.*, 38(6) :953–955, Mar 2013.
- [274] Xi-Cheng Zhang and Jingzhou Xu. *Introduction to Terahertz Wave Photonics*. Springer Science & Business Media, December 2009.
- [275] Yizhu Zhang, Yanping Chen, Shengqi Xu, Hui Lian, Mingwei Wang, Weiwei Liu, See Leang Chin, and Guoguang Mu. Portraying polarization state of Terahertz pulse generated by a two-color laser field in air. *Opt. Lett.*, 34(18) :2841–2843, Sep 2009.
- [276] Sen-Cheng Zhong, Li-Guo Zhu, Shi-Xing Tao, Kun Meng, Long-Yao Peng, Qiao Liu, Qi-Xian Peng, Jian-Heng Zhao, and Ze-Ren Li. The polarization and efficiency of the terahertz pulses generated by tilted-pulse-front pumping scheme. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 35(3) :318–324, 2014.









## Résumé

Ces travaux de thèse portent sur l'étude de différents phénomènes non-linéaires ayant lieu dans le domaine térahertz (THz) au sein de cristaux de structure zinc-blende.

En premier lieu, nous avons mis en place au laboratoire deux sources de rayonnement THz intense, aux caractéristiques temporelles et spectrales bien distinctes. La première repose sur le redressement optique d'une impulsion laser de durée femtoseconde dans un cristal de niobate de lithium, et la seconde est, quant à elle, basée sur la création d'un plasma par focalisation d'un champ optique composé de l'impulsion fondamentale de pompe et de son second harmonique. Ces deux sources permettent de générer des ondes THz dont l'amplitude est bien adaptée à la mise en œuvre d'expériences d'optique non-linéaire.

Nous avons ensuite caractérisé le comportement non-linéaire de cristaux de structure zinc-blende soumis à des champs THz intenses. Nous nous sommes ainsi intéressés à l'effet Pockels lors de l'interaction d'une impulsion THz intense et d'un champ optique de faible intensité, dit sonde, au sein du matériau. Ceci nous a conduits à démontrer expérimentalement et numériquement la possibilité de caractériser la phase spectrale de l'impulsion sonde, à l'aide d'une technique équivalente au X-FROG. Nous avons également identifié l'existence d'un processus non-linéaire dit de cascade, consistant en la génération de second harmonique induite par effet Pockels. Enfin, nous avons observé expérimentalement l'apparition d'un effet Kerr THz dans le cristal, nous permettant de déduire une valeur moyenne de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre de ce matériau, à l'aide de calculs théoriques et de simulations numériques.

**Mots-clés :** Térahertz, Redressement optique, Plasma, Optique non-linéaire, Effet Pockels, Effet Kerr, Génération de second harmonique, cristaux zinc-blende.

## Abstract

This thesis project aims to study different non-linear processes in zinc-blende crystals, which take place in the terahertz (THz) range.

First of all, two different light sources have been built in the laboratory, allowing us to generate intense THz radiations with different temporal and spectral characteristics. The first source is based on the optical rectification of a femtosecond laser pulse in a lithium niobate crystal using the tilted pulse front technique, while the second one is based on a plasma, created through the focalization of a two-color femtosecond laser field. These two THz sources reach very high amplitudes, which allows us to study non-linear phenomena in the THz range.

Among these, we have measured the non-linear behavior of zinc-blende crystals under intense THz radiation. We were particularly interested in the Pockels effect happening during the interaction of an intense THz field and a weak optical probe beam. This drove us to the experimental and numerical demonstration of a new method to characterize the spectral phase of the optical probe field. This method is equivalent to the X-FROG technique. We also identified a new non-linear phenomenon, consisting of the cascade of two second-order processes, namely the Pockels effect and the Second Harmonic Generation. Finally, we experimentally observed some THz Kerr effect in a gallium phosphide crystal, which allowed us to calculate an average value of its third-order non-linear susceptibility, thanks to theoretical considerations and simulations.

**Key-words :** Terahertz, Non linear optics, Plasma, Optical rectification, Pockels effect, Kerr effect, Second Harmonic Generation, Zinc-blende crystals.

---