



HAL
open science

Génération d'ondes TeraHertz par Différence de Fréquence

Cyril Bernerd

► **To cite this version:**

Cyril Bernerd. Génération d'ondes TeraHertz par Différence de Fréquence. Optique / photonique. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT : 2018GREAT061 . tel-01980201

HAL Id: tel-01980201

<https://theses.hal.science/tel-01980201>

Submitted on 14 Jan 2019

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

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **OPTIQUE ET RADIOFREQUENCES**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Cyril BERNERD

Thèse dirigée par **Patricia SEGONDS**, et **Benoît BOULANGER**

préparée au sein de l'**Institut Néel**
dans l'**École Doctorale EEATS**

Génération d'onde TeraHertz par Différence de Fréquences

Thèse soutenue publiquement le **28 Septembre 2018**,
devant le jury composé de :

Monsieur Giuseppe Leo

Professeur à l'Université Paris Diderot, LMPQ, Président

Monsieur Alain Brenier

Directeur de Recherche CNRS, Université de Lyon, ILM, Rapporteur

Monsieur Eric Lantz

Professeur à l'Université de Franche Comté, Femto ST, Rapporteur

Monsieur Jean-François Roux

Maître de conférences à l'Université Savoie Mont-Blanc, IMEP-LAHC, Examineur

Madame Patricia Segonds

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel, Directeur de thèse

Monsieur Benoît Boulanger

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel, Directeur de thèse



REMERCIEMENTS

L'expérience de ces trois années de thèse a été pour moi une grande aventure. Et comme toute aventure s'achève un jour, je tiens maintenant à en remercier les principaux héros.

Les personnages les plus importants de toute aventure sont les Mentors. J'ai trouvé les miens en les personnes de Benoît et Patricia, que je souhaite remercier profondément, pour m'avoir fait confiance, pour m'avoir donné confiance, et plus que tout pour m'avoir donné le goût de l'aventure non linéaire et de la recherche.

Je tiens à remercier Eric Lantz, Alain Brenier, Giuseppe Leo et Jean-François Roux, pour avoir accepté de juger de la qualité de mon travail, et d'avoir apporté leur expérience afin de lui faire gagner en qualité.

Comme toute aventure, j'ai reposé sur le soutien d'un grand nombre d'acolytes, qui ont chacun à leur manière apporté leur pierre à l'édifice. Merci à Véronique, Reine du Femtoseconde, David, Mage du Laser, et Jérôme, Tailleur de Cristal, qui ont ainsi été les piliers de la réussite de cette aventure. Je tiens à les remercier chaleureusement pour m'avoir toujours indiqué le chemin à suivre, quel que soient les dangers, et toujours avec le sourire.

J'aimerais remercier les habitants du village de PLUM, qui m'ont accueilli dans leurs communautés, et particulièrement les membres de l'équipe OptiMa et du Pôle Optique.

Mon aventure m'a amené à voyager dans des contrées éloignées, au sein de la guilde du TeraHertz du domaine du Bourget du Lac. Ce voyage a été la clé de la réussite, et cela n'aurait pas pu être possible sans l'expérience et les compétences de Jean-François, d'Emilie, de Federico et de Jean-Louis, que je tiens à remercier pour le temps qu'ils m'ont accordé, pendant de longues heures de manips.

L'aventure « Thèse » se vit et se partage. J'ai ainsi eu la chance de la vivre aux côtés d'amis, sans qui les tempêtes et les batailles auraient été insurmontables.

Je tiens à remercier avant tout le Chevalier de la Blague, Christophe. Sans son soutien inconditionnel, son aide, et surtout son amitié au quotidien, les épreuves auraient été beaucoup plus difficiles.

Un énorme merci à Shridevi, Labsty à la force et au courage incroyable. Vivre cette expérience ensemble nous a permis de gravir des montagnes sans jamais avoir peur de l'échec, sans jamais perdre le sourire et toujours garder la motivation d'aller plus haut. Merci à Elodie, qui m'a appris ce que signifie être fort, grâce à ses légendaires Nerfs d'Acier et ses talents de barde, avec son titre phare "Tata Yoyo", indispensable avant de se lancer dans toute bataille importante.

Merci à ceux qui nous ont ouvert la voie : Pauline, Sydney, Justin, Khalil ; leur courage a été une source d'inspiration, et les chants contant leurs exploits ont rythmé nos pas. Merci également à ceux qui ont le courage de mener leur quête après nous : Alexandra, Augustin, Smaïl, Pierre ; leur arrivée à gonflé nos rangs d'un souffle nouveau, à un moment où nous pensions en être à bout.

Merci aux compagnons de passage, qui se sont joint à nous et avec qui partager de l'hydromel a été un vrai plaisir : Clément, Aleksei, Florent, Anthony, Mickaël, Mikayel, Michelle, Maria.

Merci au « grand Moulin et associés », ma guilde personnelle, constituée de mes acolytes les plus anciens, qui auront eu un rôle majeur lors d'un grand nombre de quêtes secondaires : Manon, Grégoire, Juan, Killian, Florent, Paul, Cyprien. . .

La vraie récompense de cette aventure, au-delà encore de la grandeur de son apprentissage, se trouve dans la joie de l'avoir réussi pour ma famille. Maman, Papa, Marie, Guillaume, Mamie, Papi et tous les autres, je les remercie pour ce que vous avez fait de moi. J'espère que j'ai réussi à rendre fier nos étoiles qui brillent très haut, et que je saurai être un exemple pour celles qui montent.

J'exprime enfin tous mes remerciements à Myriam, mi-guerrière vaillante, mi-princesse bienveillante (90%/10% ?), pour son amour, qui a fait briller la flamme dans les moments les plus difficiles comme les plus victorieux.

Je laisse maintenant la parole à mes amis photons, les vrais guerriers de cette aventure. Qu'ils soient visibles, infrarouges, TeraHertz... Ils ont apporté un peu de couleur dans ces trois belles années de thèse.

"Allons-y Alonzo !"
- *The Doctor*

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	5
1 Éléments de théorie	11
1.1 Optique linéaire cristalline	11
1.1.1 Polarisation linéaire et équation de propagation	11
1.1.2 Indices de réfraction principaux	13
1.1.3 Surface des indices	15
1.1.4 Etats de polarisation	18
1.1.5 Angle de double réfraction	20
1.2 Optique non linéaire	21
1.2.1 Polarisation non linéaire	21
1.2.2 Processus quadratiques	21
1.2.2.1 Somme de fréquences	22
1.2.2.2 Différence de fréquences	22
1.2.3 Equation de propagation et énergie transportée	23
1.2.3.1 Différence de fréquences entre deux ondes monochromatiques	24
1.2.3.2 Différence de fréquences au sein d'une onde polychromatique	26
1.2.3.3 Le déphasage ΔkZ	29
1.2.3.4 Le coefficient effectif χ_{eff}	32
1.2.3.5 Acceptances	33
1.3 Bilan	34
2 Spectre THz et génération THz par Différence de Fréquences : état de l'art	35
2.1 Spectres de transmission THz	36
2.1.1 Spectroscopie FTIR	36
2.1.2 Spectroscopie dans le domaine temporel TDS	38
2.2 Génération d'ondes THz : études théoriques	40
2.2.1 Détermination des Equations de Sellmeier	40

2.2.2	Calculs pour une onde THz monochromatique	42
2.2.3	Calcul pour une onde THz polychromatique	43
2.3	Génération d'onde THz : études expérimentales	43
2.3.1	Exemple de montage pour générer une onde THz monochromatique	44
2.3.2	Exemple de montage pour générer une onde THz polychromatique .	45
2.4	Les cristaux non linéaires pour la génération THz	47
2.5	Bilan	52
3	Caractéristiques de nouveaux cristaux dans leurs domaines de transpa-	
	rence	53
3.1	Les cristaux sélectionnés	54
3.2	Caractéristiques dans le visible et proche infrarouge	56
3.3	Etude du cristal de BNA dans le visible et proche infrarouge	57
3.3.1	Etat de l'art	58
3.3.2	Les échantillons	58
3.3.3	Spectres de transmission	59
3.3.4	Seuil de dommage optique	60
3.3.5	Equations de Sellmeier	62
3.3.5.1	La méthode du cylindre	62
3.3.5.2	Usinage d'un cylindre de BNA	64
3.3.5.3	Mesures directes des courbes d'accord de phase	65
3.3.5.4	Nouvelles équations de Sellmeier	68
3.4	Caractéristiques dans le domaine TeraHertz	71
3.4.1	Les échantillons	71
3.4.2	Caractéristiques des montages de spectroscopie	75
3.4.2.1	FTIR : 2 - 20 THz	75
3.4.2.2	TDS : 0,1 - 2,0 THz	75
3.4.3	Résultats	77
3.4.3.1	Préambule sur le traitement des données utilisé	77
3.4.3.2	Spectres de transmission	79
3.4.3.3	Indices de réfraction et coefficients d'absorption principaux	92
3.5	Bilan	98
4	Etude de la génération THz dans les cristaux sélectionnés	101
4.1	Etude théorique	101
4.1.1	Génération d'une onde THz monochromatique	101
4.1.2	Génération d'une onde THz polychromatique	112
4.2	Etude expérimentale	116
4.2.1	Génération d'une onde THz polychromatique	116
4.2.1.1	Montage 1 : expérience utilisant un laser femtoseconde centré à $\lambda_0=0,8 \mu\text{m}$	116
4.2.1.2	Montage 2 : expérience avec un laser femtoseconde centré à λ_0 accordable	120
4.2.2	Génération d'une onde THz monochromatique accordable	122
4.2.2.1	Montage 3 : expérience avec un laser picoseconde qui émet à $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$ et λ_2 accordable	122

4.2.2.2	Montage 4 : expérience avec un laser nanoseconde qui émet deux longueurs d'onde accordables	125
4.2.2.2.1	DUAL-PPLN-OPO pompé à $1.064 \mu\text{m}$	125
4.2.2.2.2	DUAL-KTP-OPO pompé à $0.532 \mu\text{m}$	129
4.3	Bilan	131
Conclusion et perspectives		133
A		147
B		149
C Liste des publications et communications orales		153

INTRODUCTION

Les ondes TeraHertz (THz) définissent le domaine du spectre des ondes électromagnétiques situé entre 20 et 0,1 THz, ce qui correspond à des longueurs d'onde comprises entre 15 et 3000 μm . Ce spectre est représenté en fonction de la fréquence et de la longueur d'onde dans la Figure 1. Le domaine THz y est délimité par le carré violet, qui s'étend des ondes radios du domaine électrique ($<0,1$ THz), aux ondes infrarouges du domaine optique (>20 THz).

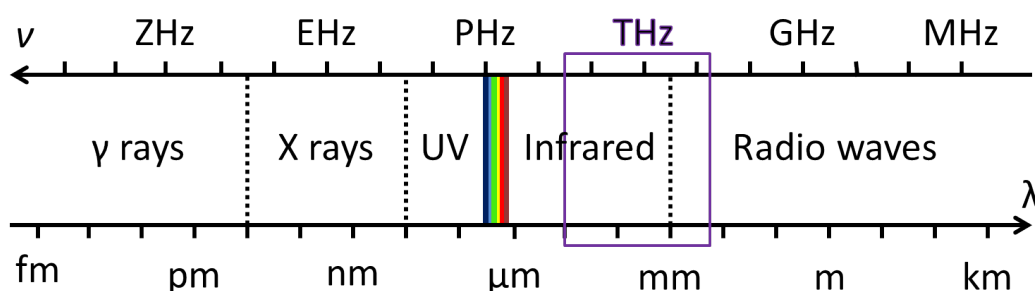


FIGURE 1 – Représentation du spectre des ondes électromagnétiques en fonction de la fréquence et de la longueur d'onde. Le cadre violet délimite le domaine THz.

Le domaine THz représente une couverture spectrale très intéressante pour de nombreuses applications qui concernent aussi bien les domaines de la spectroscopie que l'imagerie ou les télécommunications [1].

La spectroscopie dans le domaine THz a été développée depuis la fin des années 1980, avec notamment la technique de Time-Domain Spectroscopy (TDS) [2]. Par exemple, elle permet d'identifier les raies d'absorption de la molécule polaire de l'eau correspondant à l'excitation de rotations moléculaires [4], ou encore l'absorption due à des phonons ou des porteurs libres dans les métaux ou les semi-conducteurs dopés.

Parmi les domaines d'applications les plus courants des ondes THz en spectroscopie, l'industrie pharmaceutique peut être citée. Elle exploite le fait que les raies d'absorption

de l'eau sont très bien définies et plus facilement identifiables dans le domaine THz que dans le domaine optique [4]. Ainsi, la présence d'eau contenue dans les médicaments peut être identifiée lors du suivi d'un traitement pharmaceutique [5].

Tout comme les rayons X, les ondes THz ont un pouvoir de pénétration élevé. Ceci leur permet de traverser le plastique et les tissus des vêtements par exemple. Elles permettent donc d'effectuer des images en profondeur. Cependant, contrairement aux rayons X, les ondes THz traversent partiellement seulement les métaux ou la peau. En revanche, elles ont l'avantage d'être peu énergétiques, de sorte qu'elle ne ionisent pas la peau et permettent de faire de l'imagerie corporelle sans endommager les cellules.

Ces propriétés offrent un fort potentiel aux sources THz, qui sont très utilisées pour différents besoins qui relèvent de la sécurité [6]-[7], de l'industrie [8]-[9], de la médecine [10]-[11] ou encore de l'art [12]-[13].

A titre d'exemple, la Figure 2 montre le résultat d'une imagerie THz réalisée pour un pistolet en résine, un couteau en céramique et un tire-bouchon en métal [14]. Même si ces objets sont placés dans un sac en tissu ou une valise, ils sont facilement détectables par imagerie THz lors des contrôles dans les aéroports ou les douanes, alors que cela n'est pas possible avec les rayons X.

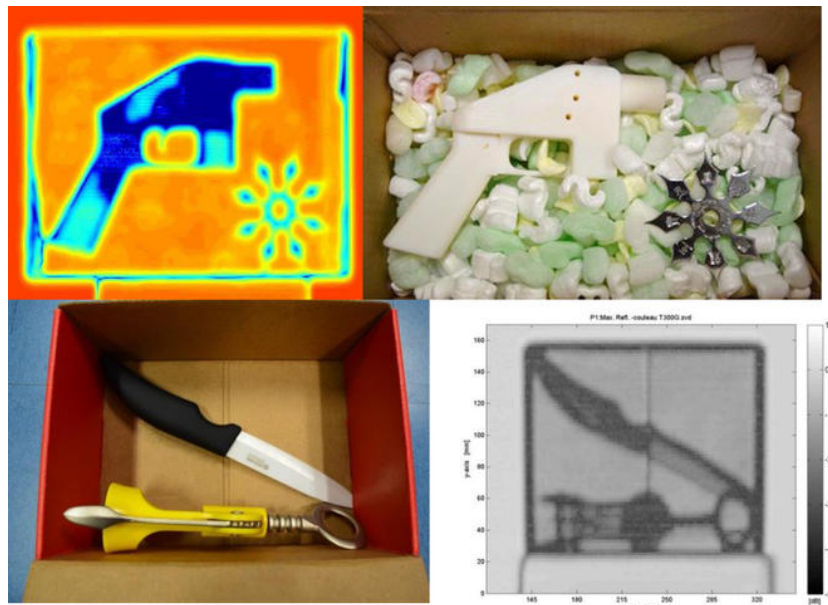


FIGURE 2 – Imagerie THz de différentes armes à feu ou armes blanches en plastique ou en métal [14].

Un autre exemple concerne les télécommunications. La bande passante des ondes radio est limitée à 10 % de la fréquence de la porteuse, soit 10 GHz [1], ce qui limite le débit de transmission des données. L'utilisation d'une onde à plus haute fréquence, comme les ondes THz, induit un élargissement de la bande passante ce qui permet une augmentation du débit de données transmises par un réseau sans fil.

Les ondes THz peuvent être générées à partir de différents types de sources. Nous allons en décrire ici les principales :

1. Il y a les sources thermiques qui sont basées sur le rayonnement du corps noir. Ce dernier émet dans la gamme THz à très faible intensité dès 2K [15]. A titre d'exemple, une lampe à mercure présente un spectre s'étendant sur toute la gamme du domaine THz. Cependant, son énergie est faible et les ondes générées sont incohérentes.
2. Les sources électroniques comme les diodes Gunn, les transistors à haute fréquence et les multiplicateurs de fréquence permettent de générer une onde monochromatique jusqu'à 1 THz. On note également l'existence des Backward Wave Oscillators (BWO), permettant de générer un rayonnement fixe cohérent jusqu'à 2 THz.
3. Les lasers à cascade quantique, basés sur des transitions inter-sous-bande dans des puits quantiques de semi-conducteurs, permettent de générer des ondes monochromatiques dans le domaine THz dont la fréquence dépend de la structure du semi-conducteur. Les rendements de ces lasers sont de l'ordre de 10^{-5} , pour des puissances générées de l'ordre de quelques milliwatts, et leur accordabilité, qui s'étend de 1,2 à 4,9 THz [16], dépend de la structure du semi-conducteur utilisé. Soulignons que la conception d'un laser à cascade quantique repose sur les dimensions des puits qui doivent avoir une précision nanométrique. Cette précision doit être d'autant plus fine pour la génération THz, car la transition inter-sous-bande se fait entre deux états très proches en énergie. De ce fait, l'inversion de population entre les deux sous-bandes est très compliquée à réaliser expérimentalement. Il en est de même pour l'accordabilité. Enfin, les lasers à cascade quantique fonctionnent généralement à basse température [17], ce qui limite leur utilisation pour certaines applications.
4. Les lasers à gaz permettent également de générer une onde THz par pompage optique des molécules de gaz. Ces dernières présentent une forte transition rotationnelle dans le domaine THz, de sorte qu'une transition laser entre deux niveaux vibrationnels et l'émission d'un photon dans le domaine THz sont possibles. Les gaz les plus utilisés sont CH_3F , CH_3OH , NH_3 , COOH et CH_2F_2 [15]. Ils sont disponibles commercialement. Les meilleurs rendements obtenus avec des lasers à gaz pompés optiquement sont de l'ordre de 10^{-2} - 10^{-3} , pour des puissances générées de l'ordre de 100 mW. Leur émission peut se situer entre 0,1 à 8 THz, chaque gaz présentant une raie d'émission propre. Les lasers à gaz ont trois inconvénients majeurs. Premièrement, aucune accordabilité n'est possible car le spectre généré dépend des propriétés intrinsèques du gaz utilisé. Deuxièmement, le pompage optique doit se faire à haute longueur d'onde, aux alentours de 9 - 11 μm , afin d'exciter les niveaux d'énergie rotationnels [15]. Finalement, l'association d'un laser de pompage et d'un milieu amplificateur gazeux fait que les lasers à gaz sont des sources très encombrantes.

5. Les sources optoélectroniques sont les plus utilisées actuellement pour la génération d'une onde THz. Il s'agit d'un photocommutateur, également appelé « antenne THz ». Il est constitué de deux électrodes métalliques séparées de quelques dizaines de microns et déposées sur un substrat semi-conducteur, comme décrit dans la Figure 3 (a) [15]. L'émission repose sur un courant de polarisation DC appliqué aux bornes des électrodes, de sorte que l'antenne se comporte comme un condensateur présent dans le circuit représenté dans la Figure 3 (b). Une impulsion infrarouge ultra-courte, de 20 à 200 fs, focalisée entre les deux électrodes ferme le circuit pour une courte durée. Le changement soudain de courant de polarisation entraîne la génération du rayonnement THz. Une antenne génère une onde THz de spectre très large, qui peut s'étendre de 0,1 jusqu'à 5 THz si des impulsions femtosecondes très courtes sont utilisées. Cela résulte du fait qu'un courant de polarisation est appliqué aux bornes des électrodes de l'antenne, pendant la durée Δt de l'impulsion laser. Plus Δt est court, plus le spectre est étendu, un autre paramètre important étant la durée de vie des porteurs du semi-conducteur utilisé. Les meilleurs rendements de conversion sont obtenus en laboratoire avec des antennes THz ; ils sont l'ordre de 10^{-2} [18].

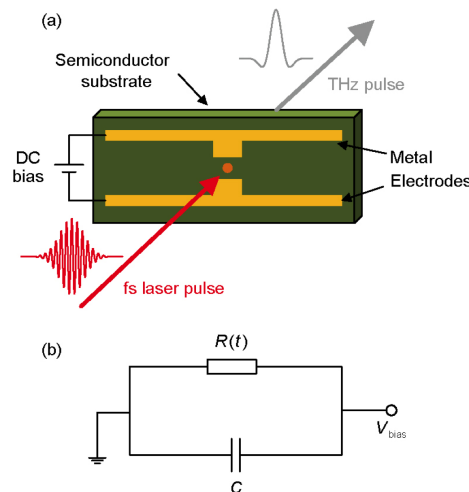


FIGURE 3 – Schéma d'une antenne THz (a) et circuit RC équivalent (b) [15].

6. Enfin, il y a les sources qui génèrent une onde THz à partir d'un processus quadratique de Génération de Différence de Fréquences (DFG) dans un cristal non linéaire. Deux champs optiques laser visibles ou infrarouges créent une polarisation induite qui génère une onde électromagnétique cohérente dans le domaine THz. Ces sources sont appelées « sources paramétriques ». Les puissances maximales de ces sources dépendent en partie de la valeur du seuil de dommage optique du cristal. Deux configurations sont possibles selon que la DFG est produite entre deux impulsions lasers monochromatiques en régime nanoseconde ou entre deux composantes de Fourier au sein d'une même impulsion laser femtoseconde. Dans la première configuration la source THz est monochromatique, elle est polychromatique dans la deuxième.

Le Tableau 1 répertorie les performances de tous les types de sources THz que nous venons de décrire. Les gammes de fréquences générées, leur accordabilité et la résolution spectrale sont données.

Type de source	Gamme de fréquence	Accordabilité	Résolution spectrale
Thermique	Toute la gamme	Non	Toute la gamme
Electronique	< 1 THz	Non	Fine
Laser à cascade quantique	1,2 - 4,9 THz	Via changement de structure	Fine
Laser à gaz	0,1 - 8 THz	Non	Fine
Photocommutateur	<4,5 THz	Non	Large
Paramétrique			
Monochromatique	Toute la gamme	Oui	Fine
Polychromatique	< 5 THz	Non	Large

TABLE 1 – Caractéristiques de différents types de sources THz.

Le travail réalisé pendant la thèse porte sur les sources paramétriques permettant de générer une onde THz monochromatique ou polychromatique. Dans ce cadre, nous avons considéré 21 cristaux non linéaire pour lesquels nous avons étudiés un ensemble de propriétés dans le domaine THz, afin de déterminer lesquels sont très prometteur pour la génération d'une onde dans ce domaine. Certains de ces cristaux, que nous présenterons dans le Chapitre 3, sont des cristaux très connus pour leur utilisation dans le domaine visible et proche infrarouge, mais n'ont jamais été, pour la plupart, étudiés dans le domaine THz. Afin de présenter ces mesures, le manuscrit de thèse est organisé en quatre chapitres dont le contenu est le suivant.

Le Chapitre 1 rappelle les éléments de théorie de l'optique cristalline et de l'optique non linéaire qui donnent les outils nécessaires au travail effectué. Il décrit ensuite les processus quadratiques de conversion de fréquence dont la DFG.

Le Chapitre 2 est un état de l'art sur les études effectuées concernant la génération d'une onde THz monochromatique ou polychromatique par DFG dans des cristaux non linéaires. Nous revenons d'abord sur les étapes importantes de caractérisation des cristaux pour leur utilisation dans le domaine THz. Ensuite nous rendons compte des démarches adoptées pour les études théoriques des performances de sources paramétriques THz. Enfin, nous donnons des exemples de montages expérimentaux mis en oeuvres et caractérisés

pour la génération d'une onde THz par DFG. Cet état de l'art permet de situer le travail de la thèse par rapport aux études menées par ailleurs.

Dans le Chapitre 3, nous présentons les mesures des paramètres importants d'optique linéaire et non linéaire pour 21 cristaux bien connus pour leurs propriétés optiques non linéaires dans le visible et l'infrarouge proche ou moyen. L'idée est de voir ce qu'il en est dans le domaine THz. Dans un premier temps, nous présentons leurs propriétés dans le domaine visible et proche infrarouge, qui correspond à celui des deux ondes incidentes sur le cristal. Nous détaillons en particulier le cas du cristal organique de N-benzyl-2-méthyl-4-nitroaniline (BNA). Ce chapitre se termine par la mesure des spectres de transmission en lumière polarisée, et la détermination des valeurs principales des indices de réfraction et des coefficients d'absorption dans le domaine THz.

Le Chapitre 4 présente les résultats théoriques et les premiers résultats expérimentaux de génération d'une onde THz par DFG dans les 21 cristaux sélectionnés. Nous avons considéré aussi bien la génération d'une onde THz monochromatique que polychromatique. Les calculs sont basés sur les paramètres décrits et discutés au Chapitre 3. Ils ont permis de déterminer les cristaux les plus prometteurs qui ont été étudiés dans quatre montages que nous avons mis en place. Les résultats expérimentaux et leur analyse se trouvent à la fin de ce chapitre.

Une conclusion et des perspectives terminent ce travail de thèse. Il y a également deux annexes.

CHAPITRE 1

ÉLÉMENTS DE THÉORIE

Ce chapitre rappelle les éléments de théorie nécessaires pour comprendre le travail de thèse. Dans cet objectif, il décrit le plus succinctement possible l'optique cristalline, puis l'optique non linéaire en considérant des processus quadratiques de conversion de fréquence. Il utilise en grande partie les références [19] et [20].

Nous décrivons dans un premier temps l'interaction entre la lumière et la matière cristallisée, ce qui nous permet d'écrire l'équation de propagation des ondes en régime linéaire. Puis les notions très importantes comme la surface des indices, les états de polarisation et l'angle de double réfraction sont discutées. Nous présentons ensuite les équations de propagation des ondes en régime non linéaire en considérant les processus quadratiques de conversion de fréquence. Viennent pour terminer ce chapitre, les paramètres importants comme les conditions d'accord de phase et le coefficient effectif, notions qui sont développées en considérant la génération d'onde THz monochromatique puis polychromatique à partir de processus de différence de fréquences.

1.1 Optique linéaire cristalline

1.1.1 Polarisation linéaire et équation de propagation

Chaque composante de Fourier d'une onde électromagnétique est décrite à la pulsation ω par un champ électrique $\vec{E}(\omega)$ et champ magnétique $\vec{H}(\omega)$ qui se propagent selon le vecteur d'onde $\vec{k}(\omega)$.

En traversant un milieu, le champ électrique de l'onde interagit avec les électrons des atomes. Nous allons décrire cette interaction dans les cristaux.

Pour des densités de puissance du champ électrique inférieures à 1 MW/cm^2 , le champ électrique $\vec{E}(\omega)$ à la pulsation ω induit une polarisation dans le cristal, notée $\vec{P}^L(\omega)$, qui peut être considérée comme linéaire en fonction du champ électrique, soit à la position \vec{r} [20] :

$$\vec{P}^L(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) \quad (1.1)$$

Où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide. Le symbole \cdot représente le produit contracté.

$\chi^{(1)}(\omega)$ est un tenseur polaire de rang 2 qui correspond à la susceptibilité électrique linéaire. Il est représenté par une matrice 3x3.

Le déplacement électrique de la matière $\vec{D}(\omega)$ induit par le champ électrique de la lumière incidente à la pulsation ω dépend de la polarisation linéaire et, en vertu de l'Eq. (1.1), $\vec{D}(\omega)$ s'écrit à la position \vec{r} :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}^L(\omega) = \epsilon_0 (I + \chi^{(1)}(\omega)) \cdot \vec{E}(\omega) \quad (1.2)$$

Où I représente la matrice 3x3 identité. L'Eq. (1.2) permet de définir la permittivité relative diélectrique ϵ_r comme $\epsilon_r(\omega) = (I + \chi^{(1)}(\omega))$ qui est donc également un tenseur polaire de rang 2.

De manière générale, chaque élément du tenseur de susceptibilité $\chi^{(1)}(\omega)$ est un nombre complexe, dont la partie imaginaire décrit l'absorption du cristal, et la partie réelle l'indice de réfraction. Chaque élément s'écrit :

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = Re\{\chi_{ij}^{(1)}(\omega)\} + jIm\{\chi_{ij}^{(1)}(\omega)\} \quad (1.3)$$

Pour des pulsations ω situées en dehors des bandes d'absorption du cristal, c'est-à-dire dans les domaines de transparence, la partie imaginaire de la susceptibilité électrique est négligeable devant la partie réelle ($Im\{\chi_{ij}^{(1)}(\omega)\} \ll Re\{\chi_{ij}^{(1)}(\omega)\}$). Nous considérons que c'est le cas dans ce chapitre. L'amplitude de l'onde traversant le cristal n'est pas atténuée au cours de sa propagation.

Il existe un repère orthonormé, noté (x,y,z) et appelé repère diélectrique, ou encore repère optique, qui diagonalise la partie réelle du tenseur $\epsilon_r(\omega)$, et donc du tenseur $\chi^{(1)}(\omega)$. Pour des pulsations ω dans un domaine de transparence du cristal les matrices correspondantes s'écrivent donc :

$$\chi^{(1)}(\omega) = \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix}, \quad \epsilon_r(\omega) = \begin{pmatrix} \epsilon_{rxx}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{ryy}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{rzz}(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

Où les éléments $\chi_{ii}(\omega)$ et $\epsilon_{rii}(\omega)$, avec $i=x,y$ ou z , sont les valeurs propres de la susceptibilité électrique linéaire et de la permittivité diélectrique respectivement.

Dans le repère diélectrique une direction de propagation de l'onde est représentée par le vecteur unitaire \vec{u} , qui peut être décrit par ses coordonnées cartésiennes (u_x, u_y, u_z) ou par ses angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ). La relation entre ces deux types de coordonnées est définie par la Figure 1.1 et s'écrit :

$$\vec{u} = \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sin(\theta)\cos(\phi) \\ \sin(\theta)\sin(\phi) \\ \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

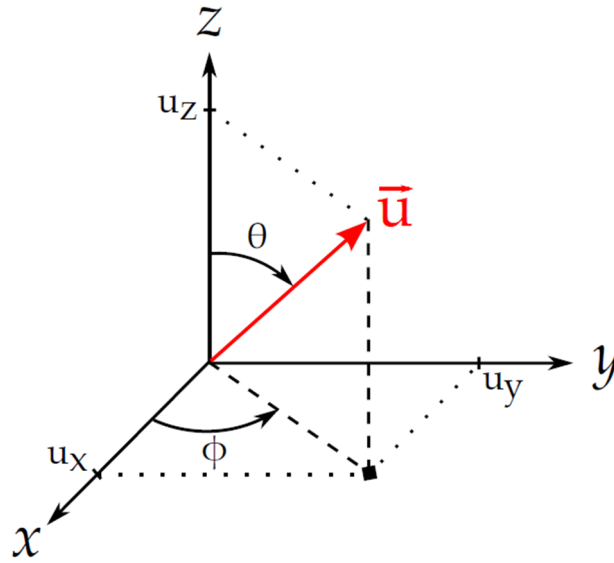


FIGURE 1.1 – Définition des angles de coordonnées sphériques θ et ϕ permettant de repérer une direction de propagation \vec{u} dans le repère diélectrique.

A partir des Eq. (1.1) et (1.2) et des équations de Maxwell, il est possible d'établir l'équation de propagation du champ électrique $\vec{E}(\omega)$ en régime linéaire. Elle est donnée à la position \vec{r} et à la pulsation ω par :

$$\text{rot} \left[\text{rot} \left[\vec{E}(\vec{r}, \omega) \right] \right] - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_r(\omega) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{0} \quad (1.6)$$

Où c est la vitesse de propagation de la lumière dans le vide.

L'onde plane est une des solutions de l'Eq. (1.6). La composante spatiale de son champ électrique qui se propage dans la direction \vec{u} s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = \vec{e}(\omega) E(\omega) e^{j\vec{k}(\omega) \cdot \vec{r}} \quad (1.7)$$

Où $\vec{k}(\omega) = k(\omega)\vec{u}$ est le vecteur d'onde à la pulsation ω de vecteur unitaire \vec{u} . $\vec{e}(\omega)$ est le vecteur unitaire qui décrit l'état de polarisation de l'onde et $E(\omega)$ est l'amplitude de son champ électrique à la pulsation ω .

L'Eq. (1.7) montre qu'en régime linéaire la polarisation du cristal, induite par le champ électrique de la lumière rayonne à son tour un champ électrique à la même pulsation ω .

1.1.2 Indices de réfraction principaux

Les valeurs propres des tenseurs de permittivité diélectrique relative $\epsilon_{r_{ii}}$ et de susceptibilité électrique $\chi_{ii}^{(1)}$ permettent de définir les trois indices de réfraction principaux à la pulsation ω , soit :

$$\begin{cases} n_x^2(\omega) = \epsilon_{r_{xx}}(\omega) = 1 + \chi_{xx}^{(1)}(\omega) \\ n_y^2(\omega) = \epsilon_{r_{yy}}(\omega) = 1 + \chi_{yy}^{(1)}(\omega) \\ n_z^2(\omega) = \epsilon_{r_{zz}}(\omega) = 1 + \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{cases} \quad (1.8)$$

Selon les valeurs relatives entre ces trois indices de réfraction principaux à la pulsation ω , il existe trois classes optiques dites : isotrope, anisotrope uniaxe, et anisotrope biaxe.

Les cristaux de la classe optique isotrope ont trois éléments du tenseur $\chi^{(1)}$ égaux : $\chi_{xx}^{(1)} = \chi_{yy}^{(1)} = \chi_{zz}^{(1)} = \chi^{(1)}$, et donc trois indices principaux égaux $n_x = n_y = n_z = n$. Les cristaux du système cristallin cubique sont isotropes.

Pour les cristaux appartenant à la classe optique anisotrope uniaxe, $\chi_{xx}^{(1)} = \chi_{yy}^{(1)} \neq \chi_{zz}^{(1)}$, et donc $n_x = n_y \neq n_z$. On définit alors l'indice de réfraction principal ordinaire $n_x = n_y = n_o$, et l'indice de réfraction principal extraordinaire $n_z = n_e$. Deux cas sont alors possibles : la classe optique anisotrope uniaxe est dite positive si $n_o < n_e$ et négative si $n_o > n_e$. Les cristaux des systèmes cristallins quadratique, hexagonal, trigonal et rhomboédrique appartiennent à la classe optique uniaxe.

Enfin, les trois éléments du tenseur $\chi^{(1)}$ sont indépendants, $\chi_{xx}^{(1)} \neq \chi_{yy}^{(1)} \neq \chi_{zz}^{(1)}$, pour les cristaux de la classe anisotrope biaxe, de sorte que $n_x \neq n_y \neq n_z$. Un cristal est anisotrope biaxe positif si $n_x < n_y < n_z$, ou négatif si $n_x > n_y > n_z$. Les cristaux des systèmes cristallins orthorhombique, monoclinique et triclinique sont biaxes.

Comme indiqué dans l'Eq. (1.8), les indices de réfraction principaux dépendent de la pulsation ω de la lumière se propageant dans le milieu cristallin. Nous nous intéressons aux cristaux dont la dispersion des indices de réfraction est normale dans les domaines de transparence. Cela signifie que si leur variation est exprimée en fonction de la pulsation ω ou de la longueur d'onde $\lambda = \frac{2\pi c}{\omega}$ alors : $\frac{\partial n}{\partial \omega} > 0$, soit $\frac{\partial n}{\partial \lambda} < 0$. Dans ce cas, les indices de réfraction principaux sont classiquement décrits par l'équation de Sellmeier, dont une forme possible est donnée par l'équation suivante dans le cadre du modèle de Lorentz [21] :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i \lambda^2}{\lambda^2 - C_i^2} + \frac{D_i \lambda^2}{\lambda^2 - E_i^2} \quad (1.9)$$

Où λ est exprimé en μm et $i=x, y$ ou z . Les paramètres A_i, B_i, C_i, D_i et E_i dépendent du cristal considéré.

Si la bande de transparence visée correspond au domaine compris entre l'ultraviolet (UV) et le proche infrarouge (IR), alors les paramètres C_i et E_i sont directement liés aux longueurs d'onde λ_{UV} et λ_{IR} respectivement, qui sont relatives aux deux oscillateurs, UV et IR, délimitant cette bande : $C_i = \lambda_{UV}$ et $E_i = \lambda_{IR}$.

Un exemple de représentation de la dispersion des trois indices de réfraction principaux dans le domaine de transparence visible-infrarouge d'un cristal biaxe positif est donné dans la Figure 1.2. Cela permet de constater que pour des longueurs d'onde proches des bandes d'absorption, la dispersion des indices de réfraction principaux est exaltée alors qu'elle est très faible voir négligeable au milieu du domaine de transparence.

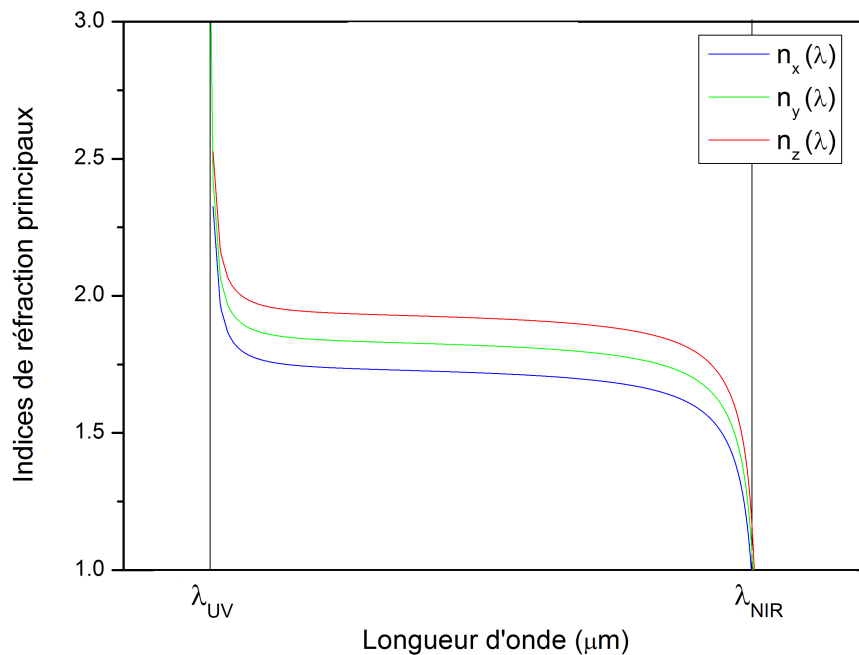


FIGURE 1.2 – Variation des trois indices de réfraction principaux en fonction de la longueur d'onde sur le domaine de transparence visible-infrarouge d'un cristal anisotrope biaxe positif.

1.1.3 Surface des indices

La projection de l'Eq. (1.6) sur les trois axes du repère diélectrique (x,y,z) permet d'établir l'équation de Fresnel, qui s'écrit quand les valeurs de la pulsation ω sont limitées au domaine de transparence du cristal [22] :

$$\frac{u_x^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_x^{-2}(\omega)} + \frac{u_y^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_y^{-2}(\omega)} + \frac{u_z^2(\theta, \phi)}{n^{-2}(\omega, \theta, \phi) - n_z^{-2}(\omega)} = 0 \quad (1.10)$$

Où $n_x(\omega)$, $n_y(\omega)$ et $n_z(\omega)$ sont les trois indices de réfraction principaux définis par l'Eq. (1.8), et $u_x(\theta, \phi)$, $u_y(\theta, \phi)$ et $u_z(\theta, \phi)$ sont les coordonnées sphériques du vecteur unitaire \vec{u} , données par l'Eq. (1.5).

L'équation de Fresnel admet deux solutions analytiques, notées $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$, qui correspondent aux deux valeurs possibles de l'indice de réfraction du cristal dans la direction considéré. Avec la convention $n^+(\omega, \theta, \phi) \geq n^-(\omega, \theta, \phi)$, leur expression est donnée par [22], [21] :

$$\begin{aligned}
n^\pm(\omega, \theta, \phi) &= \left[\frac{2}{-B \mp (B^2 - 4C)^{\frac{1}{2}}} \right]^{\frac{1}{2}} \\
B &= -u_x^2(\theta, \phi)(b + c) - u_y^2(\theta, \phi)(a + c) - u_z^2(\theta, \phi)(a + b) \\
C &= u_x^2(\theta, \phi)bc + u_y^2(\theta, \phi)ac + u_z^2(\theta, \phi)ab \\
a &= n_x^{-2}(\omega), b = n_y^{-2}(\omega), c = n_z^{-2}(\omega)
\end{aligned} \tag{1.11}$$

L'Eq. (1.11) décrit la répartition spatiale des indices de réfraction dans tout l'espace en angles de coordonnées sphériques (θ, ϕ) ; elle est appelée surface des indices. Cette surface est composée de deux nappes : la nappe interne, d'indice de réfraction $n^-(\omega, \theta, \phi)$, et la nappe externe d'indice de réfraction $n^+(\omega, \theta, \phi)$. La quantité $n^+(\omega, \theta, \phi) - n^-(\omega, \theta, \phi)$ définit la biréfringence du cristal selon la direction considérée.

L'expression analytique des indices $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ dépend donc des indices de réfraction principaux. Par conséquent, la surface des indices est différente selon la classe optique.

Pour la classe optique isotrope, où $n_x = n_y = n_z = n$, l'Eq. (1.11) montre que $n^-(\omega, \theta, \phi) = n^+(\omega, \theta, \phi) = n(\omega)$. Par conséquent la surface des indices à la pulsation ω est une sphère, et la biréfringence est nulle dans toutes les directions du repère diélectrique.

La surface des indices à une pulsation ω est représentée pour les cristaux uniaxes positifs et négatifs dans un octant du repère diélectrique par les Figures 1.3 (a) et 1.3 (b) respectivement. Ces Figures et l'Eq. (1.14) montrent que la surface des indices ne dépend pas de l'angle sphérique ϕ pour cette classe optique.

Dans le plan équatorial (x,y), la surface des indices est composée de deux nappes circulaires associées aux indices de réfraction principaux $n_o(\omega)$ et $n_e(\omega)$. Dans les plans (x,z) et (y,z), qui sont équivalents, la surface des indices est composée d'une nappe circulaire appelée aussi ordinaire, d'indice de réfraction principal $n_o(\omega)$. Elle est également composée d'une nappe elliptique appelée extraordinaire d'indice de réfraction $n^e(\omega, \theta)$ dont l'expression analytique est donnée dans le Tableau 1.1.

Le Tableau 1.1 donne aussi les expressions analytiques des indices de réfraction $n^+(\omega, \theta)$ et $n^-(\omega, \theta)$ selon que le cristal étudié est de signe optique positif ou négatif.

La Figure 1.3 et l'Eq. 1.11 montrent aussi qu'il existe une direction particulière appelée l'axe optique (A.O.) pour laquelle les deux indices de réfraction sont égaux ($n^+(\omega, \theta) = n^-(\omega, \theta)$). Pour les cristaux uniaxes, l'axe optique est confondu avec l'axe z du repère diélectrique. Notons que la biréfringence est nulle selon l'axe optique, constante dans le plan (x,y), mais varie dans tout plan contenant l'axe optique.

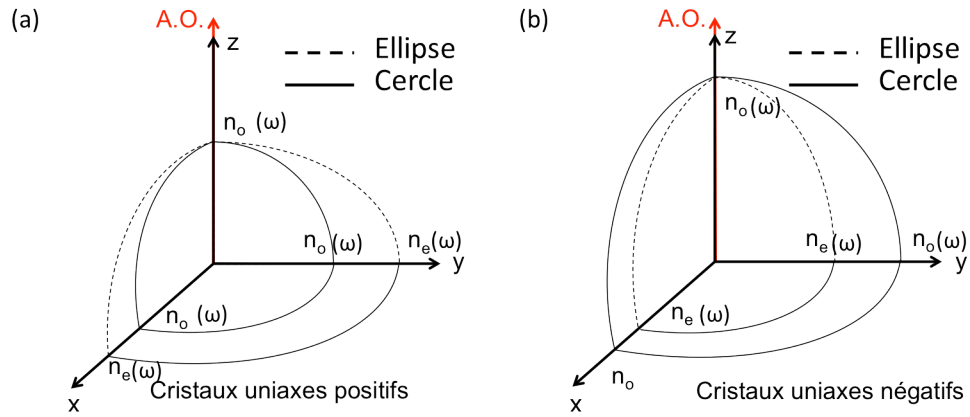


FIGURE 1.3 – Surface des indices des cristaux uniaxes positifs (a) et négatifs (b) à une pulsation ω donnée, et dans un octant du repère diélectrique. Les traits pleins représentent des portions de cercles et les traits en pointillés des portions d'ellipses.

	Cristaux uniaxes positifs		Cristaux uniaxes négatifs	
Plan	$n^+(\omega, \theta)$	$n^-(\omega, \theta)$	$n^+(\omega, \theta)$	$n^-(\omega, \theta)$
(x,y)	$n_e(\omega)$	$n_o(\omega)$	$n_o(\omega)$	$n_e(\omega)$
(x,z) = (y,z)	$n^e(\omega, \theta) = \frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\theta}{n_o^2(\omega)} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2(\omega)}}}$	$n_o(\omega)$	$n_o(\omega)$	$n^e(\omega, \theta) = \frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\theta}{n_o^2(\omega)} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2(\omega)}}}$

TABLE 1.1 – Expressions des indices de réfraction $n^+(\omega, \theta)$ et $n^-(\omega, \theta)$ dans les plans principaux des cristaux uniaxes positifs et négatifs.

La surface des indices des cristaux biaxes positifs et négatifs décrite dans un octant du de l'espace est montrée dans les Figures 1.4 (a) et 1.4 (b) respectivement. Cela permet de constater que, dans chaque plan principal, la surface des indices est constituée d'une nappe circulaire et d'une nappe elliptique. L'expression des indices de réfraction $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ est donnée pour les trois plan principaux des cristaux biaxes positifs dans le Tableau 1.2. Ce dernier peut être utilisé aussi pour les cristaux biaxes négatifs après avoir échangé les signes "+" et "-".

$n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ sont égaux dans quatre directions de propagation particulières, qui forment par paires les deux axes optiques (A. O.), d'où la dénomination de cristal biaxe. Les deux axes optiques sont situés dans le plan (x,z) du repère diélectrique. Compte tenu du Tableau 1.2, l'angle V_z que font les deux axes optiques avec l'axe z est donné par :

$$\sin^2 [V_z(\omega)] = \frac{n_y^{-2}(\omega) - n_x^{-2}(\omega)}{n_z^{-2}(\omega) - n_x^{-2}(\omega)} \quad (1.12)$$

Les Figures 1.4 montrent le croisement des deux nappes selon un A.O. du plan (x,z).

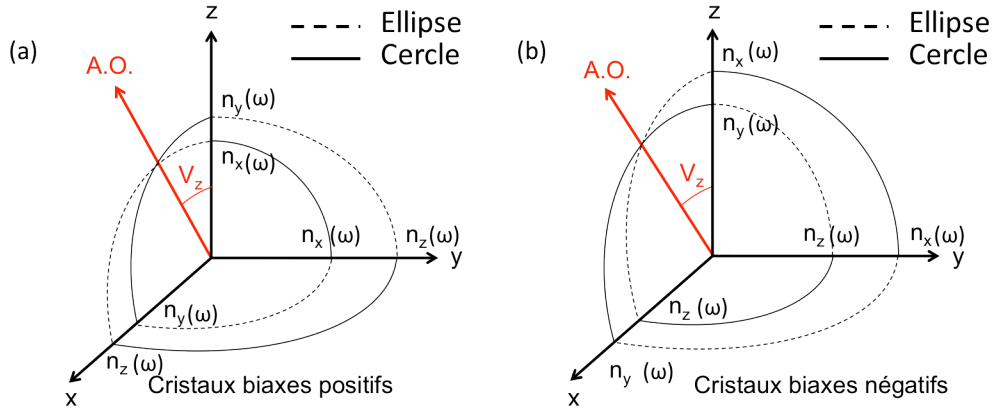


FIGURE 1.4 – Surface des indices des cristaux biaxes positifs (a) et négatifs (b) à la pulsation ω dans un octant du repère diélectrique. Les traits pleins représentent des portions de cercles et les traits en pointillés des portions d'ellipses.

Plan	$n^-(\omega, \theta, \phi)$	$n^+(\omega, \theta, \phi)$
(x,y)	$\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\phi + \sin^2\phi}{n_y^2(\omega)} + \frac{\sin^2\phi}{n_x^2(\omega)}}}$	$n_z(\omega)$
(y,z)	$n_x(\omega)$	$\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\theta + \sin^2\theta}{n_y^2(\omega)} + \frac{\sin^2\theta}{n_z^2(\omega)}}}$
(x,z), $0^\circ < \theta < V_z$	$\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\theta + \sin^2\theta}{n_x^2(\omega)} + \frac{\sin^2\theta}{n_z^2(\omega)}}}$	$n_y(\omega)$
(x,z), $V_z < \theta < 90^\circ$	$n_y(\omega)$	$\frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2\theta + \sin^2\theta}{n_x^2(\omega)} + \frac{\sin^2\theta}{n_z^2(\omega)}}}$

TABLE 1.2 – Expressions des indices de réfraction $n^-(\omega, \theta, \phi)$ et $n^+(\omega, \theta, \phi)$ dans les trois plan principaux des cristaux biaxes positifs.

En dehors des plans principaux, l'Eq. (1.11) sera utilisée pour calculer la valeur des deux indices de réfraction $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$.

1.1.4 Etats de polarisation

Dans un milieu anisotrope, l'existence de deux valeurs possibles de l'indice de réfraction dans une direction quelconque implique deux directions possibles d'oscillation du champ électrique : $\vec{E}^+(\omega, \theta, \phi)$, de vecteur d'onde $\vec{k}^+(\omega, \theta, \phi) = k^+(\omega, \theta, \phi)\vec{u}(\theta, \phi) = \frac{\omega}{c}n^+(\omega, \theta, \phi)\vec{u}(\theta, \phi)$; $\vec{E}^-(\omega, \theta, \phi)$ de vecteur d'onde $\vec{k}^-(\omega, \theta, \phi) = k^-(\omega, \theta, \phi)\vec{u}(\theta, \phi) = \frac{\omega}{c}n^-(\omega, \theta, \phi)\vec{u}(\theta, \phi)$.

A partir de l'Eq. (1.6), il est possible de montrer que dans une direction de propagation $\vec{u}(\theta, \phi)$, les champs électriques $\vec{E}^-(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{E}^+(\omega, \theta, \phi)$, sont associés à deux vecteurs

unitaires $\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$, qui sont solutions de l'équation [20] :

$$e_i^\pm(\omega, \theta, \phi) = \frac{[n^\pm(\omega, \theta, \phi)]^2}{[n^\pm(\omega, \theta, \phi)]^2 - [n_i(\omega)]^2} u_i(\theta, \phi) [\vec{u}(\theta, \phi) \cdot \vec{e}^\pm(\omega, \theta, \phi)] \quad (1.13)$$

Avec $i = x, y$ ou z . $n^\pm(\omega, \theta, \phi)$ sont les indices de réfraction donnés par l'Eq. (1.11) et $n_i(\omega)$ les indices de réfraction principaux définis par l'Eq. (1.8).

Dans les milieux uniaxes, les deux solutions qui décrivent les deux modes de polarisation \vec{e}^o et \vec{e}^e qui sont associés aux nappes ordinaires et extraordinaires de la surface des indices, sont respectivement données par :

$$\vec{e}^o = \begin{pmatrix} -\sin\phi \\ \cos\phi \\ 0 \end{pmatrix}, \vec{e}^e = \begin{pmatrix} -\cos[\theta \pm \rho^\pm(\theta, \omega)].\cos\phi \\ -\cos[\theta \pm \rho^\pm(\theta, \omega)].\sin\phi \\ \sin[\theta \pm \rho^\pm(\theta, \omega)] \end{pmatrix} \quad (1.14)$$

Avec $-\rho^-(\theta, \omega)$ pour les cristaux uniaxes positifs et $+\rho^+(\theta, \omega)$ pour les uniaxes négatifs. $\rho^\pm(\theta, \omega)$ est appelé l'angle de double réfraction qui sera défini dans la section suivante.

Pour un cristal uniaxe positif, $\vec{e}^- = \vec{e}^o$ et $\vec{e}^+ = \vec{e}^e$. Au contraire, pour un cristal uniaxe négatif $\vec{e}^- = \vec{e}^e$ et $\vec{e}^+ = \vec{e}^o$. Notons que les Eq. (1.14) décrivent deux états de polarisation rectilignes et qui sont toujours perpendiculaires entre eux ($\vec{e}^o \cdot \vec{e}^e = \vec{e}^- \cdot \vec{e}^+ = 0$).

Dans les cristaux biaxes, l'expression des coordonnées sphériques des vecteurs unitaires $\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$ est analytique seulement dans les trois plans principaux. Ces expressions sont distinctes dans le plan (x,z) selon que $0 < \theta < V_z$ ou $90^\circ > \theta > V_z$, en raison du contact ponctuel entre les nappes $n^+(\omega, \theta, \phi)$ et $n^-(\omega, \theta, \phi)$ dans ce plan. Elles sont répertoriées dans le Tableau 1.3 pour les cristaux biaxes positifs.

Cristaux biaxes positifs		
Plan	$\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$	$\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$
(x,y)	$\begin{pmatrix} -\sin(\phi + \rho^-(\phi, \omega)) \\ \cos(\phi + \rho^-(\phi, \omega)) \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$
(y,z)	$\begin{pmatrix} -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ -\cos(\theta - \rho^+(\theta, \omega)) \\ \sin(\theta - \rho^+(\theta, \omega)) \end{pmatrix}$
(x,z) $0 < \theta < V_z$	$\begin{pmatrix} -\cos[\theta - \rho^-(\theta, \omega)] \\ 0 \\ \sin[\theta - \rho^-(\theta, \omega)] \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}$
(x,z) $90^\circ > \theta > V_z$	$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} -\cos(\theta - \rho^+(\theta, \omega)) \\ 0 \\ \sin(\theta - \rho^+(\theta, \omega)) \end{pmatrix}$

TABLE 1.3 – Expression des coordonnées sphériques des deux états de polarisation d'une onde qui se propage dans les plans principaux des cristaux biaxes positifs. ρ^\pm représente l'angle de double réfraction.

Le Tableau 1.3 peut également être utilisé pour déterminer les états de polarisation dans les cristaux biaxes négatifs en inversant les signes "+" et "-". Il montre que les deux états de polarisation $\vec{e}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{e}^-(\omega, \theta, \phi)$ des cristaux biaxes sont aussi rectilignes. Cependant ils sont perpendiculaires entre eux uniquement dans les plans principaux. Hors de ces plans, la résolution de l'Eq. (1.13) est numérique et la condition précédente n'est plus vérifiée ($\vec{e}^+ \cdot \vec{e}^- \neq 0$).

1.1.5 Angle de double réfraction

L'énergie lumineuse relative aux deux modes de propagation se propage selon deux vecteurs de Poynting possibles $\vec{\Pi}^+(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{\Pi}^-(\omega, \theta, \phi)$ dont le module est défini par [23] :

$$\|\vec{\Pi}^\pm\| = \|\vec{E}^\pm \wedge \vec{H}^\pm\| = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n^\pm \vec{E}^\pm \cdot \vec{E}^{\pm*} \quad (1.15)$$

Les équations de Maxwell, l'Eq. (1.5) permettent de montrer que, dans le cas général, il existe un angle non nul entre les vecteurs $\vec{\Pi}^\pm(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{k}^\pm(\omega, \theta, \phi)$. C'est le même angle qui existe entre les vecteurs $\vec{D}^\pm(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{E}^\pm(\omega, \theta, \phi)$. Il est appelé angle de double réfraction ou en anglais "spatial walk-off"; il est noté $\rho^\pm(\omega, \theta, \phi)$. A titre d'exemple, l'orientation entre ces vecteurs est représentée pour une propagation dans le plan (x,y) d'un cristal biaxe positif par la Figure 1.5. Elle permet de montrer que le phénomène de double réfraction est associé à la nappe elliptique uniquement. Pour la nappe circulaire $\rho(\omega, \theta, \phi)=0$. La Figure 1.16 montre aussi que l'angle de double réfraction apparaît également entre les vecteurs $\vec{\Pi}^-(\omega, \theta, \phi)$ et $\vec{\Pi}^+(\omega, \theta, \phi)$.

L'expression de l'angle de double réfraction est analytique dans un plan principal et est donnée par [23] :

$$\rho(\alpha, \omega) = \arccos \left(\frac{n_i^2(\omega) \cdot \sin^2(\alpha) + n_j^2(\omega) \cdot \cos^2(\alpha)}{\sqrt{n_i^4(\omega) \cdot \sin^2(\alpha) + n_j^4(\omega) \cdot \cos^2(\alpha)}} \right) \quad (1.16)$$

L'Eq. (1.16) montre que l'angle de double réfraction est toujours nul selon un axe principal. Sinon dans un plan principal, $\rho(\alpha, \omega)$ décrit ρ^+ ou ρ^- selon que la nappe elliptique est la nappe interne ou externe de la surface des indices. La correspondance entre ces angles est la suivante :

Dans les plans (x,z) et (y,z) des cristaux uniaxes positifs, $\rho^-(\theta, \omega) = \rho(\alpha, \omega)$ avec $\alpha = \theta$, $n_i = n_o$ et $n_j = n_e$. Dans le plan (x,y), $\rho^+(\theta, \omega) = 0$. Cette correspondance décrit aussi les cristaux uniaxes négatifs après avoir échangé les signes "+" et "-".

Dans le plan (x,z) des cristaux biaxes positifs, si $90^\circ > \theta > V_z$ alors $\rho^+(\theta, \omega) = \rho(\theta, \alpha)$, et si $0 < \theta < V_z$ alors $\rho^-(\theta, \omega) = \rho(\theta, \alpha)$, avec $\alpha = \theta$, $n_i = n_x$ et $n_j = n_z$.

Dans le plan (y,z) $\rho^+(\theta, \omega) = \rho(\alpha, \omega)$ avec $\alpha = \theta$, $n_i = n_y$ et $n_j = n_z$.

Enfin dans le plan (x,y) $\rho^-(\phi, \omega) = \rho(\phi, \omega)$ avec $\alpha = \phi$, $n_i = n_y$ et $n_j = n_x$.

Pour décrire les cristaux biaxes négatifs, il suffit d'inverser le signe "+" et le signe "-".

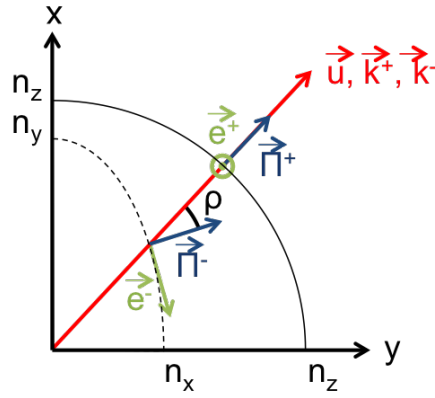


FIGURE 1.5 – Configuration des modes de polarisation \vec{e}^{\pm} , des vecteurs d'onde \vec{k}^{\pm} et des vecteurs de Poynting $\vec{\Pi}^{\pm}$ pour une direction quelconque du plan (x,y) d'un cristal biaxe positif.

1.2 Optique non linéaire

1.2.1 Polarisation non linéaire

Pour une densité de puissance du champ électrique supérieure au MW/cm^2 , le couplage entre la lumière et les électrons est fort. En utilisant le modèle de Lorentz avec une approche perturbative, il est possible de montrer qu'à la position \vec{r} , chaque composante de Fourier ω de la polarisation induite peut s'écrire sous la forme d'une série de Taylor en puissance du champ, soit [20] :

$$\begin{aligned}
 \vec{P}(\omega) &= \vec{P}^L(\omega) + P^{\vec{NL}}(\omega) \\
 &= \vec{P}^L(\omega) + P^{(2)}(\omega) + P^{(3)}(\omega) + \dots \\
 &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) + \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega = \omega_a \pm \omega_b) : \vec{E}(\omega_a) \otimes \vec{E}(\pm\omega_b) \\
 &\quad + \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega = \omega_a \pm \omega_b \pm \omega_c) \therefore \vec{E}(\omega_a) \otimes \vec{E}(\pm\omega_b) \otimes \vec{E}(\pm\omega_c) + \dots
 \end{aligned} \tag{1.17}$$

$\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ sont les tenseurs de susceptibilité électrique d'ordre 2 et 3 respectivement. Ce sont des tenseurs polaires de rang 3 et 4 respectivement, qui sont donc décrits par des matrices 3×3 et $3 \times 3 \times 3$ respectivement. Les symboles "." et ":" et "\therefore" représentent des produits contractés et le symbole \otimes un produit tensoriel. Le premier terme de la partie droite de l'Eq. (1.17), soit la polarisation linéaire $P^L(\omega)$, est décrite par l'Eq. (1.1). Les termes suivants correspondent à la polarisation non linéaire $P^{NL}(\omega)$. Seuls les processus quadratiques, qui correspondent au premier terme de $P^{NL}(\omega)$ seront étudiés dans ce travail de thèse. De plus, nous considérons dans ce chapitre uniquement des pulsations situées dans des domaines de transparence du cristal.

1.2.2 Processus quadratiques

La polarisation non linéaire d'ordre 2, à la pulsation ω (voir l'Eq. (1.17)), $P^{(2)}(\omega)$, décrit un processus de somme de fréquences ($\omega = \omega_a + \omega_b$) ou de différence de fréquences

($\omega = \omega_a - \omega_b$). Nous allons considérer ces deux processus à partir d'une interaction entre trois photons de pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 qui vérifient la loi de conservation de l'énergie : $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$, avec la convention $\omega_3 > \omega_2 \geq \omega_1$. Dans ce cas, le processus de somme de fréquences (SFG) est décrit à partir de la fusion de deux photons, et le processus de différence de fréquences (DFG) est décrit à partir de la scission d'un photon qui est stimulée par un second photon incident.

1.2.2.1 Somme de fréquences

La Figure 1.6 décrit l'interaction de fusion de deux photons : deux photons incidents de pulsation ω_1 et ω_2 fusionnent par le biais des atomes du cristal pour donner naissance à un nouveau photon de pulsation $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

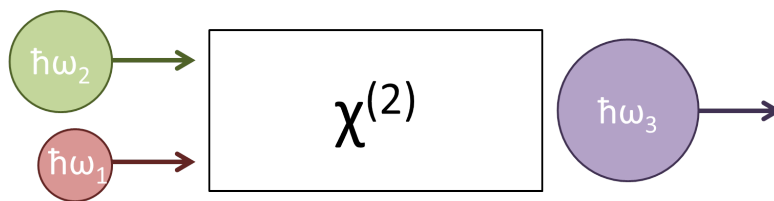


FIGURE 1.6 – Description corpusculaire du processus quadratique de somme de fréquences : fusion de photons.

D'après le principe de conservation de l'énergie, la fusion de deux photons conduit à la génération d'un photon d'énergie (ou de pulsation) plus grande que chacune des énergies et pulsations des photons incidents. A l'inverse, la longueur d'onde générée sera plus petite que celle des ondes associées aux photons incidents.

Le cas dégénéré de la SFG, qui correspond à $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, est appelé la Génération de Second Harmonique ; il est couramment abrégé SHG (pour Second Harmonique Generation). La pulsation générée correspond alors au double de la pulsation incidente, soit $\omega_3 = 2\omega$.

1.2.2.2 Différence de fréquences

Le processus de scission spontanée d'un photon en deux photons est décrit par la Figure 1.7. Il s'appelle aussi la fluorescence paramétrique. Seule la pulsation ω_3 étant fixée, un ensemble de couples (ω_1, ω_2) est généré.

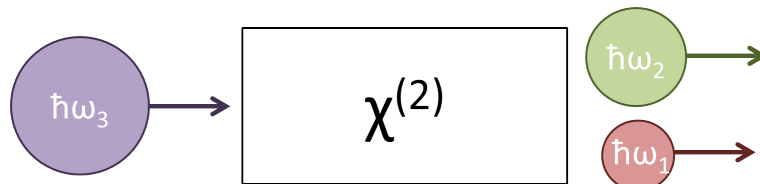


FIGURE 1.7 – Description corpusculaire du processus quadratique de scission spontanée d'un photon en deux photons.

La scission d'un photon à la pulsation ω_3 peut également être stimulée par un second photon incident, à la pulsation ω_1 ou ω_2 . C'est ce qui correspond au processus de différence de fréquences (DFG pour Difference Frequency Generation) lorsque l'on s'intéresse aux photons qui ne sont pas incidents.

Le processus de DFG permet la génération de photons THz. En effet, si la pulsation du photon stimulateur, ω_2 par exemple, est très proche de ω_3 , alors, en vertu du principe de conservation de l'énergie, $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ sera très petite, ce qui correspond à une longueur d'onde associée très grande.

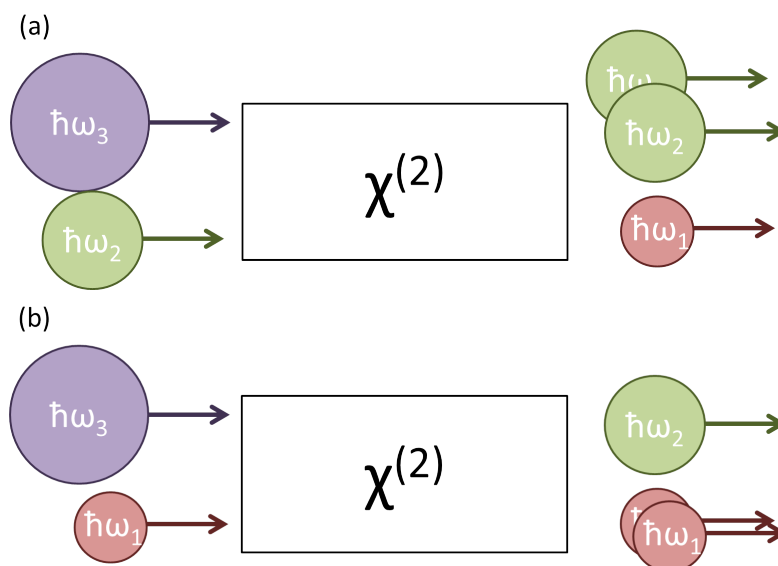


FIGURE 1.8 – Description corpusculaire du processus quadratique de différence de fréquences : scission d'un photon stimulée par le photon de pulsation intermédiaire ω_2 (a) ou par le photon de pulsation la plus faible ω_1 (b).

Le cas dégénéré de la scission d'un photon qui est stimulée par un autre photon de même pulsation ω s'appelle la rectification optique. Dans ce cas, $\omega_3 = \omega_2 = \omega$ et d'après la loi de conservation de l'énergie $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2 = 0$, ce qui correspond à un champ électrique statique créé dans le milieu non linéaire.

1.2.3 Equation de propagation et énergie transportée

L'Equation (1.17) et les équations de Maxwell permettent d'établir l'équation de propagation en régime non linéaire de chacune des trois ondes en interaction de pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 . Cette équation s'écrit :

$$\vec{r} \text{rot} \left[\vec{r} \text{rot} \left[\vec{E}(\vec{r}, \omega_i) \right] \right] - \frac{\omega_i^2}{c^2} \epsilon_r(\omega_i) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) = \omega_i^2 \mu_0 \vec{P}^{NL}(\omega_i) \quad (1.18)$$

Où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide, $i=1, 2$ ou 3 .

Si nous détaillons en suivant le processus de DFG1 qui conduit à la génération d'une onde à la pulsation ω_1 , la polarisation non linéaire d'ordre 2 à cette pulsation est donnée à la position \vec{r} par :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \vec{E}(\omega_3) \otimes \vec{E}^*(\omega_2) \quad (1.19)$$

Où $\vec{E}^*(\omega_2) = \vec{E}(-\omega_2)$.

L'Equation (1.19) montre que la polarisation non linéaire induite dans le cristal peut avoir une autre pulsation que les pulsations initiales.

Nous allons nous intéresser à l'évolution du champ électrique $\vec{E}(\omega_1, \vec{r})$ généré par $\vec{P}^{(2)}(\omega_1)$ selon que les deux ondes incidentes $\vec{E}(\omega_3, \vec{r})$ et $\vec{E}(\omega_2, \vec{r})$ sont monochromatiques ou polychromatiques.

1.2.3.1 Différence de fréquences entre deux ondes monochromatiques

Si les champs électriques de deux ondes incidentes de pulsation ω_2 et ω_3 sont monochromatiques, leur amplitude est décrite par l'Eq. (1.7) avec un spectre représenté par une distribution de Dirac centré en ω_3 et ω_2 , soit :

$$E(\omega_i) = E_{0i} \delta(\omega - \omega_i) \quad (1.20)$$

Avec $i = 2$ ou 3 .

Dans ce cas, l'Eq. (1.19) représente une polarisation non linéaire d'ordre 2 monochromatique qui s'écrit à la pulsation ω_1 :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : (\vec{e}^\pm(\omega_3, \theta, \phi) E_{03}) \otimes (\vec{e}^\pm(\omega_2, \theta, \phi) E_{02}) e^{j(\vec{k}(\omega_3, \theta, \phi) \cdot \vec{r} - \vec{k}(\omega_2, \theta, \phi) \cdot \vec{r})} \quad (1.21)$$

Où E_{03} et E_{02} sont les amplitudes de l'Eq. (1.20).

En injectant l'Eq. (1.21) dans l'Eq. (1.18), on obtient l'équation qui décrit l'évolution de l'amplitude complexe du champ électrique généré par DFG1 à la pulsation ω_1 . Pour une interaction à trois ondes colinéaires se propageant le long de leur coordonnée commune Z dont l'axe est confondu avec \vec{u} , on obtient :

$$\frac{\partial E(\omega_1, Z)}{\partial Z} = j K_1 \epsilon_0 \vec{e}^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : (\vec{e}^\pm(\omega_3, \theta, \phi) E(\omega_3, Z)) \otimes (\vec{e}^\pm(\omega_2, \theta, \phi) E(\omega_2, Z)) e^{j(k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi))Z} \quad (1.22)$$

Avec $K_1 = \frac{\omega_1^2 \mu_0}{2k^\pm(\omega_1) \cos^2(\rho(\omega_1))}$.

Notons que l'axe Z appartient au repère du laboratoire (X, Y, Z) , qui est différent du repère diélectrique (x, y, z) d'après la Figure 1.9. Le repère du laboratoire est un repère fixe, dont la direction Z est colinéaire à la direction de propagation commune \vec{u} des trois vecteurs d'onde en interaction.

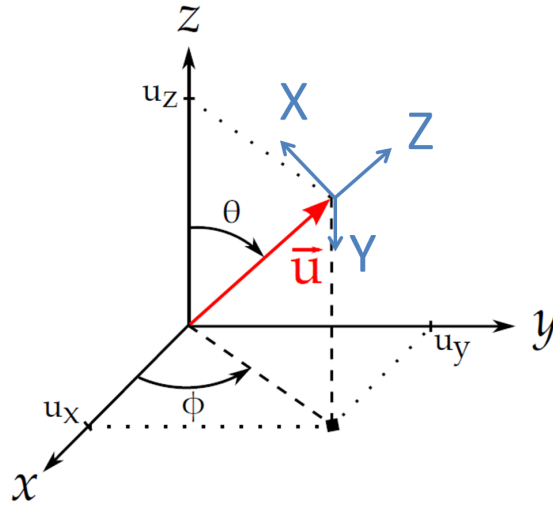


FIGURE 1.9 – Définition du repère du laboratoire (X,Y,Z) dans le repère diélectrique (x,y,z) pour une direction de propagation commune des vecteurs d'onde selon \vec{u} .

L'Equation (1.22) permet de définir deux paramètres importants. Le premier est le terme de déphasage ΔkZ avec $\Delta k = k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi)$. En utilisant le fait que $\vec{k}^\pm(\omega_i) = \frac{\omega_i}{c} n^\pm(\omega_i, \theta, \phi)$, il devient :

$$\Delta k = \frac{\omega_3}{c} n^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - \frac{\omega_2}{c} n^\pm(\omega_2, \theta, \phi) - \frac{\omega_1}{c} n^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \quad (1.23)$$

Le second paramètre est appelé le coefficient effectif, qui s'écrit, pour le processus de DFG1 :

$$\chi_{eff} = \vec{e}^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \cdot (\chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \vec{e}^\pm(\omega_3, \theta, \phi) \otimes \vec{e}^\pm(\omega_2, \theta, \phi)) \quad (1.24)$$

Finalement, l'équation (1.22) s'écrit encore pour une interaction entre trois ondes monochromatiques :

$$\frac{\partial E(\omega_1, Z)}{\partial Z} = jK_1 \epsilon_0 \chi_{eff} E(\omega_3, Z) E(\omega_2, Z) e^{j\Delta k Z} \quad (1.25)$$

En considérant que l'approximation de la pompe non dépeuplée est vérifiée dans nos expériences, l'amplitude des champs incidents peut être considérée comme ne variant pas au cours de leur propagation dans le cristal, soit : $E(\omega_3, Z) = E(\omega_3, 0)$ et $E(\omega_2, Z) = E(\omega_2, 0)$. Cette approximation implique des expériences en régime de faible gain, ce qui sera le cas pour toutes celles réalisées pendant la thèse.

L'équation (1.25) peut alors être intégrée sur la longueur du cristal L et permettre de déterminer à sa sortie l'énergie générée $\varepsilon(\omega_1, L)$. Pour un faisceau de profil spatial Gaussien avec un rayon w_0 , on obtient :

$$\varepsilon(\omega_1, L) = \frac{\pi w_0^2}{2} \epsilon_0 c n^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \vec{E}^\pm(\omega_1, \theta, \phi, Z) \vec{E}^{\pm*}(\omega_1, \theta, \phi, Z) \quad (1.26)$$

L'énergie générée par DFG1 est donnée par [20] :

$$\varepsilon(\omega_1, L) = \beta \frac{A}{\lambda_3 \lambda_2} G(Z, w_0, \rho) \chi_{eff}^2 \varepsilon(\omega_3, 0) \varepsilon(\omega_2, 0) L^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k \cdot L}{2} \right) \quad (1.27)$$

Avec $A = \frac{T(\omega_3, \theta, \phi) T(\omega_2, \theta, \phi) T(\omega_1, \theta, \phi)}{n(\omega_3, \theta, \phi) n(\omega_2, \theta, \phi) n(\omega_1, \theta, \phi)}$. β est un coefficient prenant en compte la géométrie et la section du faisceau gaussien. $G(Z, w_0, \rho)$ est le coefficient d'atténuation dû à l'angle de double réfraction défini par l'Eq. (1.16), sachant que $G=1$ pour des propagations selon les directions principales du repère diélectrique. $T(\omega_i, \theta, \phi)$ est le coefficient de transmission de Fresnel à la pulsation ω_i . $\varepsilon(\omega_2, 0)$ et $\varepsilon(\omega_3, 0)$ représentent les énergies incidentes, qui ne sont pas modifiées au cours de la propagation dans le cristal.

L'équation (1.27) dépend donc fortement des deux paramètres importants que sont le coefficient effectif χ_{eff} et le déphasage Δk qui seront détaillés dans les sections 1.2.3.3 et 1.2.3.4 respectivement.

L'accordabilité de la pulsation générée ω_1 est donnée par celles des pulsations ω_2 et ω_3 . Comme $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$, si $\omega_2 \simeq \omega_3$, alors $\omega_1 \simeq 0$ de sorte que la pulsation ω_1 générée peut balayer tout le domaine de transparence THz du cristal. La seule limitation du spectre balayé sera le spectre de transmission du cristal dans ce domaine.

L'Equation (1.27) peut être utilisée pour calculer l'énergie générée par SFG ou DFG2. Pour la SFG, il faut remplacer ω_1 par ω_3 et inversement. Pour la DFG2, ω_1 devient ω_2 et inversement.

1.2.3.2 Différence de fréquences au sein d'une onde polychromatique

Nous considérons ici une onde polychromatique de pulsation centrale ω_0 et de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$. Un processus de différence de fréquences peut alors exister entre deux composantes de Fourier de ce champ. Nous appelons ω_2 et ω_3 les pulsations correspondantes, la pulsation de l'onde générée étant alors $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$. Les pulsations à ω_2 et ω_3 considérées seront très proches, de sorte que ω_1 sera dans le domaine THz. Les amplitudes des champs électriques des composantes à ω_2 et ω_3 , $E(\omega_2)$ et $E(\omega_3)$, peuvent alors s'écrire sous la forme :

$$E(\omega_i) = E_0 \exp \left(\frac{-4 \ln 2}{\Delta\omega^2} (\omega_i - \omega_0)^2 \right) \quad (1.28)$$

Avec $i=2$ ou 3 .

La Figure 1.10 décrit le spectre de l'impulsion polychromatique. Un exemple de couple de pulsations ω_2 et ω_3 appartenant à ce spectre et dont l'interaction conduit à la génération d'un champ à la pulsation ω_1 appartenant au domaine THz est donné.

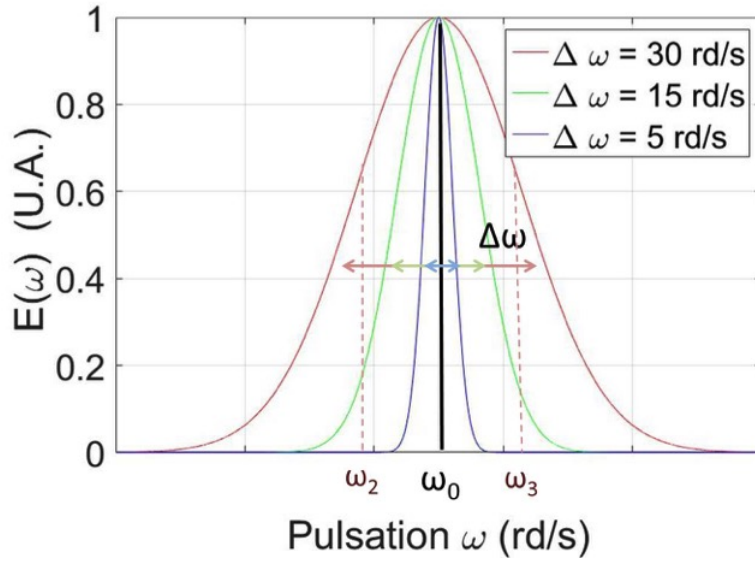


FIGURE 1.10 – Spectre d'une onde polychromatique décrite par une gaussienne centrée en ω_0 pour plusieurs largeurs à mi-hauteur $\Delta\omega$.

En injectant l'Eq. (1.28) dans l'Eq. (1.19), et en utilisant la loi de conservation de l'énergie, qui permet d'écrire $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$, l'expression de la polarisation non linéaire d'ordre 2 induite à la pulsation ω_1 devient :

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(2)}(\omega_1, Z) = \epsilon_0 E_0^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(2)}(\omega_1) : \vec{e}^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) \otimes \vec{e}^{\pm}(\omega_3 - \omega_1, \theta, \phi) \\ \exp\left(-\frac{4\ln 2}{\Delta\omega^2} ((\omega_3 - \omega_0)^2 + (\omega_3 - \omega_1 - \omega_0)^2)\right) \\ \exp\left(j(k^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) - k^{\pm}(\omega_3 - \omega_1, \theta, \phi)) Z\right) \frac{d\omega_3}{2\pi} \end{aligned} \quad (1.29)$$

L'intégration de l'Eq. (1.29) est compliquée, et ne permet pas en général une expression analytique. Néanmoins, si ω_3 et ω_2 sont très proches, ce qui est le cas ici puisque c'est une génération dans le domaine THz qui est visée, la différence de leurs vecteurs d'onde peut alors être approximée à [24] :

$$\begin{aligned} k^{\pm}(\omega_3, \theta, \phi) - k^{\pm}(\omega_3 - \omega_1, \theta, \phi) &\approx \left. \frac{\partial k^{\pm}}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \cdot \omega_1 = \frac{\omega_1}{c} \left(n^{\pm}(\omega_0, \theta, \phi) + \omega_0 \left. \frac{\partial n^{\pm}}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} \right) \\ &= \frac{\omega_1}{c} n_g^{\pm}(\omega_0, \theta, \phi) \end{aligned} \quad (1.30)$$

Où $n_g^{\pm}(\omega_0)$ est l'indice de groupe de l'onde polychromatique centrée en ω_0 . Une étape de calcul supplémentaire permettant de justifier ce résultat est donné dans l'Annexe A.

L'Eq. (1.29) peut encore être simplifiée en considérant que la dispersion de $\rho(\omega, \theta, \phi)$ en fonction de la pulsation ω_i est faible pour $i=2$ et 3 . Dans ce cas, $\bar{e}^\pm(\omega_i, \theta, \phi) = \bar{e}_i^\pm(\theta, \phi)$ et l'Eq. 1.29 intégrée par rapport à ω_3 et ω_2 devient :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_1, Z) = \epsilon_0 E_0^2 \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \bar{e}_3^\pm(\theta, \phi) \otimes \bar{e}_2^\pm(\theta, \phi) \exp\left(-\frac{2ln2}{\Delta\omega^2}\omega_1^2\right) \exp\left(j\frac{\omega_1}{c}n_g^\pm(\omega_0, \theta, \phi)Z\right) \quad (1.31)$$

L'évolution de l'amplitude complexe du champ électrique généré par DFG1 à la pulsation ω_1 en régime polychromatique est décrite par la résolution de l'Eq. (1.18) avec l'Eq. (1.31) qui permet d'écrire que :

$$\frac{\partial \vec{E}(\omega_1, Z)}{\partial Z} = jK_1 E_0^2 \bar{e}^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \bar{e}_3^\pm(\theta, \phi) \otimes \bar{e}_2^\pm(\theta, \phi) \exp\left(-\frac{2ln2}{\Delta\omega^2}\omega_1^2\right) \exp\left(j\left(\frac{\omega_1}{c}n_g^\pm(\omega_0, \theta, \phi) - \frac{\omega_1}{c}n^\pm(\omega_1, \theta, \phi)\right)Z\right) \quad (1.32)$$

Avec $K_1 = \frac{\omega_1^2 \mu_0}{2k(\omega_1) \cos^2(\rho(\omega_1))}$.

Dans ce régime, le premier paramètre important qui est le terme de déphasage défini comme ΔkZ avec : $\Delta k = k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_1, \theta, \phi)$ qui peut s'écrire :

$$\Delta k = \frac{\omega_1}{c} (n_g^\pm(\omega_0, \theta, \phi) - n^\pm(\omega_1, \theta, \phi)) \quad (1.33)$$

Le coefficient effectif à la pulsation ω_1 est donné par :

$$\chi_{eff}(\omega_1) = \bar{e}^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \cdot (\chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \bar{e}_3^\pm(\theta, \phi) \otimes \bar{e}_2^\pm(\theta, \phi)) \quad (1.34)$$

Finalement l'équation de l'évolution du champ électrique polychromatique à la pulsation ω_1 peut s'écrire :

$$\frac{\partial E(\omega_1, Z)}{\partial Z} = jK_1 \epsilon_0 \chi_{eff} E_0^2 \exp\left(-\frac{2ln2}{\Delta\omega^2}\omega_1^2\right) e^{j\Delta k Z} \quad (1.35)$$

Si elle est intégrée sur la longueur du cristal L , l'énergie générée par DFG1 devient :

$$\varepsilon(\omega_1, L) = \beta \frac{A}{\lambda_0^2} G(Z, \omega_0, \rho) \chi_{eff}^2(\omega_1) \varepsilon_0^2 L^2 \exp\left(-\frac{4ln2}{\Delta\omega^2}\omega_1^2\right) \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right) \quad (1.36)$$

Où les termes β et $G(Z, \omega_0, \rho)$ sont les mêmes que ceux définis précédemment.

Le terme $\exp\left(-\frac{4ln2}{\Delta\omega^2}\omega_1^2\right)$ définit l'enveloppe spectrale qui est accessible à partir du spectre de l'onde incidente décrit par la Figure 1.10. Il est représenté Figure 1.11 pour plusieurs valeurs de la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\omega$

La Figure 1.11 permet de constater que dans cette configuration de génération d'une onde THz polychromatique par DFG1, la pulsation ω_1 la plus élevée qu'il est possible de générer est limitée par la largeur à mi-hauteur du spectre de l'onde polychromatique incidente $\Delta\omega$. On note également que la demi-largeur à mi-hauteur des spectres représentés sur la Figure 1.11 est aussi égale à $\frac{\Delta\omega}{2}$. Le spectre généré dépend aussi du spectre de transmission du cristal dans le domaine THz. Notons que la valeur de la pulsation centrale ω_0 du spectre incident n'a aucune incidence sur la valeur maximale de la pulsation ω_1 générée.

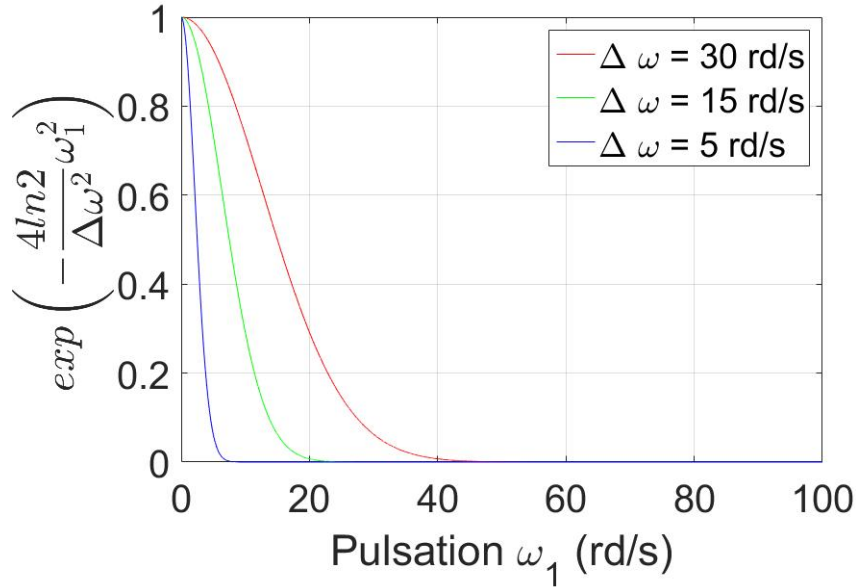


FIGURE 1.11 – Spectre de l'onde polychromatique généré par DFG1 pour plusieurs largeurs à mi-hauteur $\Delta\omega$ de l'onde incidente.

1.2.3.3 Le déphasage ΔkZ

Le terme ΔkZ représente le déphasage spatial entre la polarisation non linéaire et le champ qu'elle rayonne à la même pulsation, soit ω_1 dans le cas de la DFG1.

La Figure 1.12 décrit l'évolution de l'énergie générée $\varepsilon(\omega_1, L)$ décrite par l'équation (1.27) en fonction de l'épaisseur L du cristal dans les cas où $\Delta k \neq 0$ et $\Delta k = 0$. Dans le cas où $\Delta k \neq 0$, alors $\varepsilon(\omega_1, L) \propto \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\Delta k^2}$ de sorte qu'il y a une variation périodique de $\varepsilon(\omega_1, L)$ avec une période spatiale l_c . L'interprétation physique est que la polarisation électronique non linéaire d'ordre 2 interfère successivement de manière constructive et destructive avec le champ électrique qu'elle rayonne. Le paramètre l_c est la longueur d'interaction où l'interférence est constructive ou destructive. Elle est appelée la longueur de cohérence et est donnée par [20] :

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k} \quad (1.37)$$

Le cas où $\Delta k \neq 0$ est la condition de hors accord de phase. Comme le montre la Figure

1.12, elle n'est pas intéressante pour les applications si la longueur de cohérence est petite devant la longueur du cristal.

En revanche, lorsque $\Delta k=0$, $\varepsilon(\omega_1, L)$ augmente proportionnellement au carré de la longueur L du cristal. Ce cas est appelé condition d'accord de phase et est particulièrement intéressant pour les applications. L'accord de phase est primordial pour des pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 situées dans les bandes de transparence du visible-infrarouge, car la longueur de cohérence l_c au bout de laquelle l'énergie générée est maximale est généralement de l'ordre du μm , alors que L est de l'ordre du millimètre au minimum.

Nous verrons dans le chapitre 4 que les longueurs de cohérences l_c deviennent centimétriques pour ω_1 dans le domaine THz, de sorte que $\varepsilon(\omega_1, L)$ peut être maximale à la sortie du cristal de longueur L alors que $\Delta k \neq 0$. Si $l_c \geq L$ alors la longueur de cohérence sera étudiée aussi bien que la condition d'accord de phase $\Delta k=0$.

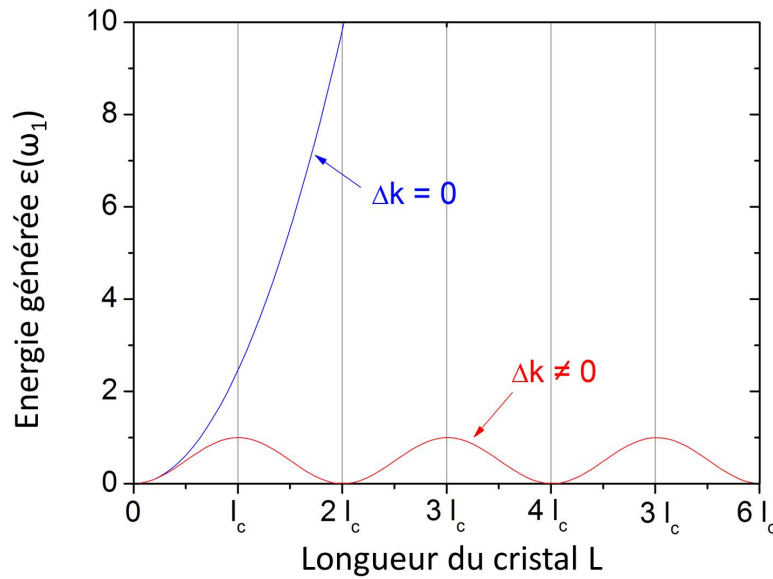


FIGURE 1.12 – Energie générée à la pulsation ω_1 en fonction de la longueur du cristal L en dehors de la condition d'accord de phase ($\Delta k \neq 0$) ou en condition d'accord de phase ($\Delta k = 0$).

La condition d'accord de phase dans les cristaux anisotropes est donnée par l'Eq. (1.23), ce qui permet d'écrire :

$$\frac{n^\pm(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^\pm(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^\pm(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0 \quad (1.38)$$

A priori, il existe $2^3=8$ façons de décliner l'Eq. (1.38) qui correspondent à 8 types de configurations vectorielles des champs associés. Si les pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 des trois ondes en interaction appartiennent au même domaine de transparence, avec $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$, alors la dispersion normale des indices de réfraction, décrite par l'équation (1.9), impose les relations d'ordre suivantes :

$$\begin{cases} n^+(\omega_3, \theta, \phi) > n^+(\omega_2, \theta, \phi) \geq n^+(\omega_1, \theta, \phi) \\ n^-(\omega_3, \theta, \phi) > n^-(\omega_2, \theta, \phi) \geq n^-(\omega_1, \theta, \phi) \end{cases} \quad (1.39)$$

On peut montrer rigoureusement que seulement trois types de conditions d'accord de phase sont possibles [25].

En revanche, lorsque les longueurs d'ondes incidentes ω_2 et ω_3 sont situées dans des bandes de transmissions différentes de celle de l'onde générée ω_1 , rien n'empêche que la condition d'accord de phase (1.38) soit vérifiée pour les 8 types car les relations d'ordre 1.19 n'existent plus. C'est le cas pour la génération d'onde THz pour laquelle ω_3 et ω_2 appartiennent au domaine de transmission visible/proche infrarouge et l'onde générée ω_1 au domaine THz, ces deux domaines étant séparés par des bandes d'absorption.

La condition d'accord de phase pour les 8 configurations possibles des modes de polarisation des trois ondes en interaction des types I à VIII est répertoriée dans le Tableau 1.4 pour tous les processus quadratiques possibles de conversion de fréquences (SFG, DFG1 et DFG2). Les trois types surlignés en rouge correspondent aux seuls types possibles pour une interaction entre trois ondes appartenant au même domaine de transparence d'après l'Eq. (1.39). Ce sont les types I, II et III de la DFG1.

Condition d'accord de phase	DFG1	SFG	DFG2
$\frac{n^-(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^+(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^-(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type I	Type III	Type II
$\frac{n^-(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^+(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^+(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type II	Type I	Type III
$\frac{n^-(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^-(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^+(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type III	Type II	Type I
$\frac{n^-(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^-(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^-(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type IV	Type IV	Type IV
$\frac{n^+(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^+(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^+(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type V	Type V	Type V
$\frac{n^+(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^+(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^-(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type VI	Type VII	Type VIII
$\frac{n^+(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^-(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^-(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type VII	Type VIII	Type VI
$\frac{n^+(\lambda_3, \theta, \phi)}{\lambda_3} - \frac{n^-(\lambda_1, \theta, \phi)}{\lambda_1} - \frac{n^+(\lambda_2, \theta, \phi)}{\lambda_2} = 0$	Type VIII	Type VI	Type VII

TABLE 1.4 – Conditions d'accord de phase par biréfringence pour les 8 types et les trois processus de conversion de fréquences SFG, DFG1 et DFG2 possibles.

Il est possible de résoudre analytiquement l'Eq. (1.29) uniquement dans le cas des types pour lesquels les deux ondes incidentes se propagent avec le même état de polarisation. Dans ce cas, la condition d'accord de phase se réduit à (1.33) :

$$n_g^\pm(\lambda_0, \theta, \phi) - n^\pm(\lambda_1, \theta, \phi) = 0 \quad (1.40)$$

La condition d'accord de phase correspondant aux 4 types vérifiant l'Eq. (1.30) est décrite dans le Tableau 1.5. Pour les 4 autres types, l'intégration de la polarisation non linéaire décrite par l'Eq. (1.29) doit être effectuée numériquement.

Condition d'accord de phase	DFG1
$n_g^-(\lambda_0, \theta, \phi) - n^+(\lambda_1, \theta, \phi) = 0$	Type I
$n_g^-(\lambda_0, \theta, \phi) - n^-(\lambda_1, \theta, \phi) = 0$	Type IV
$n_g^+(\lambda_0, \theta, \phi) - n^+(\lambda_1, \theta, \phi) = 0$	Type V
$n_g^+(\lambda_0, \theta, \phi) - n^-(\lambda_1, \theta, \phi) = 0$	Type VIII

TABLE 1.5 – Conditions d'accord de phase pour les 4 types de DFG1 permettant de résoudre analytiquement l'équation 1.29.

1.2.3.4 Le coefficient effectif χ_{eff}

Dans le cas de la DFG1, le coefficient effectif χ_{eff} a été donné par l'équation (1.24), qui devient sous forme tensorielle développée :

$$\chi_{eff} = \sum_{ijk} e_i^\pm(\omega_1, \theta, \phi) \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) e_j^\pm(\omega_3, \theta, \phi) e_k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.41)$$

L'équation (1.41) dépend de l'amplitude et du signe relatif des 27 éléments du tenseur de rang trois $\chi^{(2)}$, qui s'écrit dans le repère diélectrique :

$$\chi^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & \chi_{xyz} & \chi_{xzy} & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & \chi_{xxy} & \chi_{xyx} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & \chi_{yxz} & \chi_{yzz} & \chi_{yyx} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zyz} & \chi_{zzy} & \chi_{zxx} & \chi_{zxx} & \chi_{zxy} & \chi_{zyx} \end{pmatrix} \quad (1.42)$$

La valeur et le signe de chaque élément du tenseur $\chi_{ijk}^{(2)}$ dépend du groupe ponctuel du cristal, ce qui sera détaillé dans le Chapitre 4 pour chaque cristal étudié.

Chaque élément du tenseur $\chi^{(2)}$ est aussi relié aux éléments du tenseur $\chi^{(1)}$ par la relation de Miller [26] si les trois pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 appartiennent au même domaine de transparence du cristal, soit :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) = \chi_{ii}^{(1)}(\omega_1) \chi_{jj}^{(1)}(\omega_3) \chi_{kk}^{(1)}(-\omega_2) \delta_{ijk} \quad (1.43)$$

δ_{ijk} est appelé indice de Miller qui est indépendant de la pulsation. D'après l'Eq. (1.8) il vient alors :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1) = \delta_{ijk} \sqrt{1 - n_i^2(\omega_1)} \sqrt{1 - n_j^2(\omega_3)} \sqrt{1 - n_k^2(\omega_2)} \quad (1.44)$$

Par conséquent, en connaissant les équations de Sellmeier (1.9) qui décrivent les trois indices de réfraction principaux, et si la valeur de $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1)$ est connue, l'Eq. (1.45) permet de calculer la valeur de $\chi_{ijk}^{(2)}$ pour toute autre pulsation ω_2 ou ω_3 du domaine de transparence. La relation de Miller ne pourra donc pas s'appliquer dans le cas de la génération THz car ω_1 n'est pas dans le même domaine de transparence que ω_2 et ω_3 .

χ_{eff} dépend également des vecteurs unitaires des champs électriques des trois ondes en interaction, décrits dans la partie 1.1.4. Le coefficient effectif s'écrit :

$$\chi_{eff}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) = \sum_{ijk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1) F_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_3, \omega_2, \theta, \phi) \quad (1.45)$$

Où $F^{(2)}$ est un tenseur de rang 3 représenté par une matrice 3x3 qui décrit les 8 configurations de polarisations possibles. Il est donné par :

$$F_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_3, \omega_2, \theta, \phi) = e_i^\pm(\omega_1, \theta, \phi) e_j^\pm(\omega_3, \theta, \phi) e_k^\pm(\omega_2, \theta, \phi) \quad (1.46)$$

Le facteur champ peut alors se décliner à partir des 8 configurations de polarisations décrits dans le Tableau 1.6.

Configuration de polarisation			Type d'interaction		
ω_3	ω_1	ω_2	DFG1	SFG	DFG2
\vec{e}^-	\vec{e}^+	\vec{e}^-	Type I	Type III	Type II
\vec{e}^-	\vec{e}^+	\vec{e}^+	Type II	Type I	Type III
\vec{e}^-	\vec{e}^-	\vec{e}^+	Type III	Type II	Type I
\vec{e}^-	\vec{e}^-	\vec{e}^-	Type IV	Type IV	Type IV
\vec{e}^+	\vec{e}^+	\vec{e}^+	Type V	Type V	Type V
\vec{e}^+	\vec{e}^+	\vec{e}^-	Type VI	Type VII	Type VIII
\vec{e}^+	\vec{e}^-	\vec{e}^-	Type VII	Type VIII	Type VI
\vec{e}^+	\vec{e}^-	\vec{e}^+	Type VIII	Type VI	Type VII

TABLE 1.6 – Configurations de polarisation possibles des trois ondes en interaction et les 8 types pour les processus de SFG, DFG 1 et DFG2.

1.2.3.5 Acceptances

La condition d'accord de phase $\Delta k=0$ est vérifiée pour un jeu de paramètres $\xi=(\lambda_2, \lambda_3, \theta_{PM}, \phi_{PM})$ où l'indice PM représente l'accord de phase (phase-matching) en considérant que la température reste constante. Ces paramètres sont des variables dispersives de l'indice de réfraction, de sortes qu'ils conditionnent le paramètre Δk .

Ainsi une légère variation $\Delta \xi$ conduit à une variation de la puissance générée proportionnelle à $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right)$ décrite par La Figure 1.13 qui donne l'évolution de l'énergie normalisée à sa valeur maximale.

La Figure 1.13 rend compte d'une largeur $\delta \xi$ à 0,405 du maximum du pic, qui correspond également à l'écart entre l'accord de phase et le premier zéro de la fonction sinc^2 .

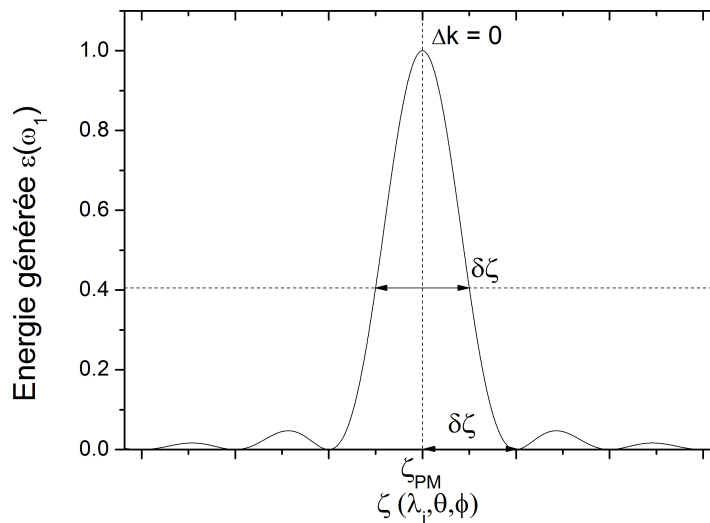


FIGURE 1.13 – Evolution de l'énergie générée $\varepsilon(\omega_1)$ normalisée en fonction de $\xi=(\lambda_2, \lambda_3, \theta, \phi)$ dans un cristal de longueur L fixée.

La quantité $L\delta\xi$ ($\xi=\lambda_2, \lambda_3, \theta, \phi$) définit l'acceptance de l'accord de phase vis-à-vis du paramètre ξ .

1.3 Bilan

Dans ce premier chapitre, nous avons rappelé les éléments théoriques essentiels qui permettent de décrire les propriétés optiques linéaires des cristaux anisotropes. Elles sont de première importance et seront précisées pour tous les cristaux étudiés dans cette thèse. Elles ont permis de comprendre la propagation d'une onde dans un cristal en régime linéaire.

Nous avons aussi présenté la polarisation non linéaire qui décrit les processus d'ordre 2 (quadratiques) qui peuvent être décrits au niveau corpusculaire à partir de la fusion ou la scission de photons. Enfin, nous avons développé le processus de DFG1, qui sera étudié dans les chapitres suivants et détaillé deux configurations permettant de générer une onde THz qui est soit monochromatique et accordable soit polychromatique. Cette partie du chapitre 1 a permis d'identifier deux paramètres importants que sont le déphasage ΔkZ et le coefficient effectif χ_{eff} , et leurs rôles respectifs sur la valeur de l'énergie THz générée.

CHAPITRE 2

SPECTRE THZ ET GÉNÉRATION THZ PAR DIFFÉRENCE DE FRÉQUENCES : ÉTAT DE L'ART

Dans le Chapitre précédent, nous avons présenté les conditions d'accord de phase par biréfringence et le coefficient effectif qui sont deux paramètres clés pour que l'énergie d'une onde THz monochromatique ou polychromatique soit élevée quand elle est générée dans un cristal non linéaire à partir d'un processus quadratique de différence de fréquences (DFG). Notons que la communauté attribue la génération d'une onde THz polychromatique à la Rectification Optique (OR), alors que cette dernière correspond au sens strict à la génération d'un champ électrique statique à partir de deux photons de fréquences identiques ($\omega - \omega = 0$). Cette appellation est donc un abus de langage, mais nous la conserverons par la suite.

Le processus de DFG, dont le schéma de principe est rappelé Figure 2.1, implique idéalement trois ondes de pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 situées dans des domaines de transparence du cristal. Classiquement, il s'agit des bandes de transmission visible-infrarouge pour les pulsations incidentes ω_2 et ω_3 , et la bande de transmission THz pour la pulsation ω_1 générée. Elles sont représentées respectivement par les zones violette et grise sur la Figure 2.1 où elles sont séparées par une bande d'absorption (zone blanche). La Figure 2.1 rappelle aussi le schéma de principe du processus quadratique de DFG.

Ce chapitre décrit dans un premier temps les deux méthodes classiquement utilisées pour enregistrer des spectres de transmission dans le domaine THz. Il présente ensuite des exemples de calculs menés pour modéliser la génération par DFG d'une onde THz monochromatique puis polychromatique. Il poursuit en donnant des exemples de montages expérimentaux qui ont été mis en oeuvre pour générer ces ondes THz. Enfin, un état de l'art non exhaustif rend compte des résultats obtenus dans de nombreux cristaux non linéaires utilisés pour générer une onde THz.

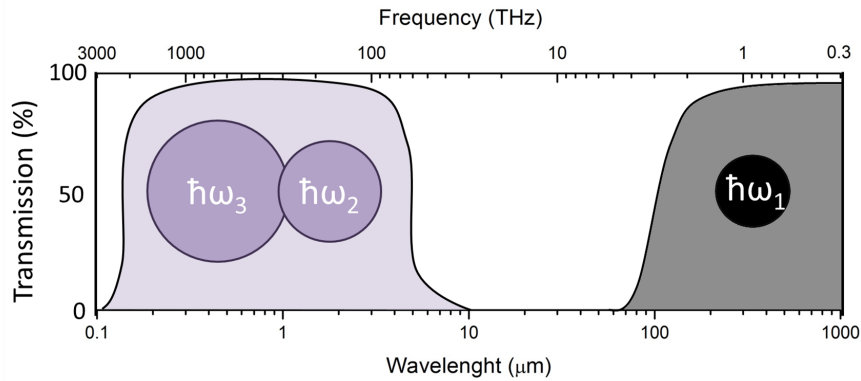


FIGURE 2.1 – Exemple de domaines de transparence d'un cristal pour les trois pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 . Les zones violette et grise correspondent respectivement aux domaines de transparence UV-IR et THz. Elles sont séparées par une bande d'absorption (zone blanche).

2.1 Spectres de transmission THz

Deux techniques de spectroscopie sont principalement utilisées pour mesurer les spectres de transmission dans le domaine THz : la spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR pour Fourier Transform InfraRed), et la Spectroscopie dans le Domaine Temporel (TDS pour Time-Domain Spectroscopy).

2.1.1 Spectroscopie FTIR

Le schéma de principe du montage expérimental d'un spectromètre FTIR, comme celui commercialisé par la société Bruker, est décrit par la Figure 2.2. Pour l'enregistrement de spectres de transmission dans le domaine THz, une lampe de mercure peut être insérée dans le compartiment "sources". Son spectre est celui d'un corps noir qui s'étend entre 30 et 1,5 THz.

Le faisceau émis par la source est collimaté et injecté dans un interféromètre de Michelson. Celui représenté sur la Figure 2.2 est composé d'une lame séparatrice (BMS) et d'un ensemble de miroirs plans. Un des miroirs est monté sur une platine de translation motorisée de sorte que son déplacement permet de faire varier la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre.

Un interférogramme reconstruit numériquement rend compte de la variation de l'intensité de la source à la sortie de l'interféromètre en fonction de la différence de marche pour les différentes longueurs d'ondes du spectre de la source. Il décrit pour chaque longueur d'onde de la source des interférences à deux ondes successivement destructives et constructives quand le miroir mobile se déplace. L'interférogramme regroupe donc la totalité de l'information spectrale comprise entre 1,5 et 30 THz.

A la sortie de l'interféromètre de Michelson, le faisceau est focalisé dans un compartiment qui doit contenir un échantillon. Il se propage jusqu'au détecteur, qui peut être pyroélectrique, comme un DTGS, ou, pour plus de sensibilité, un bolomètre. Un polariseur, qui est soit un filtre polarisant ou un polariseur à grille, peut être rajouté à l'entrée du compartiment échantillon pour des enregistrements de l'interférogramme en lumière polarisée.

L'interférogramme enregistré sans échantillon sert de référence. On place ensuite dans le compartiment échantillon une lame avec deux faces parallèles polies à la qualité optique et taillées perpendiculairement à un axe principal du repère diélectrique, x , y ou z . Le spectre de transmission de cet échantillon va moduler l'interférogramme enregistré au niveau du détecteur.

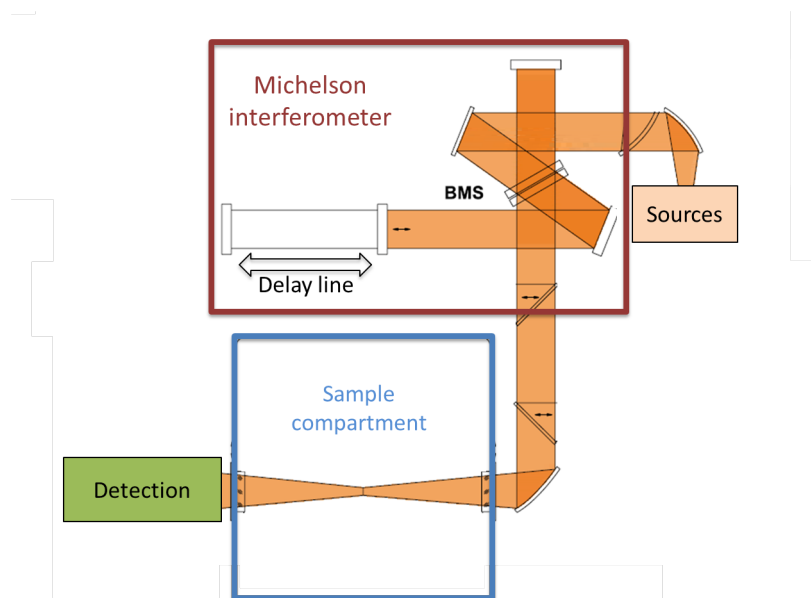


FIGURE 2.2 – Schéma de principe du montage d'un spectromètre FTIR commercialisé par la société Bruker Vertex-80 [27].

La Transformée de Fourier des deux interférogrammes précédents donne deux spectres sur la gamme spectrale couverte par la source. Leur rapport constitue le spectre de transmission du cristal en lumière polarisée. Sa structure résulte à la fois de l'absorption du cristal et des pertes par réflexion de Fresnel sur ses deux faces. Ces deux contributions ne peuvent pas être discernées directement.

L'exemple du spectre de transmission enregistré à travers une lame de BNA avec un spectromètre FTIR est donné dans la Figure 2.3 [28]. La lame a été taillée avec deux faces parallèles perpendiculaires à l'axe y , son épaisseur étant égale à 0,3 mm et le polariseur orienté selon l'axe z . Les fréquences sont comprises entre 0,1 et 22 THz.

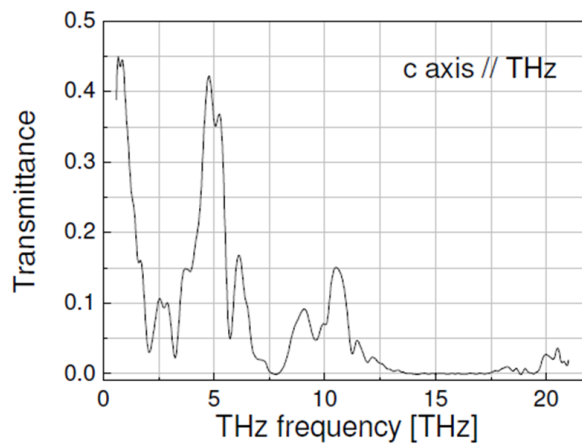


FIGURE 2.3 – Spectre de transmission de BNA en lumière polarisée selon l’axe z . Il a été enregistré avec un spectromètre FTIR à travers une lame de 0,3 mm d’épaisseur et orientée perpendiculairement à l’axe y [28].

2.1.2 Spectroscopie dans le domaine temporel TDS

La spectroscopie dans le domaine temporel, en anglais Time-Domain Spectroscopy (TDS), est l’autre technique la plus utilisée pour enregistrer des spectres de transmission dans le domaine THz en lumière polarisée [3]. Son principe de fonctionnement est décrit par le schéma de la Figure 2.4 [29].

Une impulsion laser femtoseconde, représentée en rouge, est séparée en deux par une lame séparatrice : la première impulsion est focalisée sur une première antenne THz, dite émettrice, telle que celle décrite au chapitre d’introduction (voir la Figure 3). Cette antenne rayonne une impulsion THz de plusieurs dizaines de picosecondes dont le spectre est compris entre 0,1 et 4 THz [29]. L’impulsion THz émise est polarisée linéairement grâce à la disposition des électrodes de l’antenne. La seconde impulsion passe à travers une ligne à retard avant d’être focalisée dans une deuxième antenne, dite détectrice. La ligne à retard permet d’ajuster continuellement le délai d’arrivée de l’impulsion sur l’antenne détectrice.

L’impulsion THz émise par la première antenne est collimatée à l’aide d’une lentille et de miroirs paraboliques pour une propagation dans l’air, suivie d’une focalisation sur l’antenne détectrice. Mais l’impulsion THz ne peut pas être détectée directement. Elle a besoin de la deuxième impulsion femtoseconde qui induit des porteurs entre les deux électrodes de l’antenne détectrice. Ces porteurs sont mis en mouvement par le champ électrique THz. Dans ces conditions, un courant proportionnel au champ électrique THz est généré pendant la durée de l’impulsion. La ligne à retard permet alors à l’impulsion femtoseconde d’échantillonner le champ électrique THz, ce qui permet de reconstituer son profil temporel qui arrive sur l’antenne détectrice. L’onde THz qui se propage sans échantillon constitue une référence. Un exemple de son profil temporel est donné par la courbe en trait plein représentée par la Figure 2.5.

Quand l'impulsion THz traverse une lame à faces parallèles, son amplitude et sa phase temporelle sont modifiées par les propriétés optiques linéaires du cristal, par l'indices de réfraction et le coefficient d'absorption, comme le montre la courbe en pointillés de la Figure 2.5.

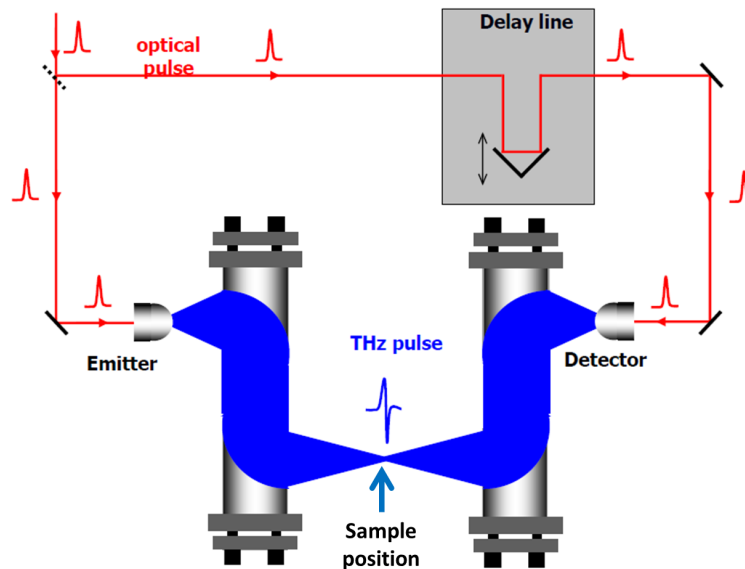


FIGURE 2.4 – Schéma d'un montage de spectroscopie TDS permettant de mesurer le spectre de transmission THz [29].

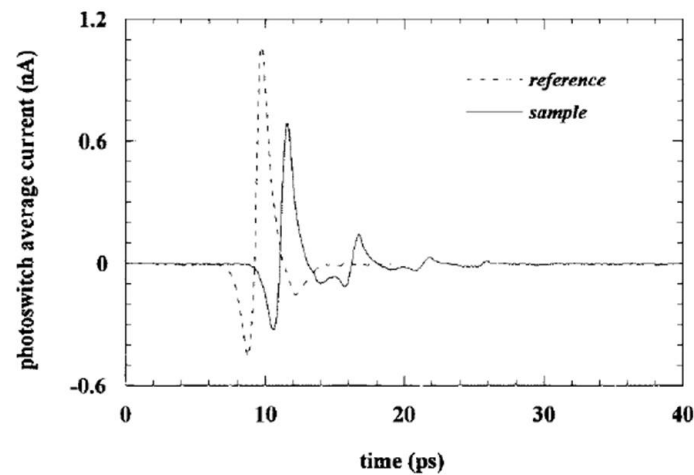


FIGURE 2.5 – Exemple d'une impulsion THz de référence reconstituée par Time-Domain Spectroscopy sans échantillon (pointillés) ou après avoir traversé un échantillon (trait plein) [30].

La transformée de Fourier des deux signaux temporels de la Figure 2.5 permet de déterminer deux spectres dont le rapport correspond au spectre de transmission THz en lumière polarisée du cristal étudié. Ce spectre contient aussi les pertes de Fresnel aux interfaces et les pertes par absorption.

2.2 Génération d'ondes THz : études théoriques

Les études théoriques sur la génération THz consistent à déterminer les conditions d'accord de phase et la valeur du coefficient effectif associé qui permettront d'optimiser l'énergie générée par DFG. L'intérêt porte aussi bien sur la génération d'une onde THz monochromatique que polychromatique. Les Eq. (1.38) et (1.40) du Chapitre 1 montrent que le calcul des conditions d'accord de phase utilise les valeurs des indices de réfraction principaux aux trois pulsations, ω_1 , ω_2 et ω_3 . Elles sont décrites par les équations de Sellmeier qui doivent être déterminées préalablement.

2.2.1 Détermination des Equations de Sellmeier

Dans le domaine de transparence visible et proche infrarouge, qui est celui des pulsations ω_2 et ω_3 , les équations de Sellmeier sont classiquement déterminées avec des échantillons taillés en forme de prismes orientés [31].

Pour les cristaux anisotropes uniaxes, un seul prisme orienté est nécessaire. S'il est taillé avec son arête parallèle à l'axe diélectrique z, les deux indices de réfraction principaux n_o et n_e sont déterminés successivement avec l'état de polarisation linéaire du faisceau incident orienté parallèlement à l'axe diélectrique x puis y respectivement. Par contre, deux prismes orientés dans le repère diélectrique sont nécessaires pour déterminer les trois indices de réfraction principaux, n_x , n_y et n_z , d'un cristal biaxe.

Dans tous les cas, la valeur de l'indice de réfraction principal est déterminée à partir de la mesure du minimum de déviation à la sortie du prisme. Les équations de Sellmeier sont alors obtenues à partir de l'interpolation des valeurs des indices de réfraction principaux déterminées pour plusieurs longueurs d'onde du domaine de transparence visible-infrarouge du cristal étudié.

La précision de la mesure du minimum de déviation est limitée par l'usinage des prismes orientés, qui doivent avoir des faces parfaitement planes. Notons que la détection du minimum de déviation dans l'infrarouge est délicate, ce qui limite la fiabilité de la méthode pour les hautes longueurs d'onde. La précision de la valeur d'un indice de réfraction principal déterminé avec un prisme de taille millimétrique est de l'ordre de 10^{-3} . Or, elle doit être de 10^{-4} sur tout le domaine de transparence du cristal afin de permettre de calculer les directions d'accord de phase à mieux que le degré.

Une autre méthode plus précise a été développée dans notre équipe. Elle consiste en la mesure directe des courbes d'accord de phase dans un ou plusieurs plans principaux du repère diélectrique du cristal à l'étude, en utilisant un échantillon taillé sous la forme d'un cylindre ou d'une sphère. Ces courbes d'accord de phase, donnant la longueur d'onde générée en fonction de l'angle, peuvent être enregistrées pour tous les types possibles de processus, SHG, SFG ou DFG. Cependant leur nombre est sélectionné de manière à solliciter autant que possible les indices de réfraction principaux sur tout le domaine de transparence du cristal.

Une interpolation simultanée de toutes les courbes d'accord de phase mesurées en utilisant un algorithme de Levenberg-Marquardt encodé avec le logiciel MATLAB permet de déterminer les équations de Sellmeier du cristal étudié. Avec une précision angulaire inférieure au degré et une précision spectrale de l'ordre du nanomètre pour les mesures, les valeurs des indices de réfraction principaux sont déterminées avec une précision inférieure à 10^{-4} sur le domaine de transparence du cristal où les indices ont été sollicités [32].

Dans le domaine de transparence THz, qui concerne uniquement la pulsation ω_1 , c'est la spectroscopie TDS qui est la technique la plus utilisée pour déterminer la valeur de l'indice de réfraction. Dans ce domaine, où l'absorption des cristaux est non négligeable, il est nécessaire de considérer l'indice comme une grandeur complexe, à savoir :

$$\tilde{n}_i(\omega) = n_i(\omega) + j\kappa_i(\omega) \quad (2.1)$$

où $i = x, y$ ou z .

La partie réelle $n_i(\omega)$ correspond aux indices de réfraction principaux décrits au Chapitre 1. La partie imaginaire $\kappa_i(\omega)$ est reliée aux valeurs principales du coefficient d'absorption défini par $\alpha_i(\omega) = \frac{\omega\kappa_i(\omega)}{c}$.

Notons que des travaux de l'équipe ont montré que les valeurs principales $n_i(\omega)$ et $\kappa_i(\omega)$ sont toutes accessibles dans le repère diélectrique, sauf pour les cristaux monocliniques et tricliniques [33].

Le spectre de transmission en lumière polarisé obtenu par la spectroscopie TDS peut être modélisé par la fonction analytique suivante, à la pulsation ω [30] :

$$T_i(\omega) = \frac{4\tilde{n}_i(\omega)}{(1 + \tilde{n}_i(\omega))^2} e^{-i(\tilde{n}_i(\omega)-1)\frac{\omega L}{c}} .FP_i(\omega) \quad (2.2)$$

avec
$$FP_i(\omega) = \frac{1}{1 - \left(\frac{\tilde{n}_i(\omega)-1}{\tilde{n}_i(\omega)+1}\right)^2 e^{-i2\tilde{n}_i(\omega)\frac{\omega L}{c}}}$$

où $i=x, y$ ou z , et L est l'épaisseur de l'échantillon. $FP_i(\omega)$ décrit la fonction Fabry Perot due à des allers-retours de l'impulsion THz lors des réflexions successives sur les deux faces du cristal. Elle est considérée ici égale à 1.

L'Equation 2.2 fait alors apparaître deux termes : le premier, $\frac{4\tilde{n}_i(\omega)}{(1+\tilde{n}_i(\omega))^2}$, est l'amplitude du spectre de transmission de l'échantillon. Le second terme est le déphasage $e^{-i(\tilde{n}_i(\omega)-1)\frac{\omega L}{c}}$, qui dépend de l'épaisseur L de l'échantillon. Il est représenté par le décalage temporel entre les deux impulsions de la Figure 2.5. Ces deux termes constituent deux équations où les paramètres $n_i(\omega)$ et $\kappa_i(\omega)$ sont couplés, mais ils sont séparés après une analyse numérique des données.

2.2.2 Calculs pour une onde THz monochromatique

Les valeurs des indices de réfraction principaux dans le domaine de transparence visible et proche infrarouge pour les pulsations incidentes ω_2 et ω_3 , et dans le domaine de transparence THz pour la pulsation générée ω_1 , permettent de calculer les conditions d'accord de phase. Pour cela, il faut résoudre par exemple l'Eq. (1.39). La Figure 2.6 (a) représente le résultat de ce calcul pour la DFG de type V, aussi appelé type 0 par d'autres auteurs. La propagation selon l'axe diélectrique y du cristal de BNA et les trois ondes polarisées selon l'axe z ont été considérées ici. Dans ce calcul, la longueur de cohérence est prise comme infinie car l'accord de phase est réalisé. La Figure 2.6 (a) représente la longueur d'onde incidente λ_2 en fonction de la fréquence THz générée en accord de phase ν_1 (ligne rouge). La valeur de λ_3 , déduite de la loi de conservation de l'énergie, est aussi représentée sur la Figure 2.6 (a) par des lignes grises.

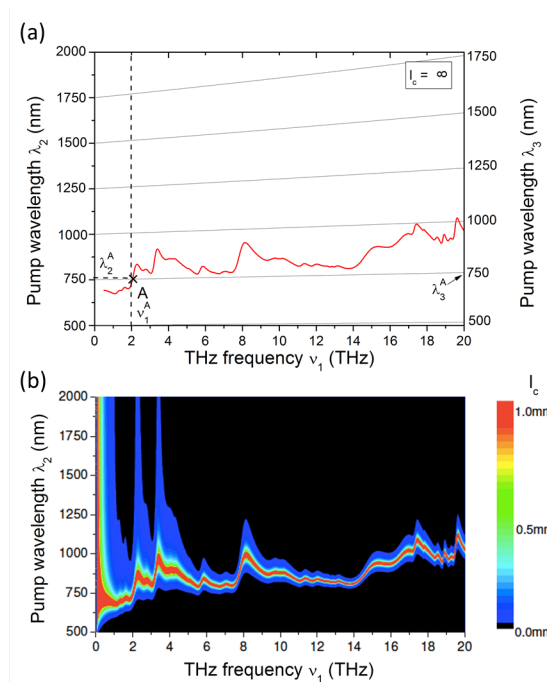


FIGURE 2.6 – Conditions d'accord de phase (a) et longueur de cohérence (b) pour la génération THz par DFG de type V pour une propagation selon l'axe diélectrique y du cristal de BNA [28].

A titre d'exemple, le point A de la Figure 2.6 (a) correspond à la génération d'une onde de fréquence $\nu_1^A = 2$ THz à partir d'un accord de phase atteint pour un couple de longueurs d'onde $(\lambda_2^A, \lambda_3^A) = (753,7 \text{ nm}, 750,0 \text{ nm})$. Si une autre valeur de ν_1 , correspondant à un autre couple (λ_2, λ_3) , est générée en condition d'accord de phase, l'accordabilité de l'onde THz monochromatique est alors assurée.

Comme expliqué dans le Chapitre 1, l'accord de phase n'est pas nécessaire si la valeur de la longueur de cohérence l_c est supérieure ou égale à l'épaisseur L du cristal. La Figure 2.6 (b) est un tracé en 3D, où la variation de la longueur de cohérence est associée à une couleur : rouge si $l_c \geq 1\text{mm}$ et noir si $l_c = 0 \text{ mm}$; l_c est représentée en fonction de la longueur d'onde incidente λ_2 et de la fréquence générée ν_1 , la valeur de λ_3 étant déduite

par la loi de conservation de l'énergie. La situation d'accord de phase, pour laquelle la longueur de cohérence est infinie, se situe au centre de l'aire rouge de la Figure 2.6 (b).

La Figure 2.6 (b) montre que la valeur de la longueur de cohérence reste supérieure à 1 mm, même loin de la condition d'accord de phase lorsque des fréquences sont générées en dessous de 1 THz dans BNA. En revanche, pour des fréquences supérieures à 6 THz, la longueur de cohérence devient rapidement inférieure à 1 mm en dehors de la condition d'accord de phase. Les zones rouges représentées Figures 2.6 (b) montrent que les expériences dans un cristal de BNA de longueur L plus petite que 1 mm devront utiliser deux longueurs d'onde incidentes λ_2 et λ_3 comprises entre 0,6 et 1,1 μm .

2.2.3 Calcul pour une onde THz polychromatique

Connaissant les valeurs des indices de réfraction principaux dans le domaine visible - proche infrarouge aux longueurs d'onde λ_2 et λ_3 , et dans le domaine THz à λ_1 , il est possible de calculer l'accord de phase par biréfringence à partir de l'Eq. (1.41) dans le cas où les restrictions du Chapitre 1 sont respectées. L'Eq. (1.37) permet aussi de calculer le spectre THz polychromatique généré.

Un exemple de ce calcul dans le cristal de DAST est donné Figure 2.7 [24] pour le type V de DFG, en considérant deux spectres incidents centrés à 740 nm (solide) et 710 nm (pointillé), leur largeur spectrale n'ayant pas été donnée dans [24].

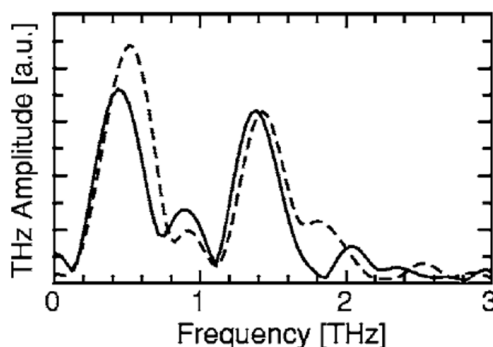


FIGURE 2.7 – Calcul du spectre THz polychromatique généré par DFG dans un cristal de DAST pour une longueur d'onde centrale du spectre incident $\lambda_0 = 740$ nm (solide) et $\lambda_0 = 710$ nm (pointillé) [24].

Les spectres représentés Figure 2.7 prennent en compte l'absorption du cristal dans le domaine THz, ce qui peut être modélisé en substituant les indices de réfraction principaux $n_i(\omega)$ qui interviennent dans l'Eq. (1.33) par $\tilde{n}_i(\omega)$ de l'Eq. (2.1) (voir [24]). Ces calculs seront détaillés au Chapitre 4.

2.3 Génération d'onde THz : études expérimentales

De nombreux articles de la littérature décrivent deux types de montages mis en place pour générer une onde THz monochromatique ou polychromatique. Nous proposons ici

de décrire deux exemples.

2.3.1 Exemple de montage pour générer une onde THz monochromatique

Un exemple de montage expérimental réalisé pour la génération d'une onde monochromatique est schématisé Figure 2.8 [34]. Le faisceau d'un laser Nd :YAG de 12 ns de durée d'impulsion, de 10 Hz de fréquence de répétition et de longueur d'onde égale à $1,064 \mu\text{m}$ est focalisé dans deux cristaux de LBO.

Dans le premier cristal de LBO, un processus de SHG génère une onde à $0,532 \mu\text{m}$. La combinaison colinéaire de cette nouvelle onde avec une partie de l'onde à $1,064 \mu\text{m}$ conduit par SFG à la génération d'un faisceau à la longueur d'onde $0,355 \mu\text{m}$. Ce dernier faisceau pompe deux Oscillateurs Paramétriques Optiques (OPO) imbriqués. Ils sont constitués par deux cristaux de BBO identiques insérés entre deux miroirs, M1 et M2. Chaque OPO permet de générer de manière totalement accordable un couple de longueurs d'onde en fonction de l'orientation relative des deux cristaux de BBO.

Dans l'exemple de la référence [34], les longueurs d'onde générées sont accordables indépendamment l'une de l'autre sur la gamme $0,8 - 1,8 \mu\text{m}$. Elles constituent les longueurs d'onde λ_2 et λ_3 qui sont injectées dans un cristal de BNA ou de DAST afin de réaliser le processus de DFG. L'onde THz générée à λ_1 est focalisée dans un détecteur bolométrique à l'aide de deux miroirs paraboliques. Un filtre est utilisé pour éliminer tout signal dû aux longueurs d'onde λ_2 et λ_3 .

La configuration de l'état de polarisation des trois ondes en interaction qui a été utilisé n'est pas donnée dans la ref [34]. Cependant, compte tenu des travaux précédents et des éléments non nuls du tenseurs $\chi^{(2)}$ qui peuvent être sollicités dans ces deux cristaux, nous avons considéré que les configurations étaient les suivantes :

Pour le cristal de BNA, les trois ondes en interaction se propagent selon l'axe y et sont polarisées selon l'axe z, de sorte que le coefficient effectif donné par l'Eq. (1.24) est égal à χ_{zzz} compte tenu de l'Eq. (1.42). Cette configuration de polarisation correspond au Type V du Tableau 1.6 (couramment appelé Type 0). Elle a été choisie car la valeur de χ_{zzz} est très forte, de l'ordre de 234 pm/V mesurée à $0,532 \mu\text{m}$ [35].

Pour le cristal de DAST, la propagation est selon l'axe z [36]. Les trois ondes en interaction sont polarisées selon l'axe x, de sorte que le coefficient effectif est égal à χ_{xxx} . Le cristal de DAST étant monoclinique, du groupe ponctuel m, et appartenant à la classe optique biaxe négative [37], cette configuration de polarisation correspond au Type V. Elle a été choisie en raison de la forte amplitude de χ_{xxx} , qui est de l'ordre de 230 pm/V dans le visible [38].

L'orientation des deux échantillons étant fixe, la condition d'accord de phase définie par l'équation (1.38) est recherchée en faisant varier les longueurs d'ondes incidentes via l'accordabilité indépendante les deux OPO. Les plus grandes valeurs de l'énergie THz générée ont été obtenues pour des longueurs d'onde λ_2 et λ_3 entre $1,3$ et $1,8 \mu\text{m}$ pour

le cristal de DAST, et dans la gamme 0,8 - 1,3 μm pour BNA. Les valeurs de l'intensité générée les plus fortes, en fonction de la fréquence THz sont données dans la Figure 2.9 pour ces deux cristaux.

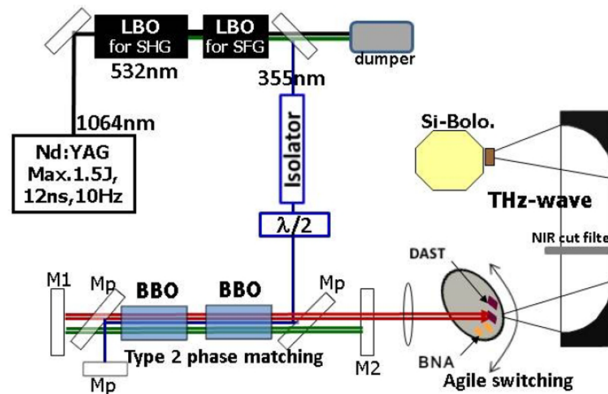


FIGURE 2.8 – Montage expérimental de DFG pour la génération d'une onde THz monochromatique accordable dans des cristaux de BNA et de DAST [34].

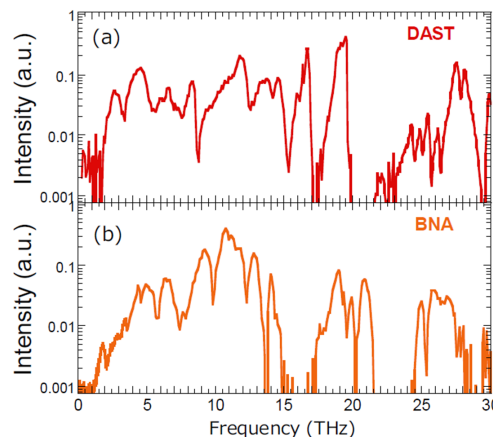


FIGURE 2.9 – Intensités optimales de génération THz mesurées en fonction de la fréquence THz pour les cristaux de DAST (a) et de BNA (b) [34].

2.3.2 Exemple de montage pour générer une onde THz polychromatique

Un exemple de montage expérimental pour la génération d'une onde THz polychromatique est schématisé par la Figure 2.10 (a). Un laser Ti :Saphir de durée d'impulsion 50 fs et de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 0,8 \mu\text{m}$ a été utilisé. Il est focalisé dans le cristal de BNA. La largeur spectrale à mi-hauteur est $\Delta\lambda = \frac{\lambda_0^2}{2\pi c} \Delta\omega = 30 \text{ nm}$. Le faisceau à λ_0 résiduel à la sortie du cristal non linéaire est absorbé par un filtre, alors que l'onde THz générée est détectée par une cellule de Golay.

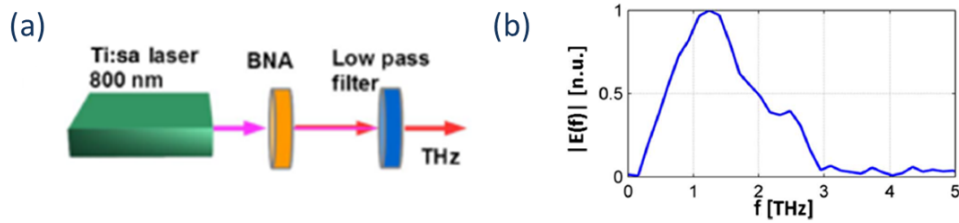


FIGURE 2.10 – Montage expérimental pour l'étude de la génération d'une onde THz polychromatique par DFG (ou OR) dans un cristal de BNA (a), et énergie THz générée en fonction de la fréquence THz (b) [39].

Le cristal de BNA est toujours une lame avec deux faces parallèles polies à la qualité optique et taillées perpendiculairement à l'axe diélectrique y . La polarisation de l'onde incidente est orientée selon l'axe diélectrique z . La DFG de Type V est étudiée de sorte que le facteur champ a pour seul élément non nul, F_{zzz} , et le coefficient effectif se réduit donc à χ_{zzz} . L'énergie THz générée avec ce montage expérimental en fonction de la fréquence THz est donnée par la Figure 2.10, qui montre une extension de 0,1 à 3 THz comparé à la Figure 2.9. Comme dit précédemment, le processus de Rectification Optique (OR) est associé à cette méthode expérimentale.

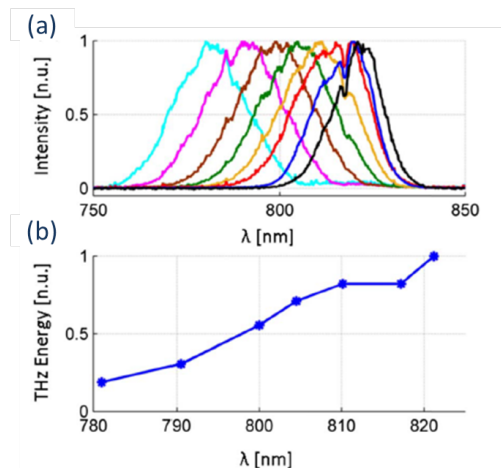


FIGURE 2.11 – Spectre de l'impulsion femtoseconde injectée successivement dans le cristal de BNA (a), et énergie THz générée par DFG (OR) correspondante (b) [39].

La valeur de l'énergie générée a pu être mesurée en fonction de la longueur d'onde centrale du spectre de l'impulsion THz [39]. Pour ce faire, une fente est insérée dans le réseau du laser afin de modifier son spectre, comme le montre la Figure 2.11 (a). L'énergie est donnée par la Figure 2.11 (b), où aucun maximum n'est observé sur la gamme étudiée [39].

Nous pouvons aussi remarquer que le profil de l'énergie THz représenté Figure 2.10 est celui de la Figure 1.10 convolué par le spectre de transmission du cristal.

2.4 Les cristaux non linéaires pour la génération THz

Le Tableau 2.1 donne un état de l'art non exhaustif d'expériences de génération d'une onde THz monochromatique par DFG dans tout un ensemble de cristaux non linéaires. Pour chaque cristal considéré, les références sont données en fin de ligne. Elles sont précédées dans l'ordre par : le type d'interaction, l'élément du tenseur $\chi^{(2)}$ sollicité, les longueurs d'onde λ_1 et λ_2 utilisées, la gamme des fréquences générées ν_{THz} , et enfin la puissance P_{THz} et/ou l'énergie E_{THz} générée, lorsqu'elles sont renseignées.

Cristal	Type	$\chi^{(2)}$	λ_1, λ_2 (μm)	ν_{THz} (THz)	E_{THz} ou P_{THz}	Année	Ref
BNA	V	χ_{zzz}	$\lambda_1 = 0,812$ $\lambda_2 = 0,7 - 1$	0,1 - 15	N.R.	2008	[40]
	V	χ_{zzz}	$(\lambda_1, \lambda_2) = 0,78 - 0,95$	0,1 - 15	N.R.	2009	[28]
	V	χ_{zzz}	$(\lambda_1, \lambda_2) = 0,8 - 1,8$	0,1 - 15 17 - 21 25 - 28	N.R.	2012	[34]
DAST	V	χ_{xxx}	$\lambda_1 = 1,529$ $\lambda_2 = 1,529 - 1,546$	0,43 - 3	52 pW	2000	[41]
	V	χ_{xxx}	$\lambda_1 = 1,3$ $\lambda_2 = 1,3 - 1,8$	26 - 27,5 ~ 29	$\sim 1 \mu\text{J}$	2007	[38]
	V	χ_{xxx}	$(\lambda_1, \lambda_2) = 1,26 - 1,76$	2,5 - 20 22,5 - 26	N.R.	2010	[36]
	V	χ_{xxx}	$(\lambda_1, \lambda_2) = 0,8 - 1,8$	2,0 - 17 18 - 19,5 23 - 29	N.R.	2012	[34]
DSTMS	V	N.R.	$\lambda_1 = 1,35$ $\lambda_2 = 1,35 - 1,45$	0,88 - 19,17	17,9 W	2014	[42]
GaAs	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 2,107$ $\lambda_2 = 2,150$	2,8	1 mW	2007	[43]
	III	χ_{xyz}	N.R.	0,4 - 3,5	1 mW	2008	[44]

Cristal	Type	$\chi^{(2)}$	λ_1, λ_2 (μm)	ν_{THz} (THz)	E_{THz} ou P_{THz}	Année	Ref
GaP	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 1,050 - 1,063$ $\lambda_2 = 1,064$	0,5 - 3	480 mW à 1,3 THz	2003	[45]
	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 1,030 - 1,060$ $\lambda_2 = 1,064$	3 - 7	100 mW à 5,6 THz, 3 mW à 7 THz	2003	[46]
	III	χ_{xyz}	$(\lambda_1, \lambda_2) = 0,93 - 1$	0,5 - 4,5	0,66 mW à 1,9 THz	2004	[47]
	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 1,064$ $\lambda_2 = 1,0646 - 1,087$	0,1 - 4,22	15,6 W à 1,73 THz	2005	[48]
	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 1,549$ $\lambda_2 = 1,549 - 1,579$	1 et 2,6	N.R.	2006	[49]
	III	χ_{xyz}	$\lambda_1 = 1,538$ $\lambda_2 = 1,550$	1,5	339 μW	20011	[50]
GaSe	NR	NR	$\lambda_1 = 1,203$ $\lambda_2 = 1,249 - 1,254$	9,5 - 10,5	N.R.	2014	[51]
	N.R.	χ_{yyy}	$\lambda_1 = 2,126 - 2,101$; $\lambda_2 = 2,132 - 2,157$	0,41 - 3,71	1,2 μW	2016	[52]
OH1	V	χ_{zzz}	$\lambda_1 = 1,030$ $\lambda_2 = 1,064$	9,4	1 μW	2014	[53]
	V	χ_{zzz}	$\lambda_1 = 1,047$ $\lambda_2 = 1,053$	1,6	51 nW	2015	[54]
	V	χ_{zzz}	$\lambda_1 = 1,23 - 1,36$ $\lambda_2 = 1,355$	0,02 - 3	507 nJ à 1,92 THz	2016	[55]
ZGP	VIII	χ_{zxy}	$\lambda_{1,2} = 0,71 - 1,8$ $\lambda_{1,2} = 1,064$	1,7 - 4	36 W à 3 THz	2003	[56]
	N.R.	N.R.	$\lambda_1 = 1,0642$ $\lambda_2 \sim 1,059$	2 - 3	2 mW	2007	[57]

TABLE 2.1 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors de la génération THz monochromatique accordable par DFG dans les cristaux non linéaires.

D'après le Tableau 2.1, la plupart des études de génération d'une onde THz monochromatique a impliqué des longueurs d'onde incidentes λ_2 et λ_3 fixes, ou variant sur des gammes spectrales restreintes. La plus large gamme spectrale utilisée a été celle que nous avons présentée en exemple, où les deux longueurs d'onde λ_2 et λ_3 variaient sur la gamme 0,8 - 1,8 μm [34]. Les cristaux pour lesquels l'accordabilité dans le THz a été la plus large sont les cristaux organiques de BNA, DAST et DSTMS, car les fréquences générées balayent tout le domaine THz dans ces matériaux. Chaque cristal présente cependant des zones où l'énergie THz est nulle, ce qui est dû à l'absorption du cristal.

Parmi les références citées dans le Tableau 2.1, une seule signature de l'accord de phase a été prouvée dans le cristal de DAST[36]. Pour ce faire, l'intensité THz générée par DFG est étudiée. Elle a été enregistrée pour une propagation selon l'axe cristallographique c , avec toutes les polarisations orientées selon l'axe a . Les deux longueurs d'onde incidentes, λ_2 et λ_3 , sont accordables entre 1,26 et 1,76 μm . Pour chaque fréquence THz, l'étude de l'intensité générée a été mesurée en fonction du couple de longueurs d'onde incidentes (λ_a , λ_b). Le résultat à la fréquence 18,9 THz est donné Figure 2.12, où l'intensité générée est donnée en fonction de l'une des deux longueurs d'onde incidentes.

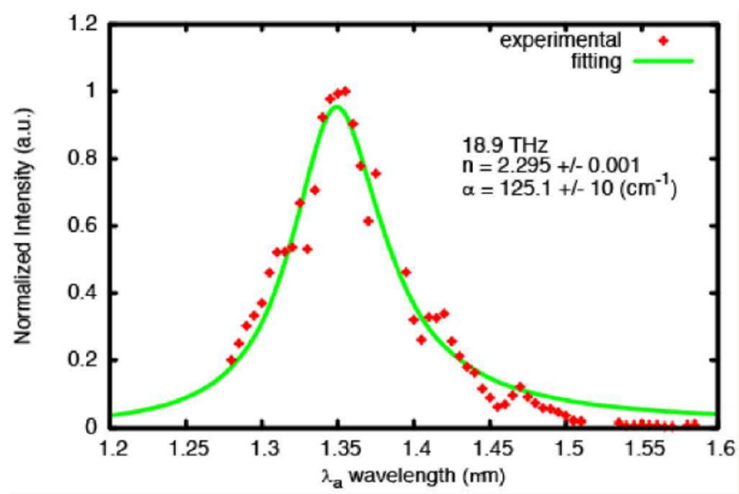


FIGURE 2.12 – Variation de l'intensité THz générée à 18,9 THz autour de l'accord de phase dans un cristal de DAST pour des longueurs d'ondes incidentes autour de 1,35 μm [36].

La Figure 2.12 montre que l'évolution de l'intensité générée présente, autour de 1,47 μm , un "rebond", signant ainsi l'accord de phase après comparaison avec la Figure 1.13. A notre connaissance, il s'agit ici de la seule preuve dans la littérature de mise en évidence d'un accord de phase de génération THz par DFG.

Le Tableau 2.1 fait référence à des montages pour lesquels les longueurs d'ondes incidentes sont doublement accordables. Cela a été réalisé avec deux OPOs situés dans la même cavité optique. La polarisation des deux ondes incidentes est donc la même, ce qui limite le nombre de types décrits par le Tableau 1.6.

Le Tableau 2.2 répertorie l'état de l'art non exhaustif des cristaux non linéaires utilisés pour de la génération d'une onde THz polychromatique par rectification optique. Le type d'interaction et le coefficient effectif sollicité sont donnés, quand ces informations ont été trouvées dans les références citées. La longueur d'onde centrale λ_0 , et la durée d'impulsion Δt , sont données, ainsi que les fréquences générées, lorsqu'elles ont été mesurées.

Cristal	Type	$\chi^{(2)}$	λ_0 (μm)	Δt (fs)	ν_{THz} (THz)	E_{THz} ou P_{THz}	Année	Ref
BNA	V	χ_{zzz}	0,812	50	0,1 - 4	N.R.	2006	[58]
	V	χ_{zzz}	0,782 - 0,822	34 - 74	0,1 - 3	N.R.	2016	[39]
CdTe	N.R.	χ_{xyz} χ_{zxy}	0,813	200	N.R.	N.R.	1993	[59]
	N.R.	N.R.	0,710 - 0,970	<140	N.R.	N.R.	2006	[60]
CLN	N.R.	N.R.	0,8	150	0,1 - 1	4 μJ	2014	[61]
	N.R.	N.R.	1,03	680	0,1 - 1	N.R.	2014	[62]
COANP	V	χ_{zzz}	0,776	150	0,2 - 2,4	N.R.	2009	[63]
CSP	VIII	χ_{zxy}	0,780	50	0,07 - 6	N.R.	2017	[64]
DAST	IV VIII	χ_{xxx} χ_{xyy}	0,55 - 1,6	160	1 - 3 0,2 - 2	N.R. N.R.	2006	[24]
	VIII	χ_{xyy}	0,720 et 0,800	60	1 - 5	N.R.	2013	[65]
DSTMS	VIII	χ_{xyy}	0,720 et 0,800	60	1 - 5	N.R.	2013	[65]
	N.R.	N.R.	1,5	70	1 - 5	N.R.	2013	[66]
	N.R.	N.R.	1,25	95	0,1 - 5	0,9 mJ	2014	[67]
	N.R.	N.R.	1,5 et 1,35	65	0,1 - 5	110 PW.m^{-2}	2015	[68]

Cristal	Type	$\chi^{(2)}$	λ_0 (μm)	Δt (fs)	ν_{THz} (THz)	E_{THz} ou P_{THz}	Année	Ref
GaAs	N.R.	N.R.	1,56	100	0,2 - 3	N.R.	2004	[69]
	N.R.	N.R.	1,98	120	1,78 - 2,49	3,3 μW	2006	[70]
HMQ-TMS	N.R.	N.R.	0,8	90	0,1 - 3	N.R.	2013	[71]
	N.R.	N.R.	1	100	0,1 - 1,5	N.R.	2014	[72]
OH1	V	χ_{zzz}	1,2 - 1,45	150	0,1 - 2,5	N.R.	2008	[73]
	V	χ_{zzz}	0,8	60	0,1 - 2,5	N.R.	2012	[74]
	V	χ_{zzz}	1,35	60	0,1 - 3	N.R.	2014	[75]
ZnTe	N.R.	N.R.	0,8	130	0,1 - 3	N.R.	1996	[76]
	N.R.	N.R.	0,776	150	0,1 - 3	N.R.	2005	[77]
	N.R.	N.R.	0,8	30	0,1 - 3	150 μW	2007	[78]

TABLE 2.2 – Tableau récapitulatif des principaux résultats obtenus lors de la génération d'une onde polychromatique par rectification optique (OR).

D'après le Tableau 2.2, beaucoup de cristaux organiques (BNA, DAST, HMQ-TMS...) et inorganiques (CdTe, CLN, GaAs...) ont été utilisés pour la génération d'une onde THz polychromatique. Parmi ces cristaux, celui de CSP a permis de générer le spectre le plus étendu (0,07 - 6 THz), à partir d'une impulsion pompe centrée à 0,780 μm et d'une durée de 50 fs [64].

2.5 Bilan

Ce chapitre décrit d'abord deux techniques de spectroscopie classiquement utilisées pour l'enregistrement de spectres de transmission en lumière polarisée dans le domaine THz. Il s'agit de la spectroscopie à Transformée de Fourier (FTIR) et de la Spectroscopie dans le domaine Temporel (TDS). Ces deux techniques sont aussi performantes, l'étendue spectrale de la source utilisée étant déterminante pour l'étendue du spectre THz enregistré. Un point important est que la TDS donne aussi accès aux équations qui décrivent la variation en longueur d'onde des valeurs principales de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption .

Nous avons ensuite décrit les deux méthodes qui sont classiquement mises en place pour déterminer les équations de Sellmeier des indices de réfraction principaux dans le domaine de transparence visible et proche-infrarouge. La première utilise des mesures de minimum de déviation sur prismes, et l'autre est la méthode de la sphère qui interpole des mesures de courbes d'accord de phase associées à un processus quadratique.

Si la génération THz monochromatique accordable par le processus de différence de fréquences DFG est visée, toutes les équations précédentes des indices de réfraction principaux permettent de calculer les conditions d'accord de phase qui optimisent l'énergie THz générée. La littérature nous permet de constater un intérêt pour ces conditions d'accord de phase, mais aussi pour la longueur de cohérence qui optimise aussi l'énergie THz générée si sa valeur minimale est au moins égale à la longueur du cristal.

Pour une onde THz polychromatique générée par rectification optique (OR), c'est plutôt son énergie THz qui est calculée, en considérant : le profil spectral et la longueur d'onde centrale des ondes incidentes, les valeurs principales du coefficient d'absorption, et aussi les spectres de transmission en lumière polarisée sur ce domaine de longueurs d'ondes.

Afin de comparer les approches théoriques et expérimentales pour la génération THz, nous avons retenu deux exemples de montages qui ont été proposés pour la génération d'ondes THz par DFG. Deux OPO identiques mais indépendants, ou un laser émettant deux longueurs d'ondes très proches ont été proposés pour l'émission d'une onde THz monochromatique accordable. Pour une onde THz polychromatique, il s'agit majoritairement d'un laser femtoseconde centré à $0,800 \mu\text{m}$.

Un état de l'art non exhaustif concernant un grand nombre de cristaux non linéaires ayant permis de générer une onde THz termine ce chapitre. Il a montré que les meilleures performances ont été obtenues dans les cristaux organiques de BNA, DAST et DSTMS, mais également dans le cristal de CSP. Les rendements de conversion ont rarement été étudiés, de sorte que l'on peut en déduire que ni la valeur ni le signe des coefficients non linéaires des cristaux étudiés ont été déterminés dans le domaine THz.

CHAPITRE 3

CARACTÉRISTIQUES DE NOUVEAUX CRISTAUX DANS LEURS DOMAINES DE TRANSPARENCE

Ce chapitre traite des propriétés d'optique linéaire de 21 cristaux que nous avons étudiés pour la génération d'une onde THz monochromatique ou polychromatique. Ce sont tous des composés minéraux, excepté le cristal BNA qui est organique.

Dans une première partie, nous présentons ces cristaux par leur formule chimique, leur système cristallin et leur groupe ponctuel. Viennent ensuite leur classe optique, l'étendue de leur domaine de transparence dans le visible et le proche infrarouge, ainsi qu'une valeur de leur seuil de dommage optique. Nous donnons aussi les références bibliographiques permettant de connaître leurs équations de Sellmeier. Toutes ces données sont issues de la littérature.

Concernant le cristal organique BNA dont nous avons obtenu des échantillons élaborés dans l'Institut RIKEN de Sendai au Japon, nous avons réalisé des spectres de transmission en lumière polarisée dans les domaines visible et proche infrarouge, et mesuré le seuil de dommage optique. Nous proposons aussi de nouvelles équations de Sellmeier plus fiables.

Enfin ce chapitre présente les résultats que nous avons obtenus pour 21 cristaux, dont BNA, dans le domaine THz. Il s'agit d'abord des spectres de transmission enregistrés dans deux gammes de fréquences complémentaires avec les spectroscopies FTIR et TDS. Ils ont été obtenus en utilisant des lames orientées. La technique TDS a aussi permis de déterminer la variation des valeurs principales des indices de réfraction et des coefficients d'absorption dans le domaine THz. Les courbes correspondantes constituent un ensemble de résultats conséquents qui viennent clore ce chapitre.

3.1 Les cristaux sélectionnés

La formule chimique, le système cristallin et le groupe ponctuel des 21 cristaux sélectionnés sont rappelés dans le Tableau 3.1.

Ils sont classés du plus bas degré de symétrie (monoclinique) vers le plus haut (cubique). Bien évidemment, seuls les groupes ponctuels qui décrivent des cristaux non centro-symétriques sont représentés car nous nous intéressons ici aux processus quadratiques de conversion de fréquence, qui sont associés à des éléments du tenseur de susceptibilité électrique du second ordre.

Les 21 cristaux répertoriés dans le tableau 3.1 ont été obtenus dans le cadre de collaborations nationales et internationales qui sont données ci-après.

Collaborations nationales :

- LBO et de KTP ont été fournis par la société française Crystal Laser S.A.
- CdSe est un cristal commercial fourni par Antoine Godard et Jean-Michel Melkonian de l'ONERA.
- Les cristaux de GeO_2 ont été synthétisés à l'Institut Néel par Alexandra Peña et Bertrand Ménaert.

Collaborations internationales :

- KTA, RTP, YCOB, ADP, KDP, DKDP, BBO et CLN ont été obtenus grâce à une collaboration avec le groupe du Professeur Jiyang Wang, de l'Institute of Functional Crystals de Tianjin en Chine.
- BGSe a été obtenu dans le cadre d'une collaboration avec Valentin Petrov du Max-Born Institute de Berlin en Allemagne [79].
- CSP a été synthétisé par l'équipe de Peter Schunemann du BAE System à Nashua aux Etats Unis [32].
- LGT a été synthétisé par Dmitri Reshchupskin de l'Institute of Microelectronics Technology à Chernogolovka en Russie [79].
- AGS provient de Light Conversion S.A. en Lituanie.
- SiC, ZnO, GaP et GaAs ont été apportés par Ichiro Shoji du laboratoire Department of Electrical, Electronic, and Communication Engineering à Tokyo au Japon, à l'occasion d'un séjour d'une année dans notre équipe.
- BNA a été élaboré par Hiroaki Minamide et Hisomasa Ito du laboratoire RIKEN à Sendai au Japon.

Cristal	Formule chimique	Système cristallin	Groupe ponctuel
BGSe	BaGa ₄ Se ₇	Monoclinique	m
YCOB	YCa ₄ O(BO ₃) ₃		
BNA	N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline	Orthorhombique	mm ²
KTP	KTiOPO ₄		
KTA	KTiOAsO ₄		
RTP	RbTiOPO ₄		
LBO	LiB ₃ O ₅		
LGT	La ₃ Ga _{5,5} Ta _{0,5} O ₁₄	Trigonal	32
BBO	BaB ₂ O ₄		3m
CLN	LiNbO ₃		
SiC	SiC		
CSP	CdSiP ₂	Tétragonal	$\bar{4}2m$
AGS	AgGaS ₂		
ADP	NH ₄ H ₂ PO ₄		
KDP	KH ₂ PO ₄		
DKDP	KD ₂ PO ₄		
GeO ₂	GeO ₂	Hexagonal	622
CdSe	CdSe		6mm
ZnO	ZnO		
GaP	GaP	Cubique	$\bar{4}3m$
GaAs	GaAs		

TABLE 3.1 – Formule chimique, système cristallin et groupe ponctuel des 21 cristaux étudiés.

3.2 Caractéristiques dans le visible et proche infrarouge

Les propriétés d'optique linéaire des 21 cristaux du Tableau 3.1 ont été largement étudiées dans leur domaine de transparence visible et proche infrarouge par d'autres équipes. Le Tableau 3.2 répertorie la classe optique, puis les propriétés optiques les plus importantes qui ont été étudiées. Il s'agit d'abord de l'étendue du domaine de transparence dans le visible et le proche infrarouge. Vient ensuite le seuil de dommage optique, mesuré à 1,064 ou 0,532 μm . La dernière colonne du Tableau 3.2 donne les références bibliographiques permettant de retrouver ces résultats ainsi que les équations de Sellmeier qui décrivent la variation des indices de réfraction principaux en fonction de la longueur d'onde, dans le visible et proche infrarouge.

Notons que la synthèse du cristal de GeO_2 étant très récente, aucune étude de seuil de dommage optique n'a encore été publiée. Si des équations de Sellmeier ont été déterminées, elles sont valides sur un domaine visible très limité [80]. De même, il n'y a pas, à notre connaissance, d'équations de Sellmeier publiées dans la littérature pour le cristal de DKDP.

Les références de la dernière colonne du Tableau 3.1 ont été colorées en vert pour les cristaux de KTA, RTP, BGSe, YCOB, CSP et LGT, quand elles concernent les équations de Sellmeier déterminées par Benoît Boulanger et Patricia Segonds à l'Institut Néel .

Le Tableau 3.2 montre que les seuils de dommage optique ont été étudiés dans des conditions expérimentales différentes. Il est donc difficile de les comparer, même si une lecture rapide du tableau semble indiquer des seuils très faibles pour CSP, CdSe et GaAs, alors qu'ils sont élevés pour les cristaux de LBO, YCOB, BBO et SiC.

Nom	Classe optique	Transmission visible et proche-infrarouge (μm)	Seuil de dommage optique	Références
BGSe	Biaxe > 0	0,47 - 18	0,56 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$, à 1064 nm, 5 ns, 1 Hz	[81] [82]
YCOB		0,3 - 3,4	85 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$, à 1064 nm, 10 ns	[83][84]
BNA		0,5 - 2	25 MW/cm^2 , à 1,064 μm , 10 ns, 10 Hz	[85] [35]
KTP		0,35 - 4,5	4,05 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$, à 1064 nm, 5 ns, 10 Hz	[86] [87]
KTA		0,35 - 4,5	7 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$, à 532 nm, 25 ps, 10 Hz	[88][89]

Nom	Classe optique	Transmission visible et proche-infrarouge (μm)	Seuil de dommage optique	Références
RTP	Biaxe > 0	0,35 - 4,5	0,9 GW.cm^{-2} , à 1064 nm, 15 ns, 10 Hz	[90][91]
LBO		0,16 - 3,25	$>100 \text{GW.cm}^{-2}$, à 532 nm, 25 ps, 10 Hz	[88][92]
LGT	Uniaxe > 0	0,3 - 6	0,65 GW.cm^{-2} , à 1064 nm	[93][94]
BBO		0,19 - 3,5	70 GW.cm^{-2} , à 532 nm, 25 ps, 10 Hz	[88][95]
CLN	Uniaxe < 0	0,42 - 5,2	26 GW.cm^{-2} , à 532 nm, 25 ps, 10 Hz	[88][96]
SiC	Uniaxe > 0	0,4 - 5,6	80 GW.cm^{-2} , à 1064 nm, 10 ns	[97][98]
CSP		0,6 - 10	0,034 GW.cm^{-2} , à 1064 nm, 8 ns, 100 Hz	[99][100]
AGS		0,5 - 13,5	$> 2,2 \text{J.cm}^{-2}$, à 9271,4 nm, 50 ns, 1 Hz	[101][101]
ADP		0,18 - 1,5	6 GW.cm^{-2} , à 1064 nm	[102][103]
KDP		0,18 - 1,55	5 GW.cm^{-2} , à 1064 nm	[102] [104]
DKDP		0,2 - 2,15	5 GW.cm^{-2} , à 1064 nm	[102]
GeO ₂	Uniaxe >0	0,2 - 5	N.R.	N.R.
CdSe		0,75 - 25	0,06 GW.cm^{-2}	[32][105]
ZnO		N.R.	N.R.	[106]
GaP	Isotrope	0,6- 11	4,3 mJ.cm^{-2} , à 1064 nm, 61 fs, 52 MHz	[107][108]
GaAs		0,9 - 16	0,01 GW.cm^{-2} , à 1064 nm, 20 ns	[109][69]

TABLE 3.2 – Classe optique et propriétés d’optique linéaire les plus importantes des 21 cristaux sélectionnés.

3.3 Etude du cristal de BNA dans le visible et proche infrarouge

Dans le cadre d’une collaboration avec Hiroaki Minamide et Hiromasa Ito du laboratoire RIKEN à Sendai (Japon), nous avons reçu des échantillons du cristal organique BNA. Ils ont été élaborés avec une nouvelle technique de croissance [85] qui a produit des

cristaux d'assez bonne qualité.

3.3.1 Etat de l'art

Le cristal de N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) appartient au groupe ponctuel $mm2$ ($Pna2_1$) du système cristallin orthorhombique. Ses paramètres de maille sont $a = 7,390 \text{ \AA}$, $b = 21,432 \text{ \AA}$ et $c = 8,104 \text{ \AA}$ [110]. Le cristal étant orthorhombique, le repère cristallographique (a,b,c) est confondu avec le repère diélectrique (x,y,z) [35].

Des équations de Sellmeier ont été déterminées par Fujiwara et al. [35] pour les trois indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z . Elles ont reposé sur la mesure du minimum de déviation en lumière polarisée réalisée à la sortie de 2 prismes orientés. Comme nous l'avons expliqué dans la section 2.2.1, ce minimum de déviation est directement relié à la valeur d'un indice de réfraction principal. Il a été mesuré dans [35] pour sept longueurs d'onde comprises entre 0,5 et 1,064 μm . Un fit de ces valeurs d'indice a permis de déterminer des équations de Sellmeier qui sont données par [35] :

$$\begin{aligned} n_x^2(\lambda) &= 2,40481 + \frac{0,02245}{\lambda^2 - 0,18254} \\ n_y^2(\lambda) &= 2,89766 + \frac{0,05587}{\lambda^2 - 0,15392} \\ n_z^2(\lambda) &= 3,10611 + \frac{0,12089}{\lambda^2 - 0,185} \end{aligned} \quad (3.1)$$

où λ est en μm . D'après ces équations, BNA est un cristal biaxe positif ($n_x < n_y < n_z$).

En vertu du principe de Neumann, les tenseur $\chi^{(2)}$ de BNA s'écrit dans le repère [111] :

$$\chi^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xzx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

De plus, dans l'approximation de Kleinman, $\chi_{xxz} = \chi_{zxx} = \chi_{xzx}$ et $\chi_{yyz} = \chi_{yzy} = \chi_{xzx}$, de sorte qu'il reste trois éléments indépendants : χ_{xxz} , χ_{yyz} et χ_{zzz} .

3.3.2 Les échantillons

Les cristaux de BNA ont été synthétisés par croissance en solution éthanol. Les échantillons sont de dimensions aussi grandes que $5 \times 10 \times 3 \text{ mm}^3$ [85], dont les photos sont regroupées Figure 3.1. Ces photos rendent compte de la difficulté de croissance des cristaux organiques, car elles montrent de nombreux défauts dans le volume qui limitent leur qualité.

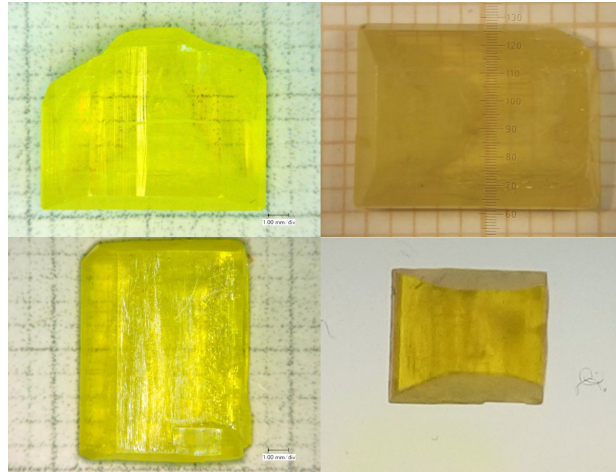


FIGURE 3.1 – Photos des échantillons de BNA synthétisés au laboratoire Riken à Sendai.

Les échantillons de BNA élaborés présentent une face naturelle perpendiculaire à l'axe diélectrique y qui correspond à l'axe cristallographique b . Cette face est celle visible sur toutes les photos de la Figure 3.1.

3.3.3 Spectres de transmission

Nous avons mesuré les spectres de transmission de BNA en lumière polarisée avec un spectromètre Lambda 900 commercialisé par Perkin-Elmer qui couvre la gamme $0,175 - 3,3 \mu\text{m}$.

Nous avons utilisé l'échantillon montré sur la photo située en haut à gauche de la Figure 3.1. Afin de limiter les effets des défauts sur le spectre de transmission, nous avons usiné son meilleur volume sous la forme d'une lame d'épaisseur égale à $860 \mu\text{m}$, avec deux faces parallèles polies et perpendiculaires à l'axe diélectrique y .

La propagation du faisceau incident de lumière blanche selon l'axe y de la lame est assurée en insérant l'échantillon en autocollimation dans le faisceau. Pour l'enregistrement des spectres de transmission en lumière polarisée, un polariseur placé devant l'échantillon est orienté successivement selon les axes diélectriques x et z qui sont localisés à la surface de l'échantillon.

Les spectres enregistrés sont donnés sur la Figure 3.2 qui rend compte d'une fenêtre de transmission limitée, qui s'étend de $0,5 \mu\text{m}$ à $2 \mu\text{m}$ à travers une lame de BNA d'épaisseur $860 \mu\text{m}$. Les spectres montrent également deux pics d'absorption localisés à $1,5 \mu\text{m}$ et $1,69 \mu\text{m}$. Au-delà de $2 \mu\text{m}$, la transmission devient négligeable. Ce résultat corrobore totalement le spectre en lumière non polarisée enregistré selon l'axe y à travers 1 mm de BNA dans [35].

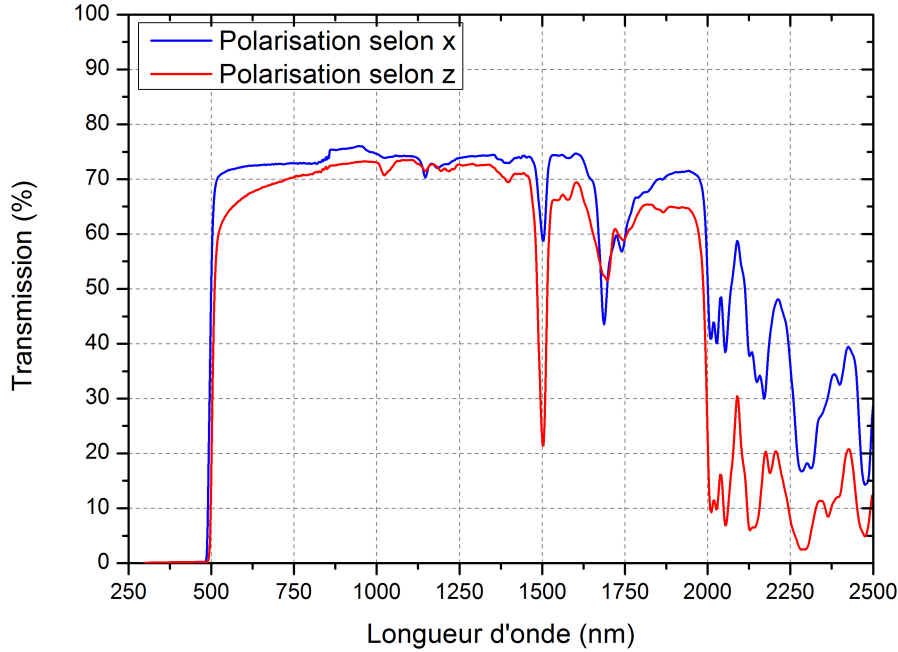


FIGURE 3.2 – Spectres de transmission enregistres en lumiere polarisee a travers une lame de BNA de $860 \mu\text{m}$ d'epaisseur avec deux faces paralleles polies a la qualite optique et taillees perpendiculairement a l'axe dielectrique y .

3.3.4 Seuil de dommage optique

Nous avons etudie le seuil de dommage optique afin d'evaluer la puissance maximale qui peut etre injectee a la surface du cristal BNA sans risquer de l'endommager.

Le seuil de dommage optique a la surface d'un cristal est caracterise par une intensite crete P_s donnee par [20] :

$$P_s = \frac{\tilde{E}}{\tau \pi w_0^2} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \quad (3.3)$$

Où \tilde{E} est l'energie mesuree au seuil d'endommagement, τ est la duree de l'impulsion et w_0 est le rayon du profil spatial du faisceau gaussien au point de focalisation localise a la surface du cristal.

Pour determiner la valeur de P_s , nous avons realise le montage de la Figure 3.3. Un laser Nd :YAG polarise rectilignement, de longueur d'onde egale a $1,064 \mu\text{m}$, de duree d'impulsion $\tau = 5 \text{ ns}$ et de frequence de repetition egale a 10 Hz , a ete utilise. L'energie incidente, d'une valeur maximale de 14 mJ , peut etre attenuée continument par la rotation d'une lame demi-onde placee devant un prisme de Glan-Taylor qui transmet une polarisation rectiligne horizontale.

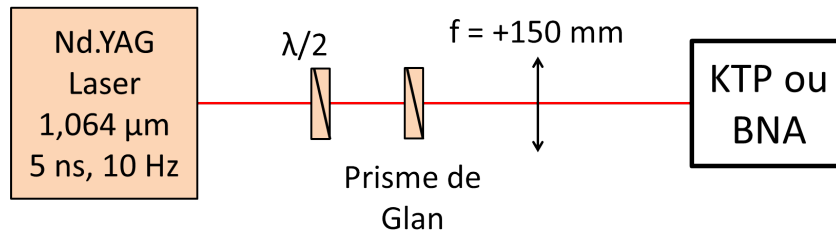


FIGURE 3.3 – Montage pour déterminer le seuil de dommage optique du cristal de BNA.

Le faisceau incident est focalisé à la surface du cristal à l'aide d'une lentille convergente de distance focale $f' = 150$ mm. Un Joulmètre OPHIR PE50 placé devant le cristal permet de mesurer l'énergie incidente à chaque fois qu'elle est augmentée de $100 \mu\text{J}$, depuis sa valeur initiale égale à 0 mJ. Quand le détecteur est retiré, la surface incidente du cristal est exposée au faisceau pendant une minute. Le point d'impact à la surface est toujours le même puisque le cristal ne change jamais de position entre chaque exposition au faisceau, et il est observé en permanence avec une caméra DNT DigiMicro.

Nous avons étudié deux lames dans les mêmes conditions pour comparaison. Leurs faces parallèles sont polies. La première est une lame de BNA, d'épaisseur égale à $2,0$ mm, avec ses deux faces perpendiculaires à l'axe diélectrique y . La deuxième est une lame de KTP de $1,5$ mm d'épaisseur, avec deux faces perpendiculaires à l'axe diélectrique x .

Le seuil de dommage optique est considéré comme atteint quand l'énergie du faisceau incident provoque un endommagement de la surface des lames qui est visible avec la caméra.

La valeur du rayon du faisceau à la surface des cristaux placés au point de focalisation a pu être déterminée avec la « méthode du couteau ». Cette méthode consiste à utiliser une lame de rasoir montée sur une translation motorisée qui la déplace perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau. Pour chaque position de la lame de rasoir, l'énergie transmise est mesurée avec le Joulmètre. L'analyse des données permet de déterminer le profil en énergie du faisceau et son rayon w . Ces mesures et leur analyse sont réalisées successivement pour plusieurs distances Z entre la lame de rasoir et la lentille, choisies de part et d'autre du point de focalisation.

L'évolution du rayon du faisceau en fonction de la distance entre la lame de rasoir et la lentille, soit $w(Z)$, est représentée par les points expérimentaux de la Figure 3.4. De part et d'autre du point de focalisation, l'évolution de $w(Z)$ peut être décrite par :

$$w(Z) = \frac{M^2 \lambda}{\pi w_0} Z \quad (3.4)$$

où M^2 est le facteur de qualité du faisceau. w_0 est le rayon du faisceau dans le plan de focalisation, et λ est la longueur d'onde du laser.

Le meilleur fit des points de la Figure 3.4 avec l'Eq. (3.4) a été obtenu pour $w_0 = 30 \pm 2 \mu\text{m}$ et $M^2 = 1$, ce qui permet de conclure que le profil spatial du faisceau est gaussien et limité 1 fois par la diffraction. Ces valeurs sont en accord avec celles du fournisseur du

laser Nd :YAG. La longueur de Rayleigh correspondante : $Z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda M^2} = 2,66$ mm. Elle permet de fixer l'épaisseur maximale autorisée pour les lames de BNA et KTP à $2Z_R = 5,32$ mm.

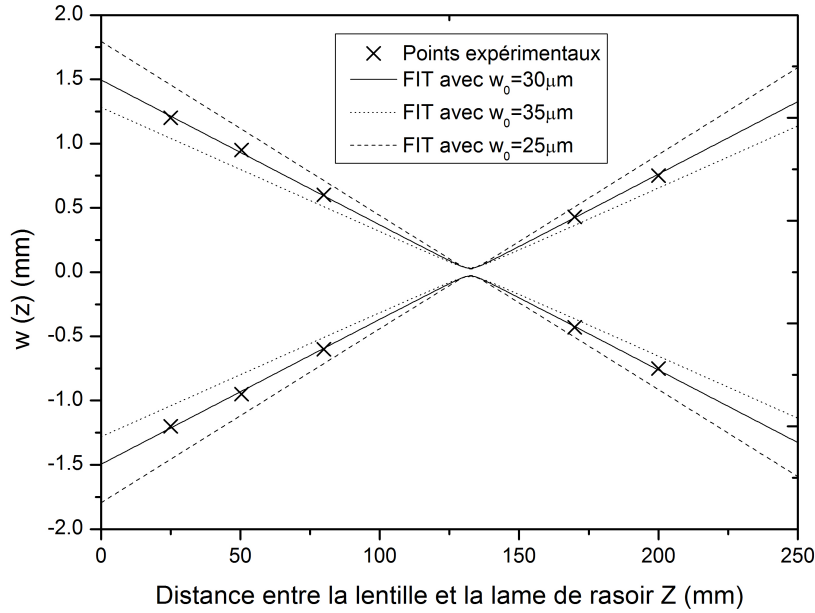


FIGURE 3.4 – Evolution du rayon du faisceau w du faisceau laser Nd :YAG en fonction de la distance Z entre la lentille et la lame de rasoir autour du point de focalisation.

A partir d'une valeur d'énergie incidente $\tilde{E} = 720 \mu\text{J}$, la caméra a montré un endommagement à la surface du cristal de KTP. Il a été observé à la surface du cristal de BNA à partir de $\tilde{E} = 162 \mu\text{J}$. D'après l'Eq. (3.3) et les caractéristiques du faisceau laser utilisé, les seuils de dommage optique des cristaux de BNA et KTP à $\lambda = 1,064 \mu\text{m}$, $\tau = 5$ ns, et avec un taux de répétition de 10 Hz correspondent aux intensités crête respectives de $P_s^{BNA} = 0,96 \text{ GW/cm}^{-2}$ et $P_s^{KTP} = 3,8 \text{ GW/cm}^2$. Notre résultat est beaucoup plus élevé que celui du Tableau 3.2, obtenu dans [85]. Cela est dû à la différence de fréquence de répétition du laser, qui est de 100 Hz dans [85], et de 10 Hz dans notre étude. De plus, le seuil de dommage optique dépend fortement de la croissance et des défauts des échantillons. Nos échantillons sont donc plus résistants que ceux utilisés dans [85].

3.3.5 Equations de Sellmeier

3.3.5.1 La méthode du cylindre

Comme évoqué dans la partie 2.2.1, la méthode du cylindre est la technique la plus précise pour déterminer les équations de Sellmeier. Elle consiste à mesurer directement dans un plan principal du repère diélectrique les courbes d'accord de phase par biréfringence (λ_{PM} , θ_{PM} , ϕ_{PM}), avec une précision angulaire de $\pm 0,5^\circ$ et spectrale de ± 1 nm. Tous les processus de SHG, SFG, DFG1 et DFG2 présentant un coefficient effectif non nuls peuvent être étudiés. La seule limitation est le domaine de transparence du cristal

étudié.

Un fit simultané de toutes les courbes d'accord de phase donne accès aux équations de Sellmeier avec une précision de 10^{-4} . L'enjeu est de solliciter autant que possible les trois indices principaux de réfraction du cristal de BNA sur tout son domaine de transparence.

Le coefficient effectif associé à l'accord de phase considéré est donné dans le tableau 3.3 dans les trois plans principaux du repère diélectrique de BNA, pour les types I et II de SHG, ainsi que pour les types II et III de SFG.

Type	Plan	χ_{eff}
SHG I	(x,y)	0
	(y,z)	0
	(x,z), $\theta > V_z$	0
	(x,z), $\theta < V_z$	$\chi_{zyy}(2\omega)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, 2\omega))$
SHG II	(x,y)	$\chi_{xxz}(2\omega)\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega))\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, 2\omega)) + \chi_{yyz}(2\omega)\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega))\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, 2\omega))$
	(y,z)	$\chi_{xxz}(2\omega)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega))$
	(x,z), $\theta > V_z$	$\chi_{yyz}(2\omega)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega))$
	(x,z), $\theta < V_z$	0
SFG I	(x,y)	0
	(y,z)	0
	(x,z), $\theta > V_z$	0
	(x,z), $\theta < V_z$	$\chi_{zyy}(\omega_3)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega_3))$
SFG II	(x,y)	$\chi_{xxz}(\omega_3)\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_1))\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_3)) + \chi_{yyz}(\omega_3)\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_1))\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_3))$
	(y,z)	$\chi_{xxz}(\omega_3)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega_2))$
	(x,z), $\theta > V_z$	$\chi_{yyz}(\omega_3)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega_2))$
	(x,z), $\theta < V_z$	0
SFG III	(x,y)	$\chi_{xxz}(\omega_3)\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_2))\sin(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_3)) + \chi_{yyz}(\omega_3)\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_2))\cos(\phi_{PM} - \rho(\phi_{PM}, \omega_3))$
	(y,z)	$\chi_{xxz}(\omega_3)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega_1))$
	(x,z), $\theta > V_z$	$\chi_{yyz}(\omega_3)\sin(\theta_{PM} - \rho(\theta_{PM}, \omega_1))$
	(x,z), $\theta < V_z$	0

TABLE 3.3 – Coefficients effectifs associés aux conditions d'accord de phase dans les trois plans principaux du repère diélectrique du cristal de BNA pour les interactions de SHG de types I et II, et de SFG de types I, II et III.

L'angle de double réfraction $\rho(\theta, \omega_i)$ est donné par l'équation (1.16).

D'après le Tableau 3.3, le coefficient effectif associé aux types I et II de SHG et aux types I, II et III de SFG n'est jamais nul dans le plan (x,z), excepté pour la direction z. Ce plan est donc celui qui offre le plus de possibilités de mesurer des courbes d'accord de phase en sollicitant les trois indices de réfraction sur tout le domaine de transparence du cristal. Nous avons donc tout intérêt à usiner un échantillon de BNA de la Figure 3.1

sous la forme d'un cylindre avec un axe de rotation orienté selon l'axe diélectrique y , de manière à ce que son diamètre soit situé dans le plan (x,z) .

3.3.5.2 Usinage d'un cylindre de BNA

Le montage ayant permis de réaliser l'usinage d'un cylindre de BNA est donné par la Figure 3.5.

La face naturelle d'un échantillon de BNA de la Figure 3.1 a été orientée et polie de manière à constituer une surface de référence, perpendiculaire à l'axe diélectrique y . Cet échantillon a été collé sur une lame épaisse de verre, avec sa surface collée perpendiculairement au sommet d'une tige de métal. Cette dernière est alors insérée au centre d'une tête goniométrique commerciale Hubber équipée de translations et de berceaux. L'ensemble est schématisé en (g) Figure 3.5 [112].

La Figure 3.5 [112] montre que la tête goniométrique est montée sur un bras (c) qui permet d'allonger l'échantillon au dessus d'un plateau de polissage (b). Dans un premier temps, ce bras permet un contact entre le plateau (b) et une partie de la surface latérale des lames de BNA et de verre qui ne bougent pas. La pression de l'échantillon sur le plateau (b) est assurée grâce à un contrepoids (f) fixée en (c). Le plateau (b), qui est recouvert d'une solution d'alumine abrasive, est mis en rotation, ce qui provoque l'arrachement de matière sur toute la facette de la surface latérale des lames qui touche le plateau. Cette opération est répétée plusieurs fois après avoir changé l'orientation de la tête goniométrique, de sorte qu'un polygone avec plusieurs facettes finit par prendre forme.

Une fois le polygone usiné, la tête goniométrique est mise en rotation. Dans ces conditions, le plateau (b) va arracher de la matière de manière homogène sur toute la rotation du polygone, jusqu'à ce que les échantillons de BNA et de verre prennent simultanément la forme d'un cylindre de même diamètre. La hauteur est ajustée par la translation (d) et la vis de réglage (e), ce qui détermine le diamètre du cylindre.

L'alignement entre l'axe de révolution du cylindre et l'axe de révolution du bras qui le porte est contrôlé avec l'autocollimation de la réflexion d'un laser HeNe envoyé sur la surface supérieure de BNA. Pour cela, la vis de réglage (e) ainsi que les deux berceaux (g) de la tête goniométrique sont utilisés. La précision sur l'angle entre l'axe de révolution et la référence de la face est de $0,1^\circ$, et l'acylindricité est inférieure à $0,1\%$.

Une fois la forme cylindrique obtenue, le polissage de sa tranche est effectué avec le même plateau tournant (b) de la Figure 3.5, en réduisant progressivement la taille du grain de l'alumine jusqu'à atteindre un polis d'une rugosité d'environ 10 nm r.m.s.

Le cylindre du cristal BNA collé sur la lame de verre qui a été usiné a un diamètre égal à $4,96 \pm 0,04\text{ mm.}$ Sa photo est montrée dans l'encart de la Figure 3.5.

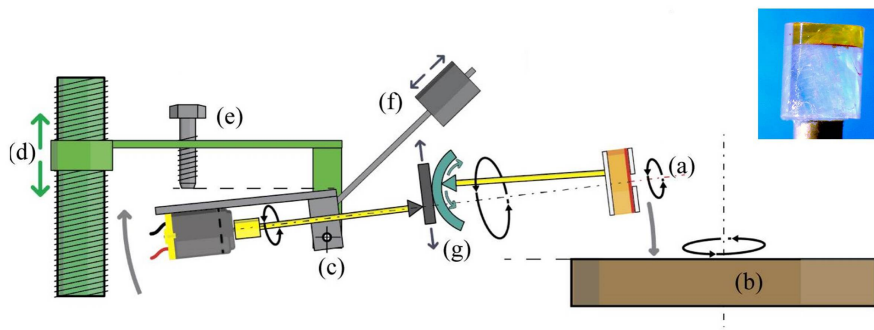


FIGURE 3.5 – Montage pour l'usinage d'un cristal en forme de cylindre [112].

3.3.5.3 Mesures directes des courbes d'accord de phase

Nous avons réalisé la mesure directe des courbes d'accord de phase par biréfringence ($\lambda_{PM}, \theta_{PM}$) pour la SHG et la SFG dans le cylindre usiné, en utilisant le montage présenté dans la Figure 3.6.

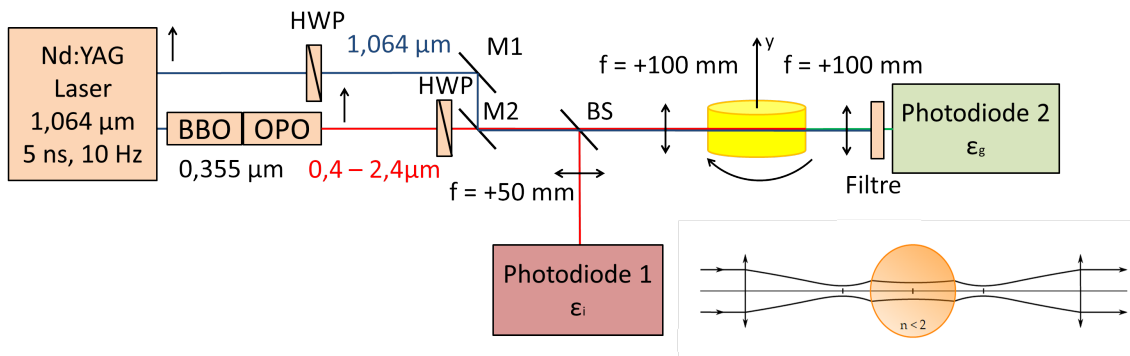


FIGURE 3.6 – Schéma du montage utilisé pour mesurer directement les courbes d'accord de phase dans un cylindre de BNA.

La source est constituée par un laser Nd :YAG de longueur d'onde $1,064 \mu\text{m}$, de durée d'impulsion 5 ns , et de fréquence de répétition 10 Hz . Après avoir été doublé puis triplé en fréquence dans deux cristaux de BBO par un processus de SHG puis SFG respectivement, la longueur d'onde du laser est divisée par 3. Le faisceau généré à $0,355 \mu\text{m}$ pompe un Oscillateur Paramétrique Optique (OPO) qui utilise un cristal de LBO inséré entre deux miroirs plans, et dont la rotation rend la source continument accordable entre $0,4$ et $2,4 \mu\text{m}$.

Pour les mesures de SHG, le faisceau issu de l'OPO est envoyé en incidence normale à la surface du cylindre grâce à la lentille convergente de distance focale $f' = 100 \text{ mm}$ insérée devant l'échantillon. Pour les mesures de SFG, le faisceau de l'OPO a été combiné colinéairement avec une partie du faisceau pompe à $1,064 \mu\text{m}$ par un jeu de deux miroirs M1 et M2 inclinés à 45° , ce dernier étant réfléchissant à 99% autour de $1,064 \mu\text{m}$, et transparent pour les autres longueurs d'onde en-dessus de $1,2 \mu\text{m}$ et en dessous de $0,8 \mu\text{m}$.

Tous les faisceaux utilisés sont polarisés rectilignement, comme indiqué dans la Figure 3.6, et l'orientation de leur polarisation est contrôlée indépendamment par une lame demi-

onde (HWP) qui est achromatique pour le faisceau accordable. La distance entre la lentille et les faisceaux incidents est minutieusement ajustée afin que les faisceaux se propagent parallèlement au diamètre du cylindre comme schématisé en encart dans la Figure 3.6 [87].

La tête goniométrique qui porte le cylindre est insérée au centre d'un cercle KAPPA qui permet d'accéder à toutes les directions du plan (x,z) avec une précision angulaire de $0,01^\circ$.

La variation des énergies ϵ_i des faisceaux incidents est mesurée à partir d'une réflexion sur une lame semi-réfléchissante (BS) envoyée sur la photodiode 1 précédée d'une lentille convergente de distance focale $f' = 50$ mm comme montré sur la Figure 3.6. Un filtre KG3 placé à la sortie du cylindre permet de couper les faisceaux incidents, pour que l'énergie générée ϵ_g soit la seule à être détectée sur la photodiode 2. Le rendement de conversion est défini par $\eta = \epsilon_g/\epsilon_i$ avec $\epsilon_i = \epsilon_\omega + \epsilon_\omega$ et $\epsilon_g = \epsilon_{2\omega}$ pour le processus de SHG et $\epsilon_i = \epsilon_1 + \epsilon_2$ et $\epsilon_g = \epsilon_3$ pour le processus de SFG. Toutes les énergies sont mesurées à l'aide de deux photodiodes calibrées et couplées à des amplificateurs. La longueur d'onde d'accord de phase générée λ_{PM} a été mesurée avec une précision de ± 1 nm à l'aide d'un spectromètre fibré HR 4000 Ocean Optics.

Les courbes d'accord de phase mesurées pour la SHG et la SFG de Types I et II sont représentées dans les Figures 3.7 et 3.8 respectivement. Aucun signal n'a été détecté pour la SFG type III. Pour les SHG types I et II, les points de la Figure 3.7 reportent la valeur de la longueur d'onde fondamentale λ_ω en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} . La longueur d'onde générée est $\lambda_{2\omega} = \lambda_\omega/2$. Pour les SFG types I et II, la longueur d'onde incidente accordable et la longueur d'onde générée λ_3 sont reportées en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} (voir Figure 3.8). Au dessus de $1,064 \mu\text{m}$, λ_1 est la longueur d'onde incidente accordable, et $\lambda_2 = 1,064 \mu\text{m}$. Au-dessous de $1,064 \mu\text{m}$, λ_2 est la longueur d'onde incidente accordable, et $\lambda_1 = 1,064 \mu\text{m}$. Notons que pour le type I de SHG et SFG, la mesure du rendement de conversion selon l'axe z ($\theta_{PM} = 0^\circ$) n'a pas été possible car le coefficient effectif est nul dans cette direction, comme dit précédemment.

Notons également que l'espace qui sépare les courbes d'accord de phase de types I et II pour les processus de SHG et SFG dans les Figures 3.6 et 3.7 respectivement, est dû à l'axe optique V_z introduit dans le Chapitre 1. En utilisant les équations de Sellmeier issues de [35] et l'Eq. 1.12, un calcul montre que V_z varie entre 44° et 59° pour des longueurs d'onde comprises entre $0,5$ et $2,0 \mu\text{m}$.

Nous avons calculé les courbes d'accord de phase à partir des équations de Sellmeier issues de [35], données par l'Eq. (3.1). Elles sont aussi représentées dans les Figures 3.7 et 3.8 par des courbes continues bleues. Ces équations ne donnent pas non plus de solutions d'accord de phase pour la SFG type III dans le plan (x,z) pour les longueurs d'onde disponibles avec nos sources.

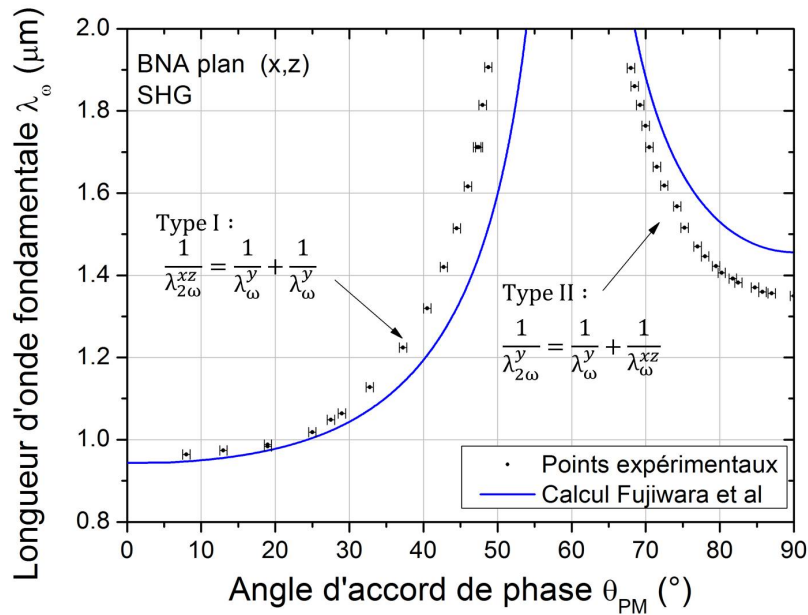


FIGURE 3.7 – Mesures directes (points) et calculs d’après l’Eq. (3.1) (courbe bleue) des courbes d’accord de phase pour la SHG types I et II dans le plan (x,z) du cristal de BNA.

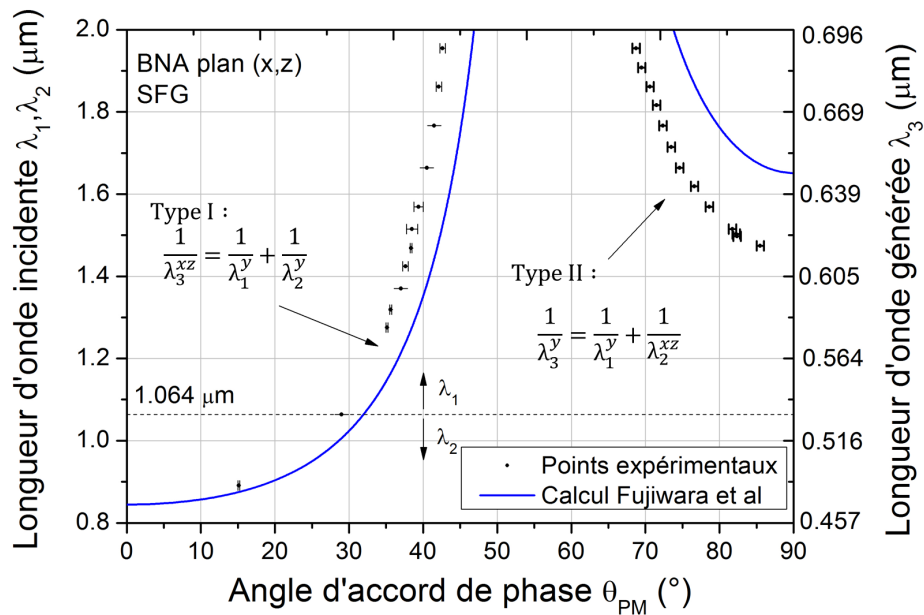


FIGURE 3.8 – Mesures directes (points) et calculs d’après l’Eq. (3.1) (courbe bleue) des courbes d’accord de phase pour la SFG types I et II dans le plan (x,z) du cristal de BNA.

Les Figures 2 and 3 font apparaître une différence significative entre nos résultats expérimentaux et les calculs à partir des Eq. (3.1). La raison principale est que les indices de réfraction principaux ont été déterminés dans [35] par la méthode du minimum de déviation sur prisme, qui ne permet pas d'avoir une précision sur l'indice meilleure que 10^{-3} . De plus, les mesures sur prisme ont été effectuées autour de $0,5 \mu\text{m}$ et à $1,064 \mu\text{m}$, et non pas jusque $2,0 \mu\text{m}$ qui correspond à la coupure infrarouge. Une autre explication possible est que la qualité des cristaux est différente entre nos échantillons et ceux de [35]. Le procédé de synthèse étant différent entre les deux échantillons, la différence de qualité peut conduire à un changement de valeur des indices de réfraction principaux.

Ce désaccord montre que les indices de réfraction publiés dans [35] doivent être affinés, ce qui a pu être réalisé à partir de nos données expérimentales.

3.3.5.4 Nouvelles équations de Sellmeier

Nous avons réalisé une interpolation de tous les angles d'accord de phase des Figures 3.7 et 3.8 avec différentes formes d'équations de Sellmeier. Nous avons utilisé un algorithme de Levenberg-Marquardt encodé avec le logiciel Matlab. Le meilleur résultat a pu être obtenu en ajoutant un terme de correction infrarouge à l'Eq. (3.1). Les équations correspondantes sont les suivantes :

$$\begin{aligned} n_x^2(\lambda) &= 2,3035 + \frac{0,0297}{\lambda^2 - 0,1820} - 0,0091\lambda^2 \\ n_y^2(\lambda) &= 2,8593 + \frac{0,0655}{\lambda^2 - 0,1548} - 0,0073\lambda^2 \\ n_z^2(\lambda) &= 3,1321 + \frac{0,2199}{\lambda^2 - 0,1624} + 0,0024\lambda^2 \end{aligned} \quad (3.5)$$

où λ est en μm .

Le fit des courbes expérimentales est représenté dans les Figures 3.9 et 3.10 par les lignes rouges. La précision des coefficients est de 10^{-4} grâce à la bonne précision de mesure des angles d'accord de phase, qui est de $\pm 0,5^\circ$.

Le Tableau 3.11 montre que les trois indices de réfraction principaux de BNA ont été sollicités entre $0,5$ à $2 \mu\text{m}$ lors de nos mesures. Pour comparaison, les traits bleus, qui correspondent aux gammes spectrales sollicitées lors de la mesure de minimum de déviation sur prisme, s'arrêtent à $1,064 \mu\text{m}$ [35]. Cela permet de justifier une bien meilleure fiabilité de nos équations de Sellmeier, qui sont valides sur tout le domaine de transparence du cristal de BNA.

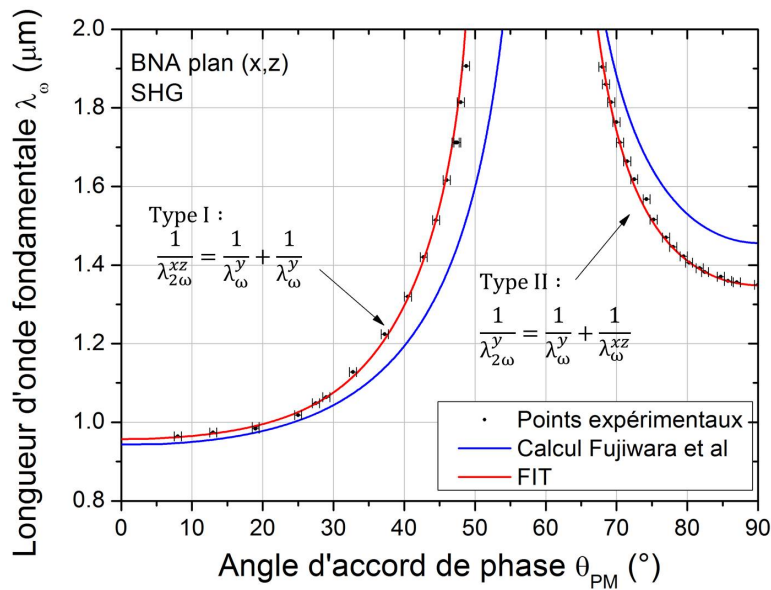


FIGURE 3.9 – Courbes d’accord de phase de SHG de types I et II dans le plan (x,z) du cristal de BNA : mesures directes (points), calculs d’après l’Eq. (3.1) (courbe bleue) et fit des points avec l’Eq. (3.5).

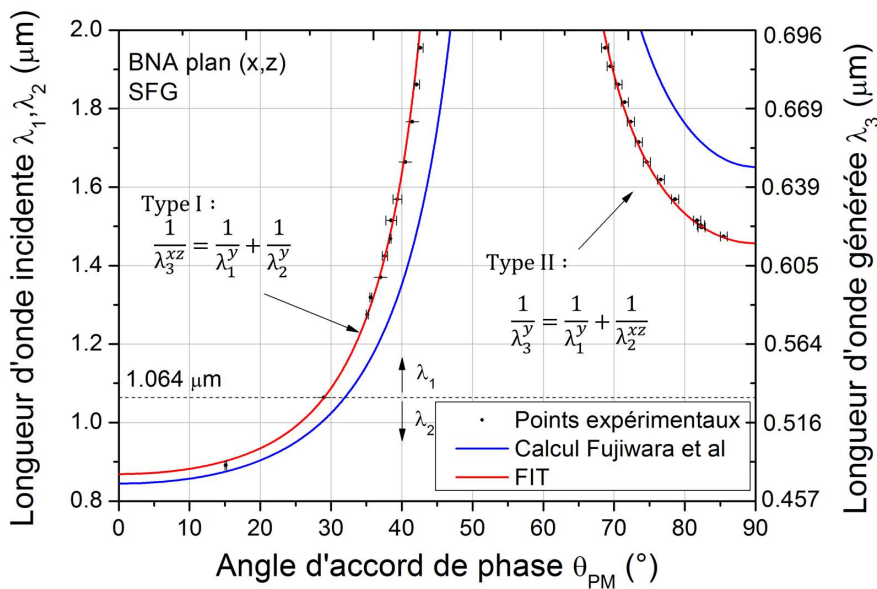


FIGURE 3.10 – Courbes d’accord de phase de SFG de types I et II dans le plan (x,z) du cristal de BNA : mesures directes (points), calculs d’après l’Eq. (3.1) (courbe bleue) et fit des points avec l’Eq. (3.5).

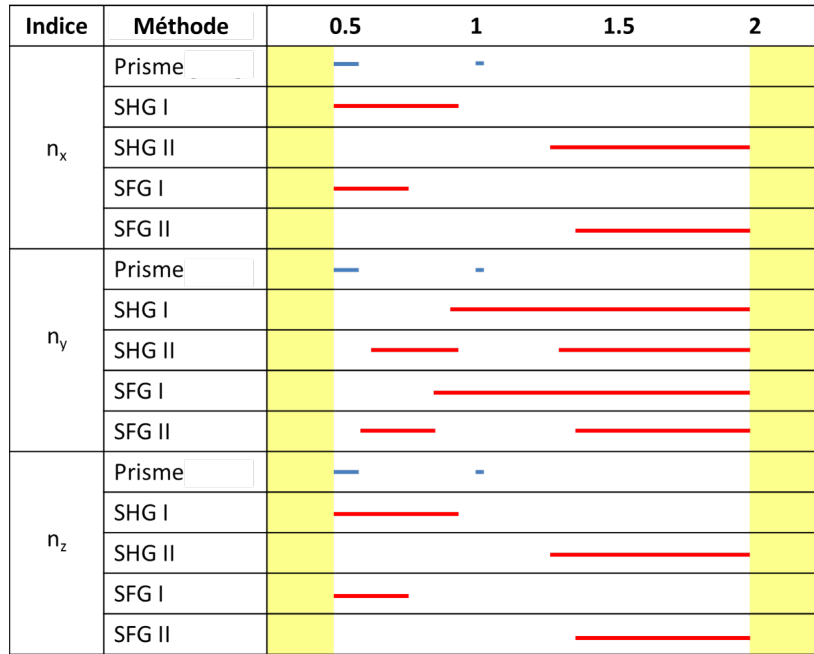


FIGURE 3.11 – Gamme de longueurs d’onde sollicitées pour chaque indice de réfraction principal avec la méthode du cylindre (traits rouges), et avec la méthode du minimum de déviation sur prisme réalisée dans [35] (traits bleus). Les zones jaunes représentent le début des domaines d’absorption du cristal de BNA.

La Figure 3.11 représente les trois équations de Sellmeier de BNA données par l’Eq. (3.5). Elles sont représentées en fonction de la longueur d’onde sur leur domaine de validité, compris entre 0,5 et 2,0 μm , ce qui correspond à tout le domaine de transparence du cristal.

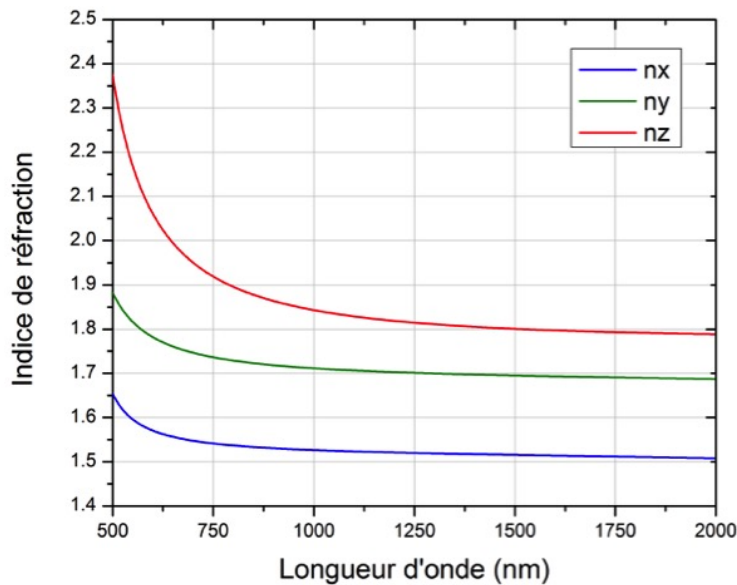


FIGURE 3.12 – Variation des indices de réfractons principaux du cristal de BNA en fonction de la longueur d’onde d’après les Eq. (3.5) établies dans ce travail.

Nos valeurs du domaine de transparence, du seuil de dommage optique et notre référence pour retrouver ces résultats et les nouvelles équations de Sellmeier du cristal de BNA sont résumés dans le Tableau 3.4. En effet, l'ensemble de ces résultats a été publié dans le journal Optics Letters [86].

Nom	Classe optique	Transmission visible et proche-infrarouge (μm)	Seuil de dommage optique	Références
BNA	Biaxe > 0	0,5 μm - 2 μm	0,96 $\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$, à 1064 nm, 5 ns, 10 Hz [86]	[86]

TABLE 3.4 – Propriétés optiques linéaires du cristal de BNA.

3.4 Caractéristiques dans le domaine TeraHertz

Nous avons étudié les 21 cristaux sélectionnés dans le domaine THz en enregistrant leurs spectres de transmission en lumière polarisée, et en déterminant les valeurs de leurs indices principaux de réfraction et coefficients d'absorption. Toutes ces propriétés ont été étudiées en utilisant des lames à faces parallèles polies et orientées perpendiculairement à un axe diélectrique. Leur épaisseur a été mesurée au pied à coulisse, avec une précision de 10 μm .

3.4.1 Les échantillons

Les cristaux isotropes GaP et GaAs ont leurs deux faces parallèles orientées perpendiculairement à un axe diélectrique qui correspond à un axe cristallographique. L'indice de réfraction des cristaux isotropes étant indépendant de la direction, les lames ont été utilisées telles quelles et toutes les mesures ont été réalisées en lumière polarisée rectilignement, et orientée dans une direction quelconque. La lame de GaP est perpendiculaire à la direction cristallographique [110], qui est aussi la direction du repère diélectrique de coordonnées $(\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ)$. Celle de GaAs est perpendiculaire à [111], qui correspond à l'orientation à $(\theta = 45^\circ, \phi = 45^\circ)$ dans le repère diélectrique.

Pour les cristaux uniaxes, les surfaces des lames contiennent l'axe cristallographique c , qui est aussi l'axe diélectrique z . Dans ces conditions, elles sont perpendiculaires à une direction du plan diélectrique principal (x, y) . C'est la meilleure façon d'accéder directement aux valeurs principales des indices de réfraction n_o et n_e ainsi qu'à celles des coefficients d'absorption α_o et α_e , car il n'y a pas de walk-off spatial dans ce plan. Les cristaux uniaxes de ZnO, SiC et CSP ont été livrés directement orientés dans le plan (x,y) selon l'axe indiqué dans le tableau 3.5. Une exception est la lame du cristal AGS qui est orientée perpendiculaire à l'axe de coordonnées $\theta = 47^\circ, \phi = 45^\circ$. Les autres cristaux uniaxes ont été usinés et orientés à l'Institut Néel. Toutes les études ont été faites en lumière polarisée, pour deux états de polarisation rectilignes successifs, qui sont tous les deux dans le plan de la surface des lames, et perpendiculaires entre eux. Afin de connaître

l'orientation des deux axes diélectriques présents dans le plan de la lame, nous avons usiné systématiquement une tranche perpendiculaire à au moins l'un de ces deux axes.

Pour tous les cristaux biaxes, deux lames ont été usinées perpendiculairement à un axe diélectrique, sachant que l'orientation entre cet axe et un axe cristallographique a été préalablement déterminée. L'axe diélectrique doit être différent entre les deux lames afin de pouvoir étudier les valeurs principales des trois indices de réfraction principaux n_x , n_y et n_z , et des trois coefficients d'absorption α_x , α_y et α_z . Deux lames de LBO ont été fournies par Crystal Laser S.A., directement orientées perpendiculairement aux axes diélectriques x et y respectivement. Toutes les autres lames des cristaux biaxes ont été usinées et orientées à l'Institut Néel.

L'orientation et l'épaisseur de tous les échantillons, 29 au total, sont données dans le Tableau 3.5.

Comme les cristaux de BNA présentent des faces naturelles perpendiculaires à un axe diélectrique, l'usinage des lames orientées a reposé sur une étude préalable de leurs morphologies. Cela est particulièrement utile aussi pour les cristaux présentant des fragilités ou incompatibilités avec l'eau ou les solvants.

La face naturelle des cristaux de BNA étant perpendiculaire à l'axe cristallographique b qui est aussi l'axe diélectrique y, nous avons pu vérifier son orientation par diffraction des rayons X en utilisant la méthode de Laue. Le cliché enregistré et son indexation, qui sont donnés par les Figures 3.13 (a) et (b) respectivement, confirment l'orientation des faces naturelles de BNA.

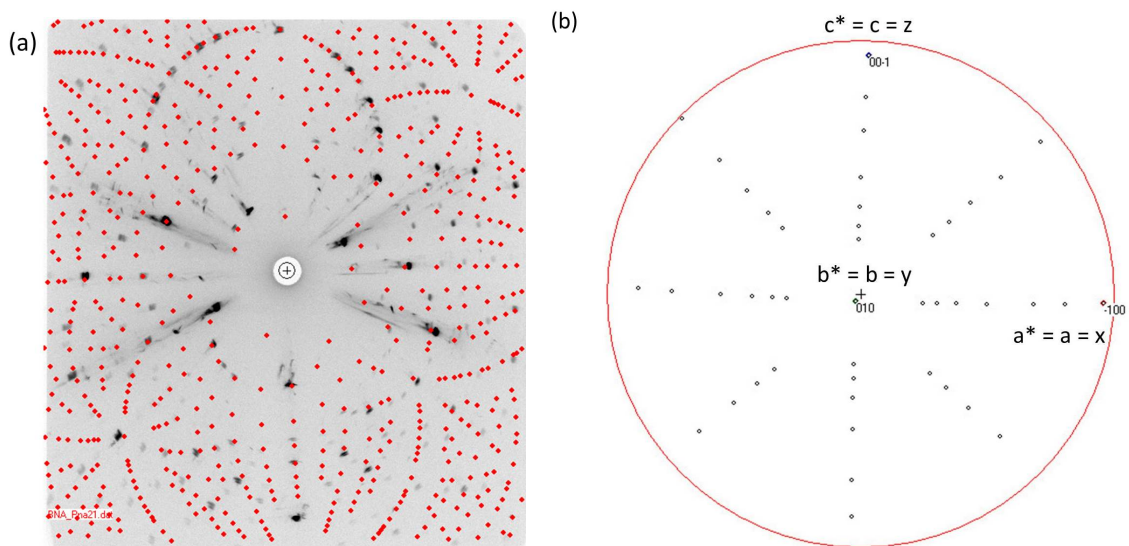


FIGURE 3.13 – Cliché de diffraction (a) et son indexation (b) permettant de déduire l'orientation cristallographique des faces naturelles du cristal de BNA. Le faisceau de RX est en incidence normale sur la face naturelle de l'échantillon, et l'arête des dômes présents dans la direction (100) est verticale.

L'indexation du cliché représenté dans la Figure 3.13 (b) permet aussi de repérer l'orientation des axes cristallographiques a et c qui sont perpendiculaires entre eux pour BNA et qui correspondent aux axes diélectriques x et z respectivement. Dans ces conditions, des tranches des lames peuvent être usinées perpendiculairement à ces axes.

L'usinage des faces et leur polissage ont été effectués manuellement, en usant d'astuces pour le collage et le montage de l'échantillon de BNA sans qu'il ne touche la colle utilisée, étant donnée une très grande fragilité des échantillons qui a rendu le serrage ou le clamage impossible. Pour ces opérations, l'échantillon est maintenu sur un support. Les surfaces sont générées par abrasion sur des papiers SiC de granulométries décroissantes jusqu'au poli optique au diamant. Nous avons utilisé cette technique pour usiner une première lame avec ses faces parallèles perpendiculaires à l'axe diélectrique x. Son épaisseur est donnée dans le Tableau 3.5.

Pour l'usinage des autres cristaux qui n'ont pas de faces naturelles, une technique semi-automatique a été considérée à partir de la démarche suivante :

1. Dans une première étape, les échantillons sont orientés avec la méthode de Laue avec une précision de $0,5^\circ$ (voir Figure 3.13). Il est alors possible d'orienter l'échantillon dans une direction précise du repère cristallographique sur un support référencé qui est transféré vers le système d'usinage.
2. L'usinage de l'échantillon est alors effectué à l'aide d'une scie à fil diamantée. Le support est équipé d'un miroir de réalignement par autocollimation qui permet une découpe de deux faces parallèles orientées de la lame, avec une précision inférieure à $0,5^\circ$.
3. L'étape suivante consiste à affiner la précision d'orientation d'une première face par rapport aux plans cristallins considérés, par un rodage dirigé avec un diffractomètre RX monochromatique qui effectue des mesures en θ - 2θ découplées. Un support mécanique permet ensuite la correction de l'orientation de la face avec une précision inférieure à $0,01^\circ$. Cette face devient une référence pour l'étape suivante.
4. La lame est alors montée sur une tête de polissage dont la photo est présentée en Figure 3.14. Cette tête est réglée à l'aide d'un autocollimateur, qui permet d'orienter la deuxième face parallèle à celle de référence avec une précision de l'ordre de $0,005^\circ$. L'usinage de la lame ainsi constituée est alors effectué sur un plateau en fonte additionné d'alumine $9 \mu\text{m}$ en solution aqueuse dont la photo est montrée sur la Figure 3.14. Une ou plusieurs étapes de polissage sont ensuite nécessaires. L'objectif est d'amoinrir la rugosité des deux surfaces parallèles générées en conservant la précision de leur orientation afin d'obtenir un poli à la qualité optique, soit une rugosité inférieure à 50nm RMS.
5. Une fois la lame à faces parallèles terminée, il est nécessaire référencer un ou deux bords, afin de connaître l'orientation des axes contenus dans le plan de la lame. Cette étape est effectuée via le processus de découpe orientée décrit en étape 1, qui s'appuie sur la méthode de Laue, avec une précision de l'ordre de $0,5^\circ$.

Autant que possible, toutes les lames ont une surface de $5 \times 5 \text{ mm}^2$ minimum, en fonction de la taille des échantillons utilisés. Leur orientation et leur épaisseur sont données dans le Tableau 3.5.



FIGURE 3.14 – Photo de la tête (gauche) et du plateau (droite) de polissage utilisés pour l’usinage des lames orientées.

Nom	Orientation	Épaisseur
BGSe	x	0,37 mm
	y	0,39 mm
YCOB	x	0,84 mm
	y	0,57 mm
BNA	x	3,00 mm
	y	0,86 mm
	y	1,80 mm
KTP	x	1,61 mm
	y	1,61 mm
KTA	x	0,47 mm
	y	0,62 mm
RTP	x	0,80 mm
	y	0,60 mm
LBO	x	2,00 mm
	y	2,00 mm

Nom	Orientation	Épaisseur
CSP	$\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$	1,03 mm
AGS	$\theta = 47^\circ, \phi = 45^\circ$	0,62 mm
ADP	$\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$	0,98 mm
KDP	$\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$	1,26 mm
DKDP	$\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$	0,84 mm
GeO ₂	x	0,48 mm
CdSe	x	0,71 mm
ZnO	y	0,50 mm
LGT	x	1,90 mm
BBO	y	0,95 mm
CLN	x	0,77 mm
SiC	x	0,31 mm
GaP	$\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$	3,78 mm
GaAs	$\theta = 45^\circ, \phi = 45^\circ$	0,08 mm

TABLE 3.5 – Caractéristiques géométriques des lames étudiées : orientation de la normale aux deux faces optiques et épaisseur.

3.4.2 Caractéristiques des montages de spectroscopie

Pour étudier les échantillons, nous avons bénéficié de deux collaborations.

La première, avec Jean-François Roux, Emilie Herault et Jean-Louis Coutaz de l'IMEP-LAHC du Bourget du Lac, concernant les spectres de transmission en lumière polarisée, et aussi les valeurs principales des indices de réfraction et des coefficients d'absorption de 0,1 THz à 2 THz par Time-Domain Spectroscopie (TDS).

La deuxième, avec Florence Lévy-Bertrand de l'Institut Néel, avec qui nous avons effectué des mesures de spectres de transmission en lumière polarisée sur une gamme complémentaire de la précédente, de 1,5 à 20,0 THz, à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR).

Le principe de fonctionnement de ces deux techniques de spectroscopie a été décrit dans le Chapitre 2. Nous présentons dans cette section uniquement les spécificités des appareils que nous avons utilisés.

3.4.2.1 FTIR : 2 - 20 THz

Nous avons utilisé un spectromètre FTIR commercialisé par Bruker Vertex-80. Le schéma de fonctionnement d'un tel spectromètre a été rappelé par la Figure 2.2. La source utilisée est une lampe de mercure, et le détecteur est un bolomètre HDL-5 de chez Infrared Laboratories S.A. L'échantillon est enfermé dans un compartiment étanche et mis sous vide afin de réduire l'absorption de l'atmosphère et de l'eau pendant les mesures. La pression du vide est maintenue à une valeur inférieure à 1hPa grâce à un système de pompage. L'échantillon est bloqué sur un support et accolé à un diaphragme qui est présent pour toutes les mesures même celles de référence sans échantillon. La taille du diaphragme utilisé sera précisée dans la présentation des résultats. Un polariseur en polyéthylène tournant inséré devant le diaphragme permet de contrôler l'orientation de la polarisation. Sa rotation est motorisée.

3.4.2.2 TDS : 0,1 - 2,0 THz

Pour les mesures de TDS, nous avons utilisé deux montages expérimentaux dont les photos sont données dans la Figure 3.15. Ils fonctionnent avec le même laser femtoseconde Titane Saphire de durée d'impulsion 100 fs, et de taux de répétition 82 MHz. Sa propagation dans les deux montages est matérialisée par des traits rouges sur la Figure 3.15. Les électrodes des antennes émettrices et réceptrices utilisées sont commercialisées par Teravil et sont en LGT-GaAs (LGT pour Low Growth Temperature). La propagation de l'impulsion THz est représentée par des traits bleus.

Dans le montage 1, dont la photo apparaît dans la Figure 3.15 (a), l'impulsion THz se propage dans une enceinte sous un léger flux d'azote. Cela permet de réduire l'humidité et l'effet des raies d'absorption de l'eau sur les spectres qui seront enregistrés. Le faisceau THz est focalisé avec un jeu de deux miroirs paraboliques. Un logiciel maison permet de déplacer la ligne à retard sur une distance capable d'échantillonner toute l'impulsion THz.

La photo du montage 2 est donnée par la Figure 3.15(b). Elle montre en arrière plan la ligne à retard qui est montée sur une translation motorisée de manière à lui permettre d'effectuer des allers-retours périodiques et réaliser un échantillonnage en temps réel. Aucune enceinte est utilisée dans ce montage. La focalisation et la propagation du faisceau THz sont assurées par des lentilles en téflon.

Dans les deux montages (1 et 2), l'échantillon est inséré derrière un diaphragme dont le diamètre sera donné avec les résultats dans la section suivante. Il est fixé sur une plaque positionnée au waist du faisceau focalisé.

L'orientation de l'échantillon sur la plaque est très importante, ce qui permet d'orienter la polarisation de l'onde THz exactement dans la direction visée. Nous estimons la précision de l'angle entre la polarisation de l'impulsion THz et l'orientation des échantillons meilleure que le degré.

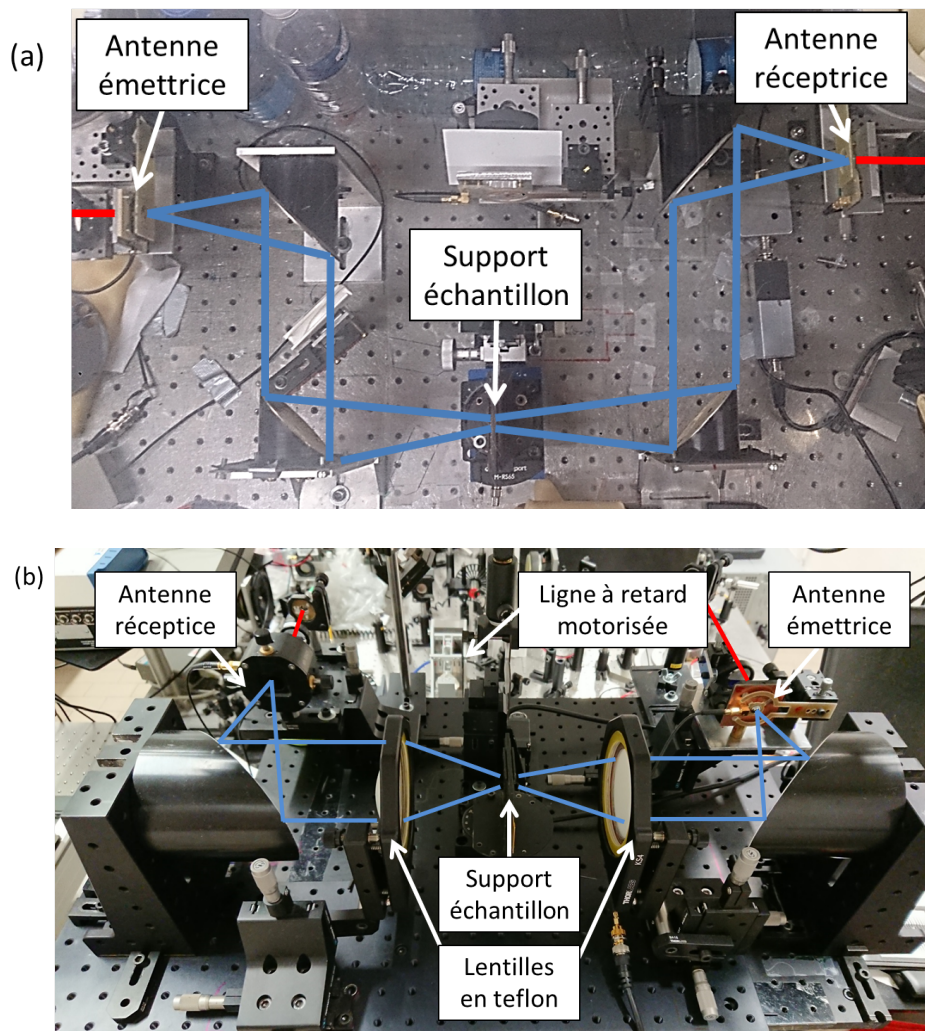


FIGURE 3.15 – Photo des montages 1 (a) et 2 (b) utilisés pour les mesures de TDS sur les 21 cristaux du Tableau 3.1. Les traits rouges matérialisent le trajet de l'impulsion femtoseconde et les traits bleus le trajet de l'impulsion THz.

3.4.3 Résultats

3.4.3.1 Préambule sur le traitement des données utilisé

Les données obtenues par spectroscopie FTIR seront présentées telles quelles.

Pour celles obtenues par spectroscopie TDS, un traitement des données différent a été nécessaire selon le montage utilisé. Avec le montage 1, utilisé pour les cristaux de LBO, LGT, CSP, AGS ainsi que l'échantillon x de BNA, certaines raies d'absorption de l'eau sont toujours observables dans les spectres de transmissions enregistrés, malgré l'ajout d'azote.

Pour les cristaux de KTP, RTP, BGSe, ADP, KDP, DKDP, BBO, KTA, YCOB, CLN, SiC, GeO₂, CdSe, ZnO, GaP, GaAs, et la lame y de BNA, nous avons utilisé le montage 2. Dans ce cas, le spectre de l'impulsion de référence donné par la Figure 3.16 permet de constater que l'absence de compartiment d'isolation fait apparaître de nombreuses raies d'absorption de l'eau. La Figure 3.16 fait également apparaître une forte absorption autour de 2 THz, qui est due aux lentilles en téflon utilisées sur ce montage. Cependant, en limitant l'analyse de nos résultats sur la gamme 0,1 - 2,0 THz, il n'a pas été nécessaire de prendre en compte l'effet des lentilles.

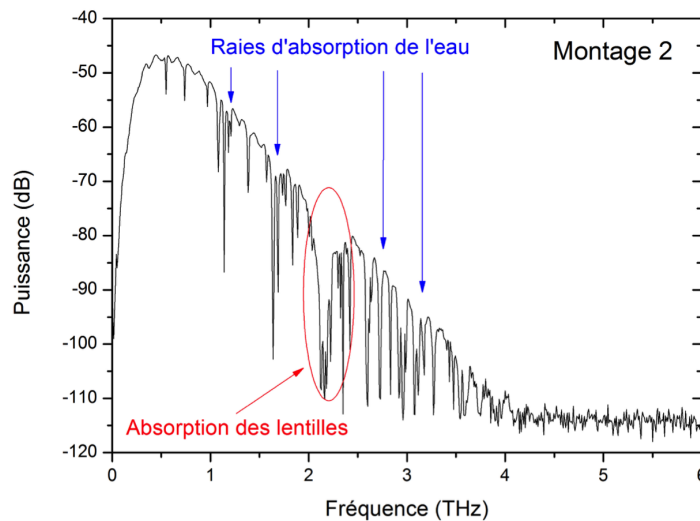


FIGURE 3.16 – Puissance de l'impulsion de référence obtenue avec le montage 2. Les raies fines d'absorption observables sont dues à l'eau présente dans l'atmosphère, et la raie large autour de 2 THz correspond à l'absorption des lentilles en téflon utilisées pour la focalisation.

Notons qu'il est possible que la ligne à retard ne revienne pas toujours exactement à sa position initiale après des allers-retours, ce qui peut engendrer un décalage temporel des mesures. Afin de réduire les possibles erreurs, nous avons effectué, pour chaque cristal étudié avec le montage 2, une série de 20 mesures référence/échantillon et un traitement simultané de ces 20 mesures avec un logiciel maison.

Une étape de traitement des données pour l'impulsion THz a parfois été nécessaire afin d'obtenir des résultats de qualité. Pour tous les échantillons, une partie du faisceau THz est réfléchi aux faces d'entrée et de sortie. La réflexion sur la face de sortie se propage alors dans le sens inverse, et est de nouveau réfléchi sur la face d'entrée de l'échantillon, et ainsi de suite. Cela produit un "écho" qui peut se propager jusqu'à l'antenne réceptrice, et être détecté lors de l'échantillonnage. Cet effet est mis en avant dans la Figure 3.17, qui présente une impulsion pour laquelle l'écho est observé (Figure 3.17 (a)) et est pris en compte lors de l'échantillonnage. L'effet de l'écho sur le spectre de transmission se traduit par des franges d'interférences dues à un effet de type Fabry-Perot à l'intérieur de l'échantillon (Figure 3.17 (c)), qui se traduit par la fonction FP de l'Eq. (2.2).

Afin de réduire l'effet de cet écho, nous supprimons une partie de l'information de l'impulsion en effectuant un fenêtrage temporel. Cela consiste à donner la valeur 0 au signal au-delà d'une certaine valeur temporelle, afin de supprimer tout rebond. Le résultat de ce traitement est montré sur la Figure 3.17 (b). Ce « fenêtrage » temporel, aussi appelé lissage, a pour effet de réduire l'effet Fabry-Perot et ainsi de lisser le spectre de transmission donné par la Figure 3.17 (d).

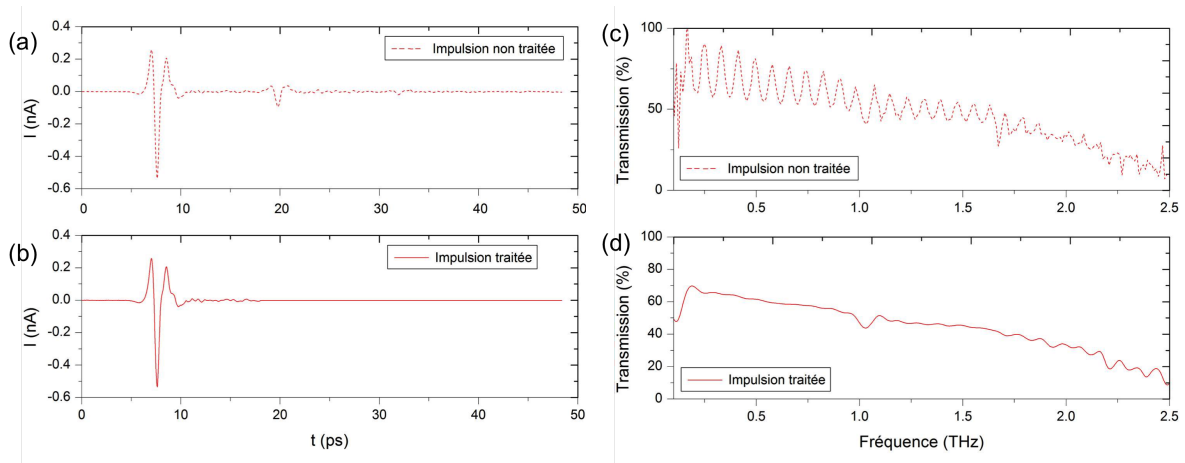


FIGURE 3.17 – Impulsion avant (a) et après (b) fenêtrage temporel, et spectre de transmission correspondant (c) et (d) respectivement.

Pour certaines lames très fines, comme celle de GaAs par exemple, le fenêtrage temporel n'a pas pu être réalisé, car l'impulsion correspondant au rebond est trop proche temporellement de l'impulsion transmise. L'effet Farby-Perot résiduel n'a donc pas pu être supprimé du spectre de transmission. Cela explique les oscillations observées sur certains spectres des figures suivantes.

3.4.3.2 Spectres de transmission

Si une lame a été utilisée pour les cristaux isotropes uniaxes, il en a fallu deux orientés différemment pour les cristaux biaxes. Par conséquent, avec les deux techniques de spectroscopie FTIR et TDS utilisées entre 0,1 et 20,0 THz, les spectres de transmission en lumière polarisée ont été enregistrés à travers les 29 lames présentées dans le Tableau 3.5.

Ils sont représentés de la Figure 3.19 à la Figure 3.46, ainsi que sur la Figure 3.18, ce qui permet de comprendre les informations qui y sont répertoriées. Chaque figure donne à gauche le spectre de transmission THz enregistré en lumière polarisée entre 20,0 et 1,5 THz avec la spectroscopie FTIR. Il y a à droite le spectre de transmission enregistré en lumière polarisée entre 2,0 et 0,1 THz en spectroscopie TDS. Chaque spectre est représenté en fonction de la longueur d'onde (échelle des abscisses inférieures) et de la fréquence (échelle des abscisses supérieures).

Les caractéristiques de l'échantillon étudié sont rappelées dans la légende du spectre FTIR. Il s'agit du nom du cristal (BNA), de l'orientation de la lame (y), de son épaisseur ($L = 0,86$ mm) et du diamètre du diaphragme utilisé ($\phi = 2$ mm). Viennent en-dessous les orientations de la polarisation selon l'axe diélectrique considéré (x et z).

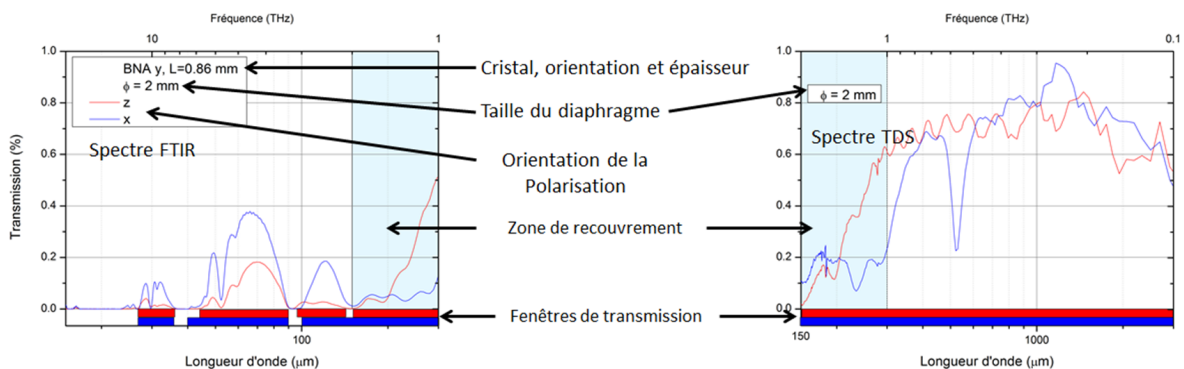


FIGURE 3.18 – Grille de lecture des spectres de transmission en lumière polarisée enregistrés à travers une lame d'épaisseur L avec deux faces perpendiculaires à un axe diélectrique.

Les deux techniques de spectroscopie étant complémentaires, une zone de recouvrement bleue apparaît sur les deux spectres. Elle est localisée entre 1 et 2 THz en général.

Les bandes rouge, verte, bleue et blanche localisées en bas des spectres FTIR et TDS récapitulent les gammes de longueurs d'onde pour lesquelles la transmission du cristal n'est pas nulle, et ce en fonction de l'état de polarisation : la bande rouge fait référence à une polarisation orientée selon z, la verte selon y, la bleue selon x et les bandes blanches représentent les bandes d'absorptions du cristal.

Les informations de la Figure 3.18 que nous venons de commenter pour les spectres des 29 lames du Tableau 3.5 sont représentées Figures 3.19 à 3.46.

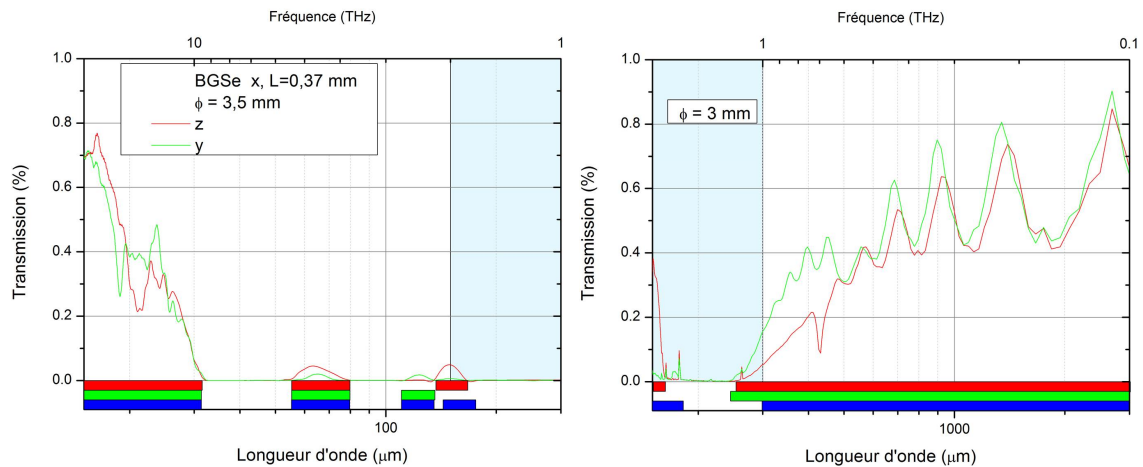


FIGURE 3.19 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal BGSe dans la direction de propagation x.

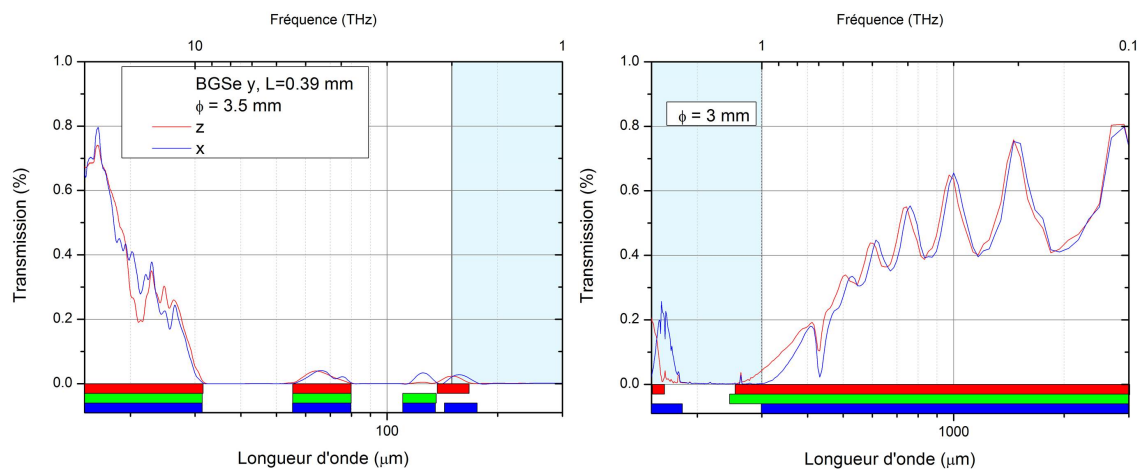


FIGURE 3.20 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal BGSe dans la direction de propagation y.

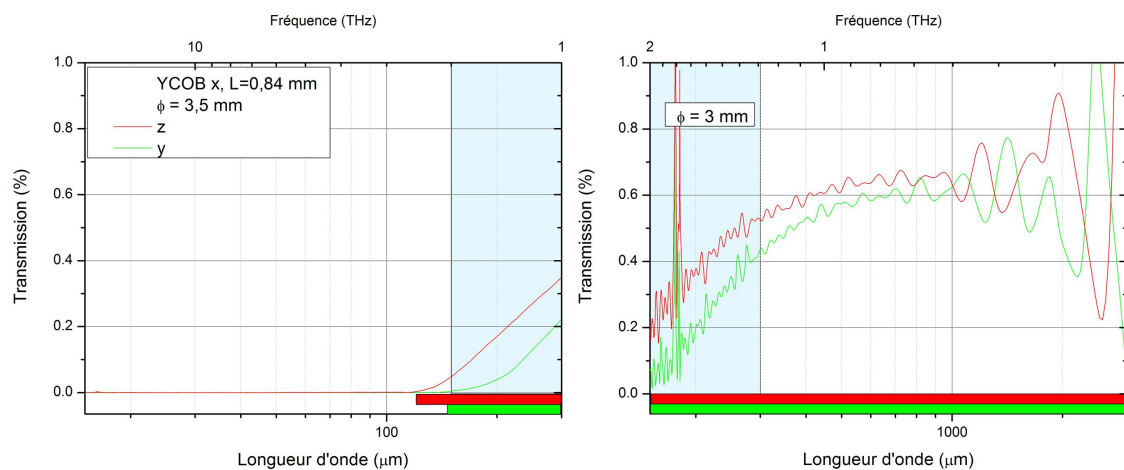


FIGURE 3.21 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal YCOB dans la direction de propagation x.

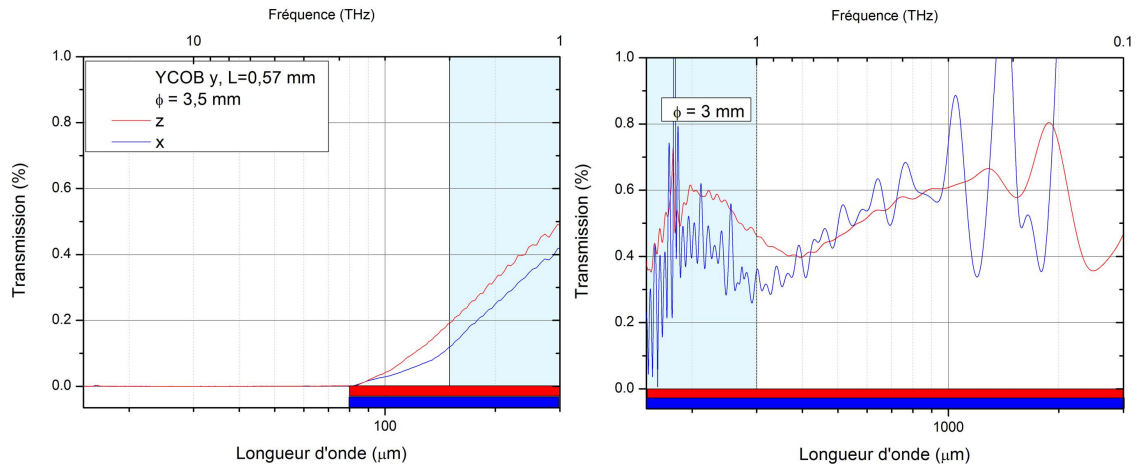


FIGURE 3.22 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal YCOB dans la direction de propagation y.

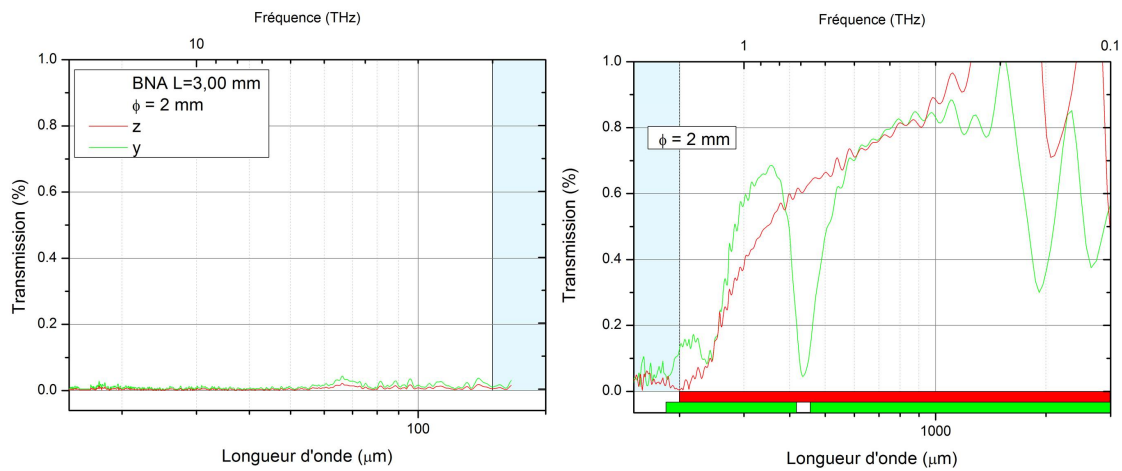


FIGURE 3.23 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal BNA dans la direction de propagation x.

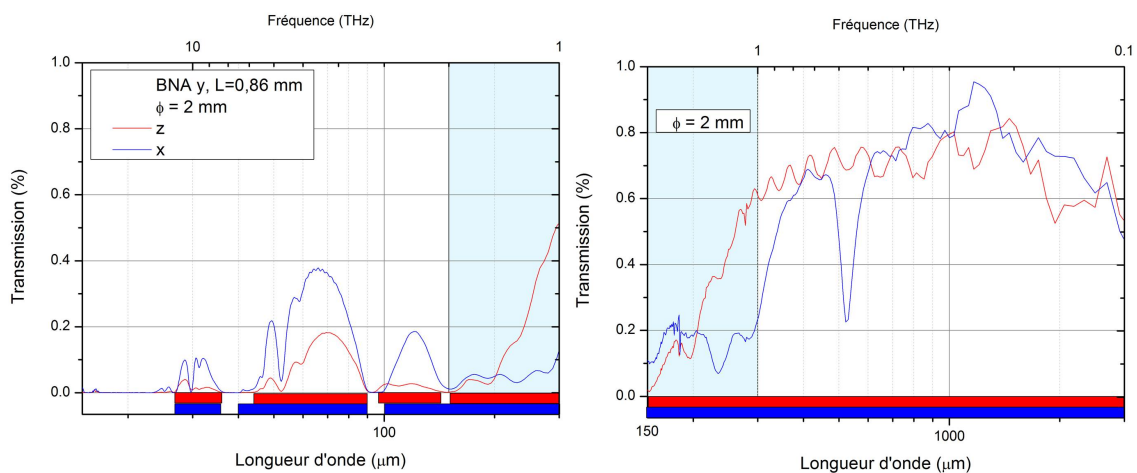


FIGURE 3.24 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal BNA dans la direction de propagation y.

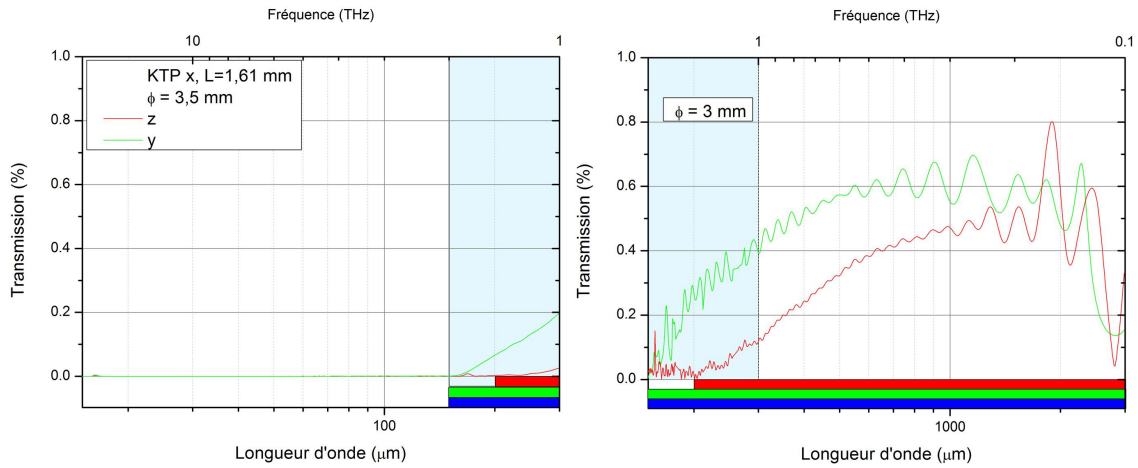


FIGURE 3.25 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal KTP dans la direction de propagation x.

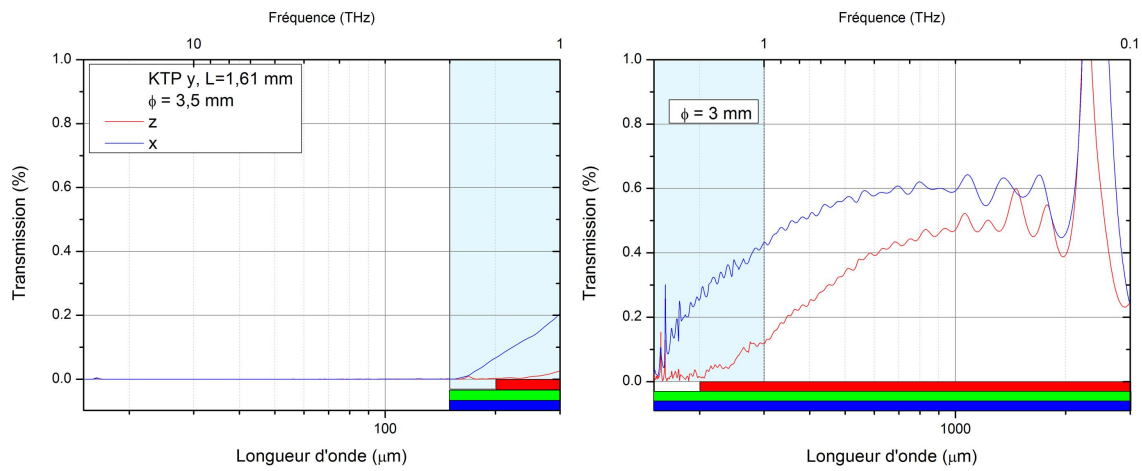


FIGURE 3.26 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal KTP dans la direction de propagation y.

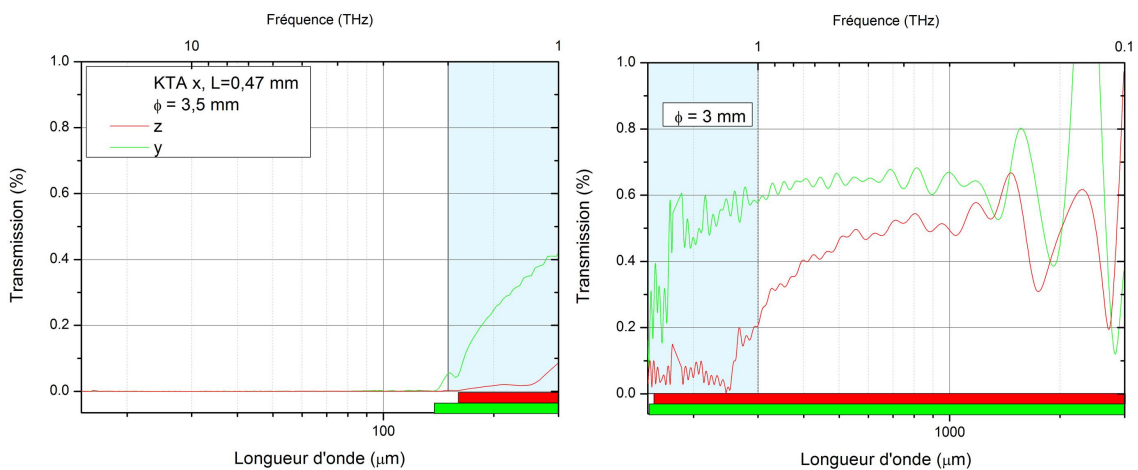


FIGURE 3.27 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal KTA dans la direction de propagation x.

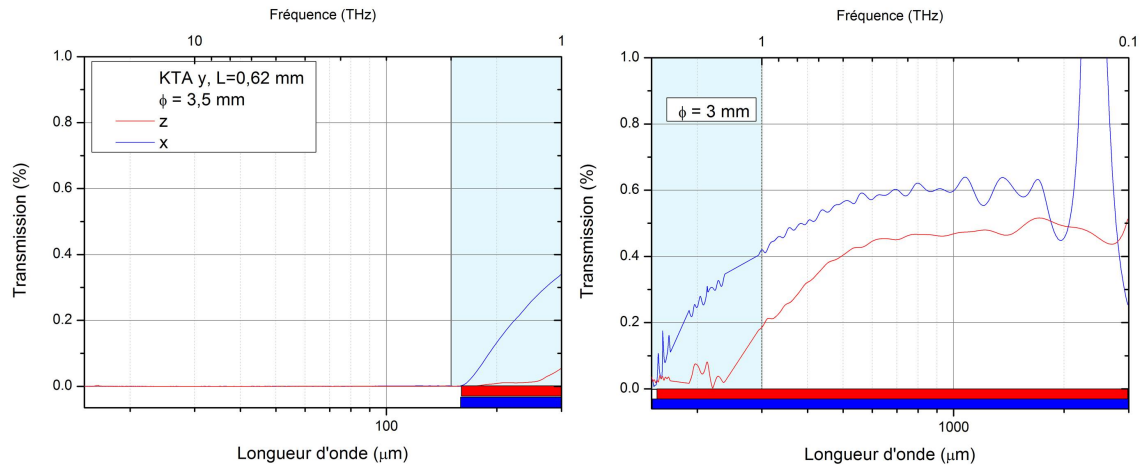


FIGURE 3.28 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal KTA dans la direction de propagation y.

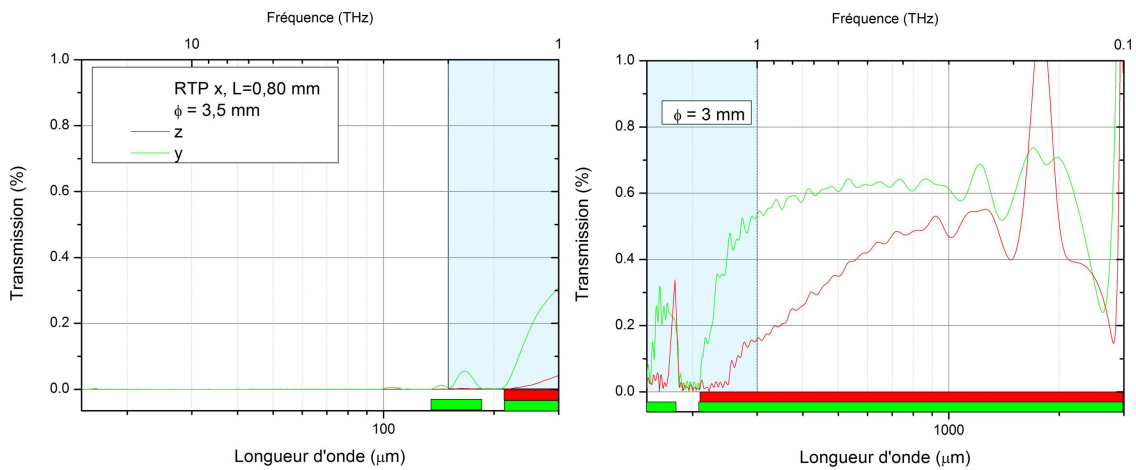


FIGURE 3.29 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal RTP dans la direction de propagation x.

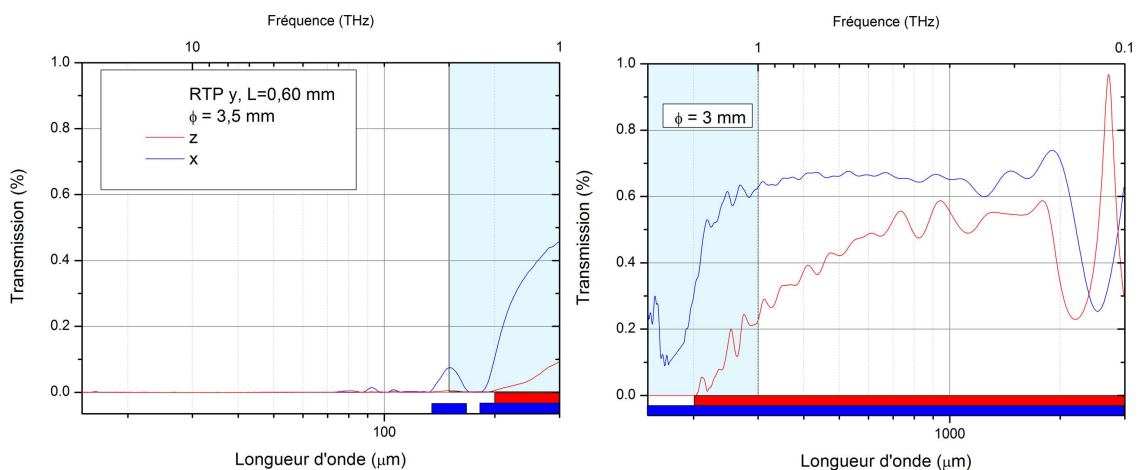


FIGURE 3.30 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal RTP dans la direction de propagation y.

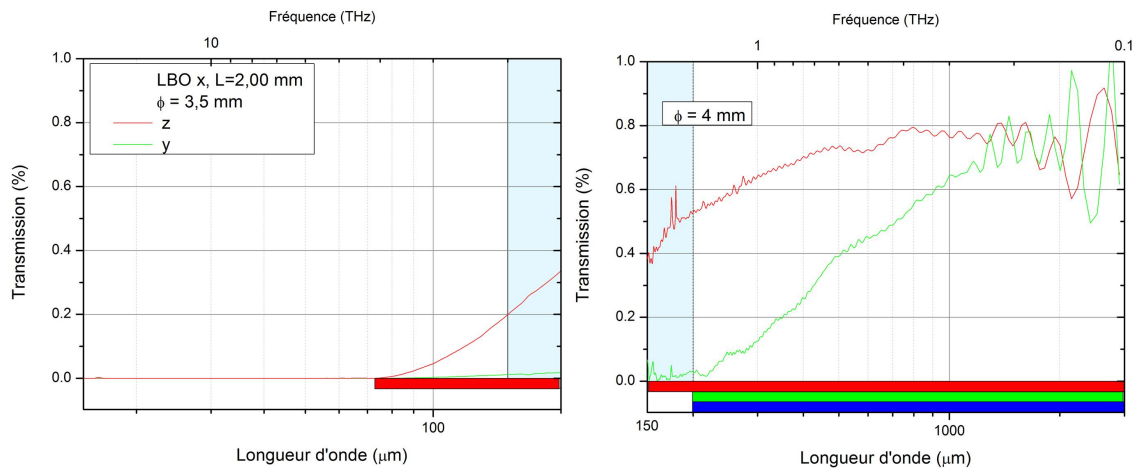


FIGURE 3.31 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal LBO dans la direction de propagation x.

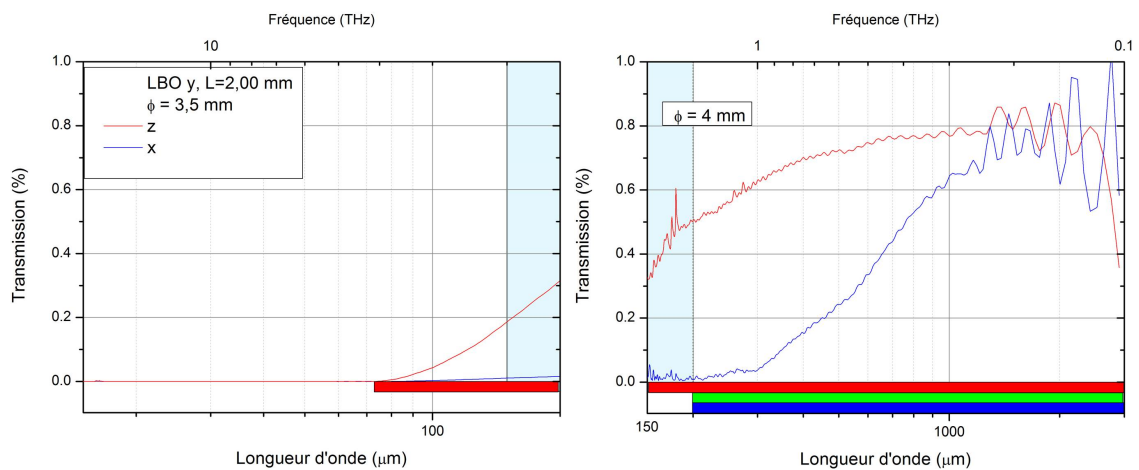


FIGURE 3.32 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal LBO dans la direction de propagation y.

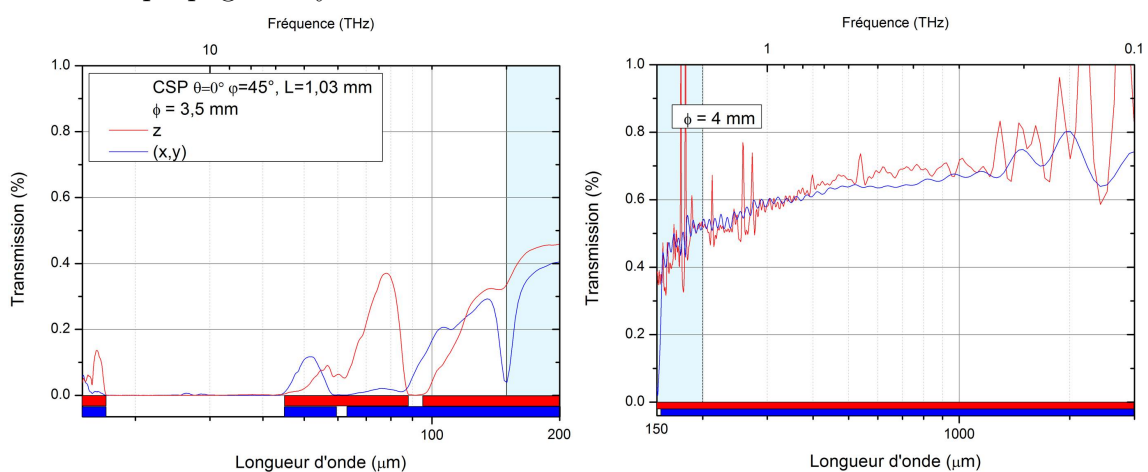


FIGURE 3.33 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal CSP dans la direction de propagation $\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

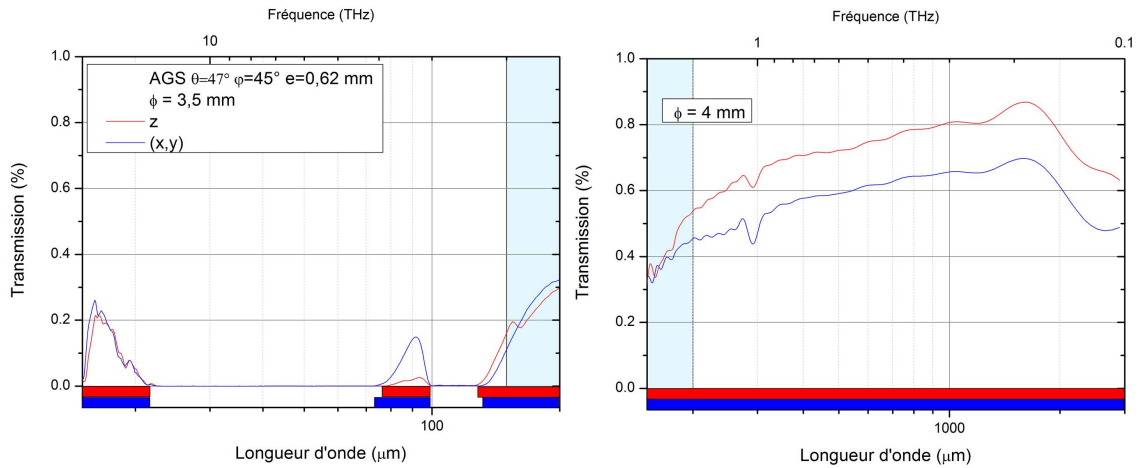


FIGURE 3.34 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal AGS dans la direction de propagation $\theta = 47^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

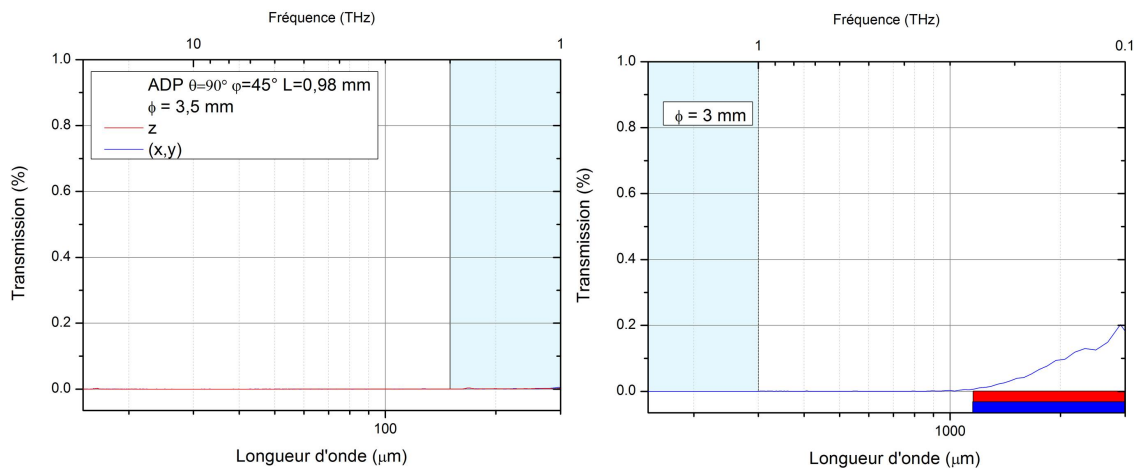


FIGURE 3.35 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal ADP dans la direction de propagation $\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

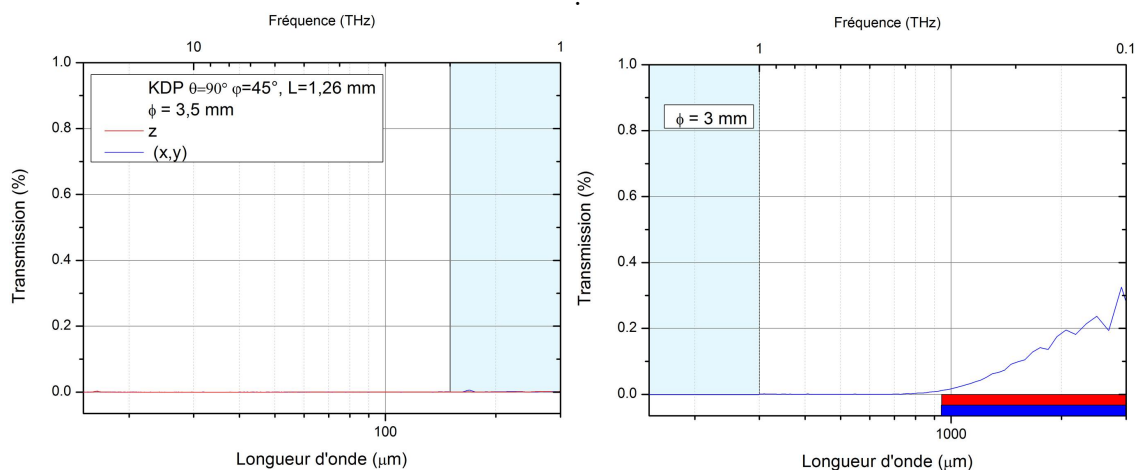


FIGURE 3.36 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal KDP dans la direction de propagation $\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

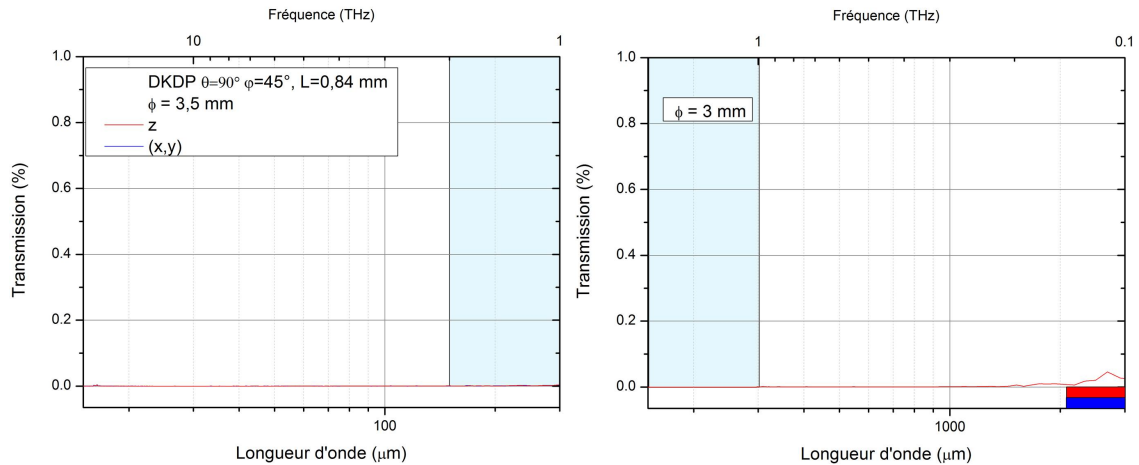


FIGURE 3.37 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal DKDP dans la direction de propagation $\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

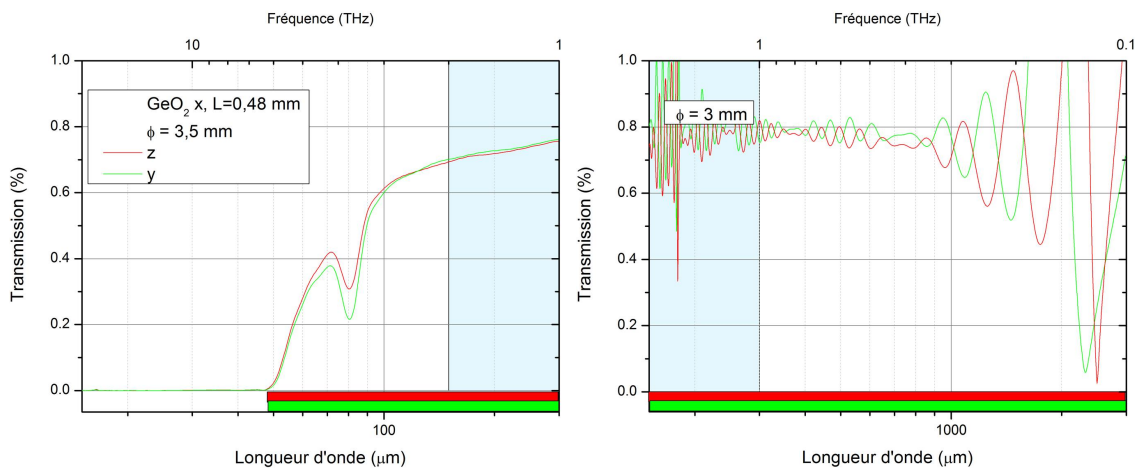


FIGURE 3.38 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal GeO_2 dans la direction de propagation x.

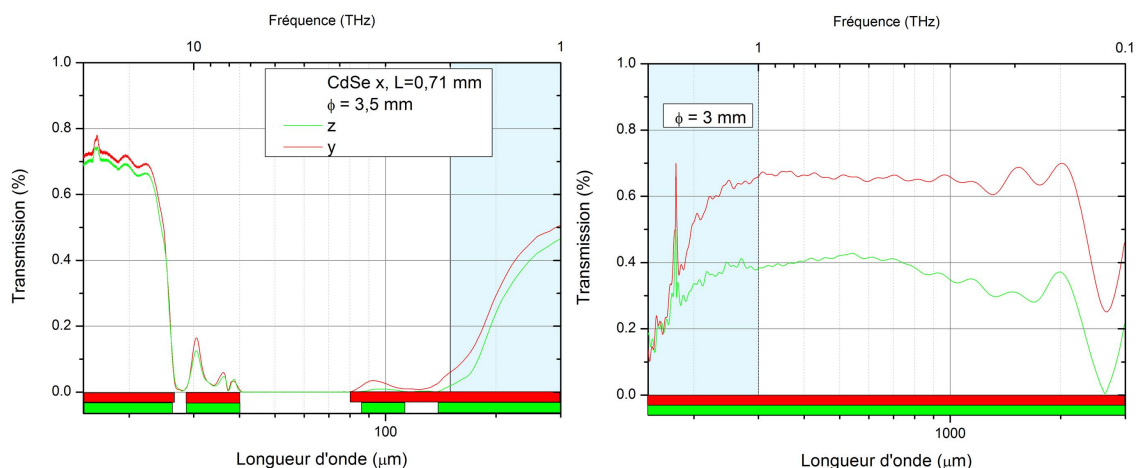


FIGURE 3.39 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal CdSe dans la direction de propagation x.

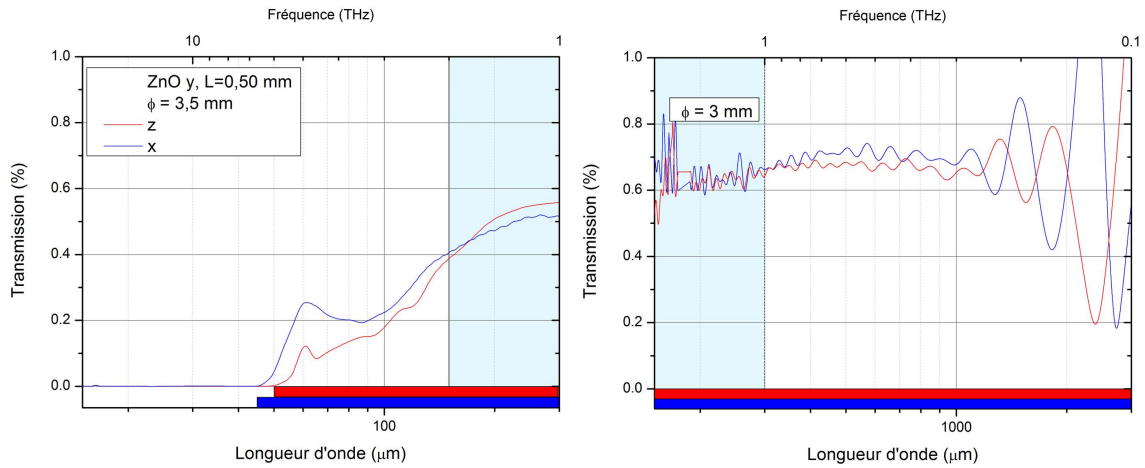


FIGURE 3.40 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal ZnO dans la direction de propagation y.

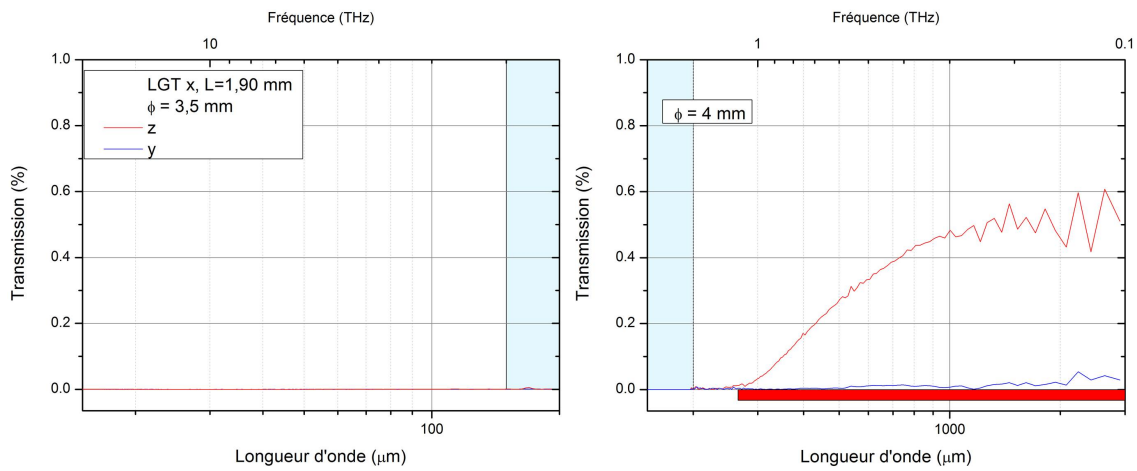


FIGURE 3.41 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal LGT dans la direction de propagation x.

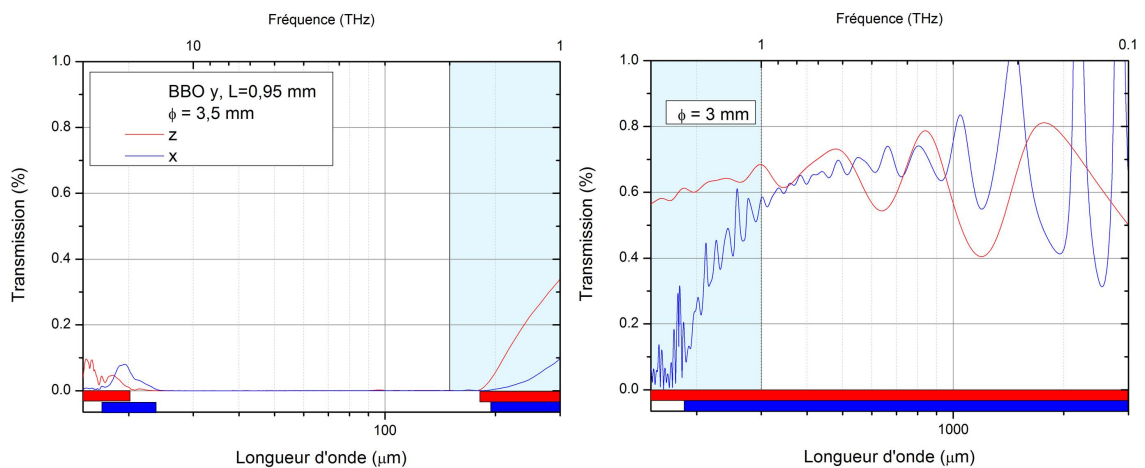


FIGURE 3.42 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal BBO dans la direction de propagation y.

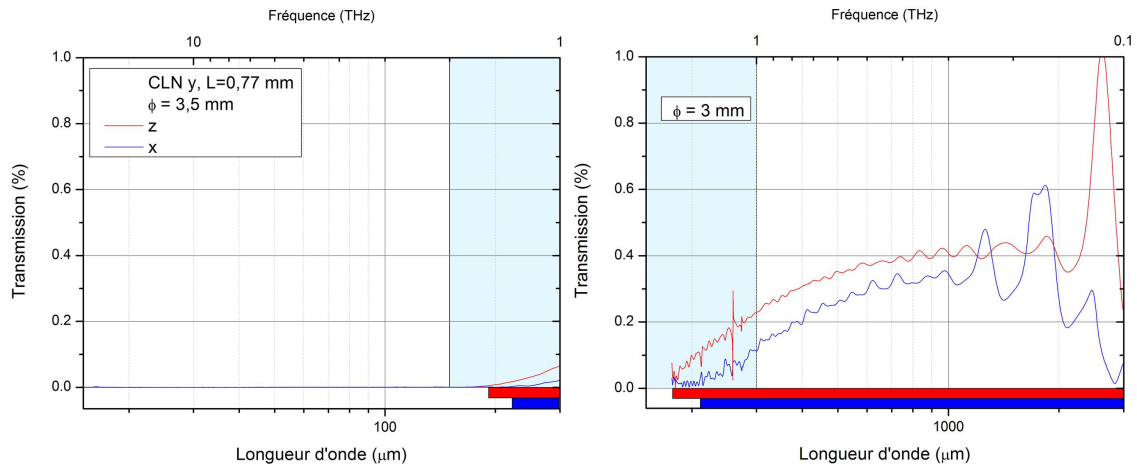


FIGURE 3.43 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal CLN dans la direction de propagation x.

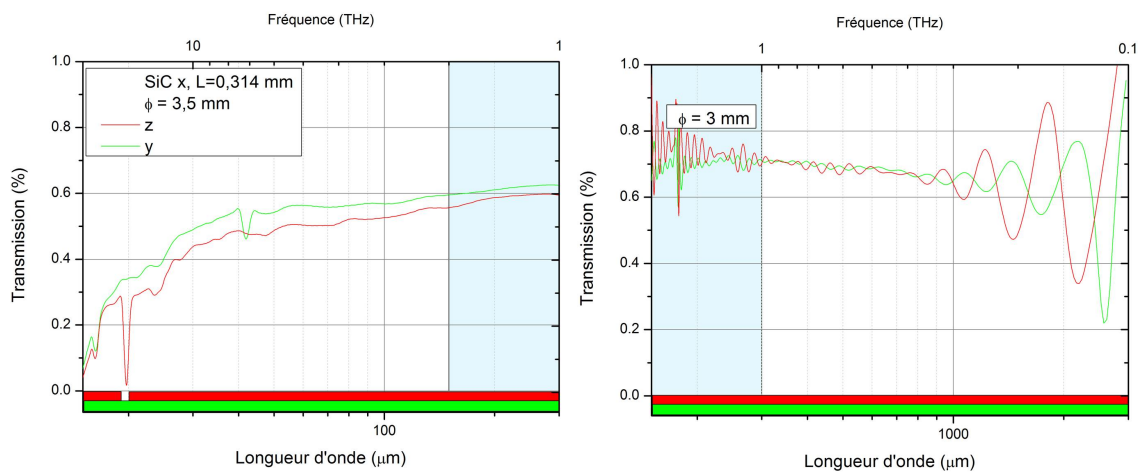


FIGURE 3.44 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal SiC dans la direction de propagation x.

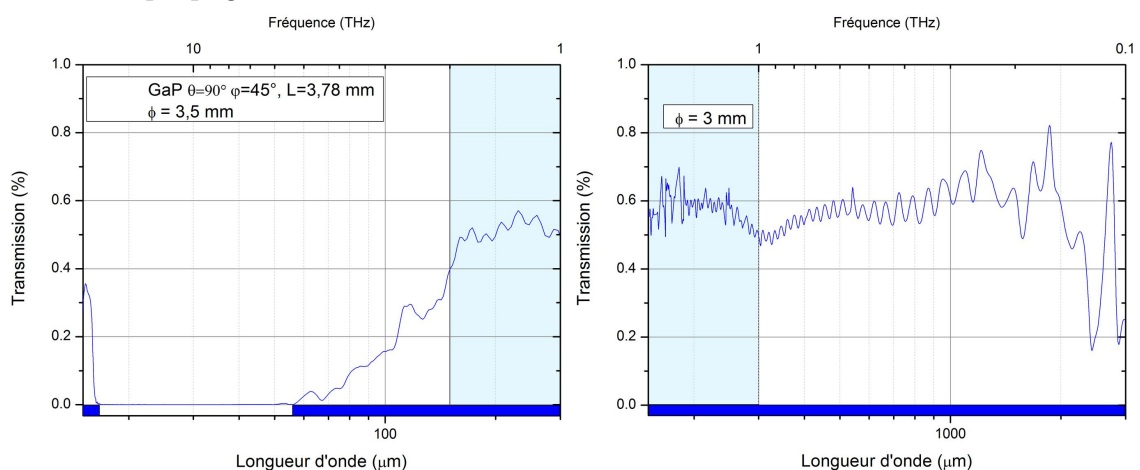


FIGURE 3.45 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal GaP dans la direction de propagation $\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

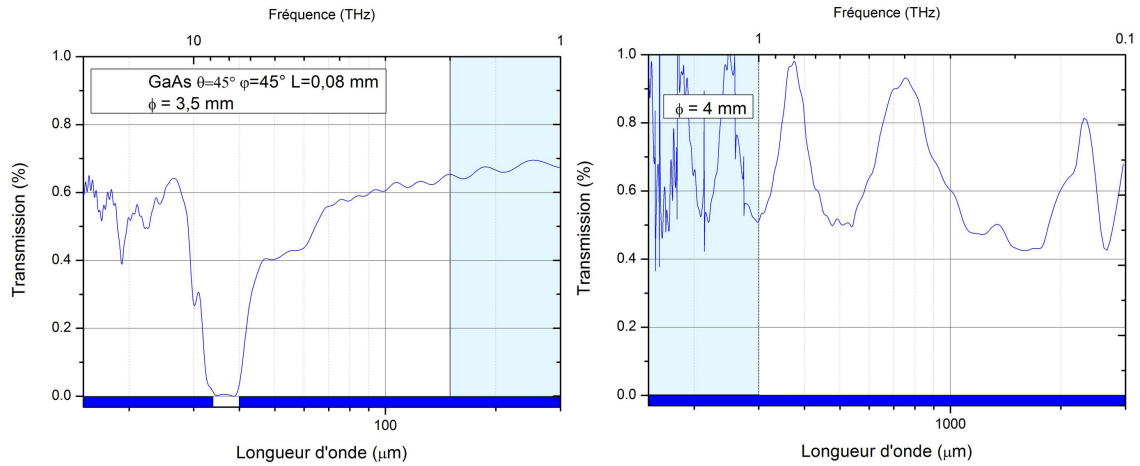


FIGURE 3.46 – Spectres de transmission THz en lumière polarisée du cristal GaAs dans la direction de propagation $\theta = 45^\circ$, $\phi = 45^\circ$.

Les Figures 3.47 et 3.48 résument les résultats obtenus avec les spectres de transmission enregistrés. Pour chaque cristal, la gamme de transmission est donnée en fonction de la longueur d'onde et de la fréquence à partir des échelles des abscisses inférieure et supérieure respectivement. La fenêtre de transmission correspondant à la gamme visible et proche-infrarouge est représentée en violet sur la Figure 3.47, pour une lumière incidente non polarisée. Elle permet de rendre compte d'un choix important de longueurs d'onde proches λ_2 et λ_3 qui peuvent être utilisées pour générer une onde THz monochromatique ou polychromatique par DFG.

Les fenêtres de transparence dans le domaine THz sont données dans la Figure 3.48. Dans cette gamme, nous avons représenté les résultats de transmission des Figures 3.19 à 3.43 en fonction de la polarisation.

La Figure 3.48 permet de visualiser les cristaux les plus transparents dans le domaine THz car ils sont classés depuis celui de spectre de transmission le plus étroit vers celui le plus large. La transmission du cristal de SiC s'étend sur la totalité de la gamme THz. Cette couverture est presque totale pour les cristaux de GaAs, ZnO, GeO_2 , GaP et CSP. A l'inverse, la fenêtre de transparence des cristaux de DKDP, ADP et KDP est très limitée dans le domaine THz.

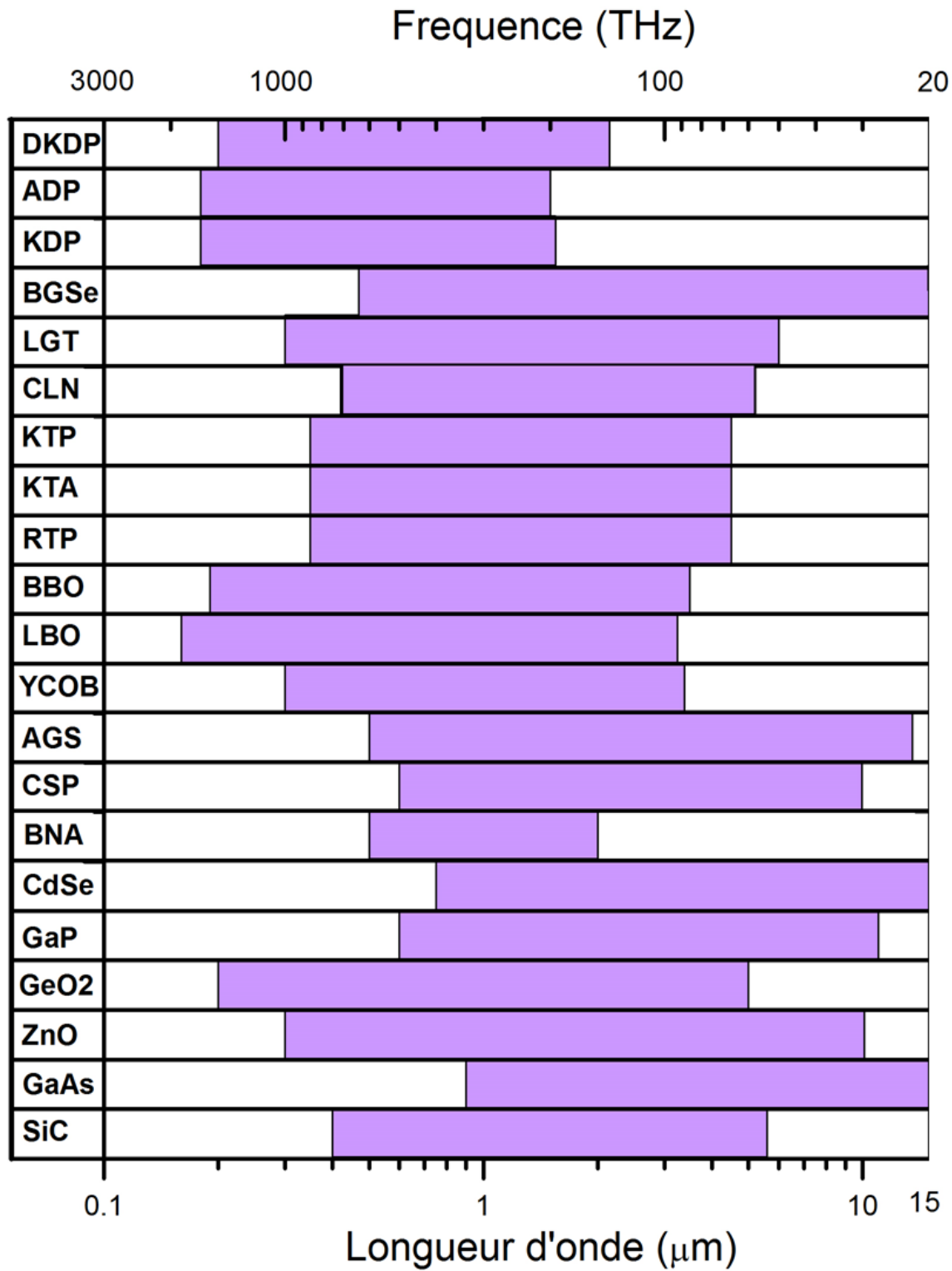


FIGURE 3.47 – Bilan des spectres de transmission en lumière non polarisée pour les 21 cristaux du Tableau 3.1 dans le domaine visible et infrarouge.

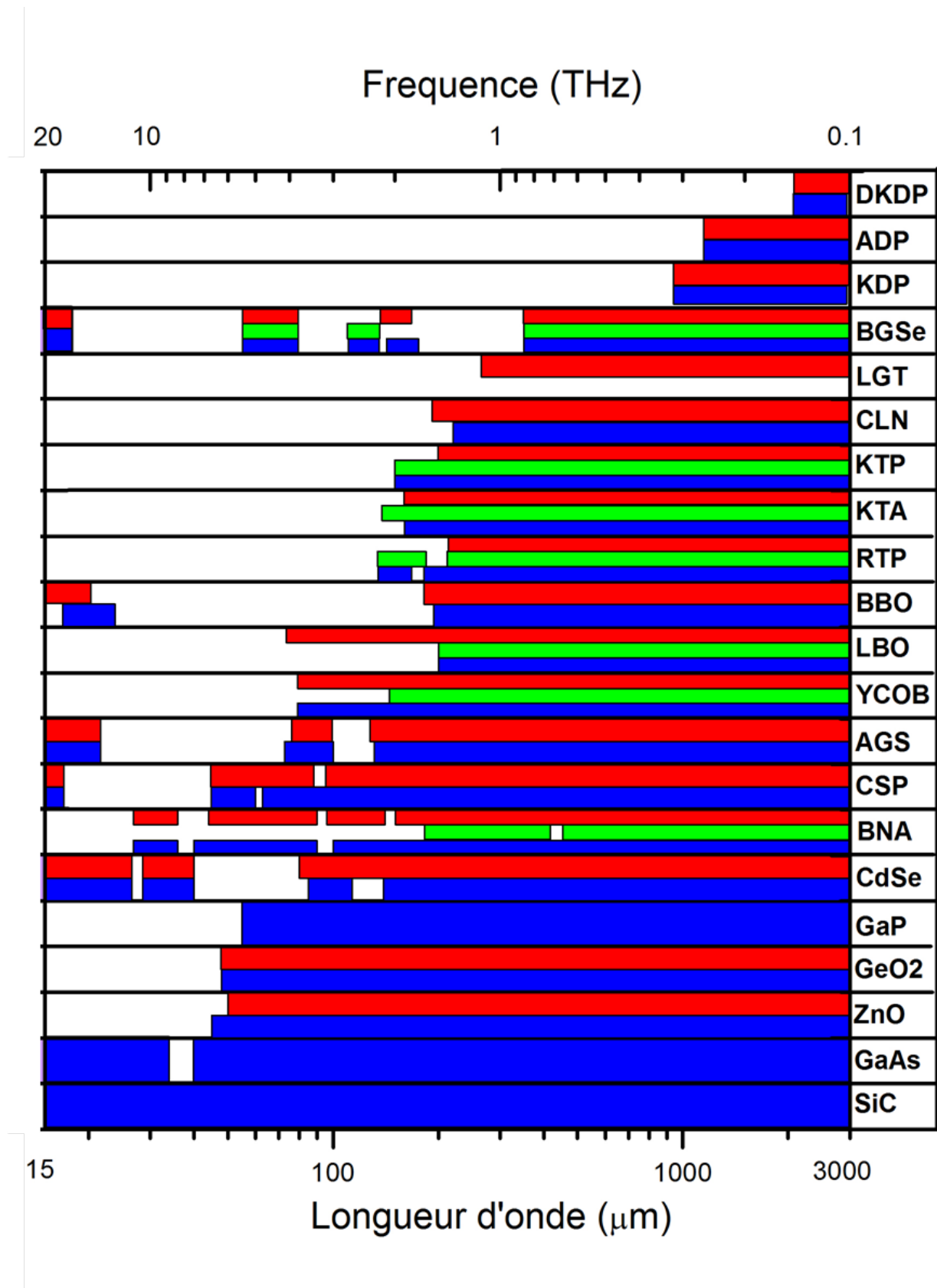


FIGURE 3.48 – Bilan des spectres de transmission en lumière polarisée pour les 21 cristaux du Tableau 3.1 dans le domaine THz.

3.4.3.3 Indices de réfraction et coefficients d'absorption principaux

Dans cette section, nous donnons les valeurs principales des indices de réfraction et des coefficients d'absorption des cristaux sélectionnés. Nous les avons déterminé par la spectroscopie TDS avec les mêmes lames présentées dans le Tableau 3.5. Les résultats suivants sont limités aux domaines pour lesquels la transmission n'est pas nulle dans le domaine THz. C'est le cas de tous les cristaux étudiés comme le montre la Figure 3.48, sauf pour les cristaux de KDP, ADP et DKDP. Dans le cas du cristal de BGSe, il sera possible de déterminer les valeurs des indices principaux de réfraction et des coefficients d'absorption autour de 2 THz, moyennant une analyse plus approfondie qui est en cours actuellement.

Les résultats des mesures d'indices de réfraction et de coefficients d'absorption en fonction de la longueur d'onde et de la fréquence sont donnés respectivement par les courbes de gauche et de droite des Figures 3.50 à 3.65.

La Figure 3.49 permet de comprendre la lecture des courbes représentant les valeurs principales des indices de réfractons principaux. Dans le domaine visible et proche infrarouge, elles correspondent aux équations de Sellmeier issues des références données dans le Tableau 3.2, quand elles sont connues. Dans le domaine THz, elles correspondent aux mesures réalisées par TDS dans la thèse. Pour les cristaux biaxes, les indices principaux n_x , n_y et n_z sont représentés. Il s'agit de n_o et n_e pour les cristaux uniaxes, et de l'indice n pour les cristaux isotropes.

De façon similaire, les valeurs principales des coefficients d'absorption α_x , α_y et α_z sont représentées pour les cristaux biaxes, α_o et α_e pour les cristaux uniaxes, et α pour les cristaux isotropes.

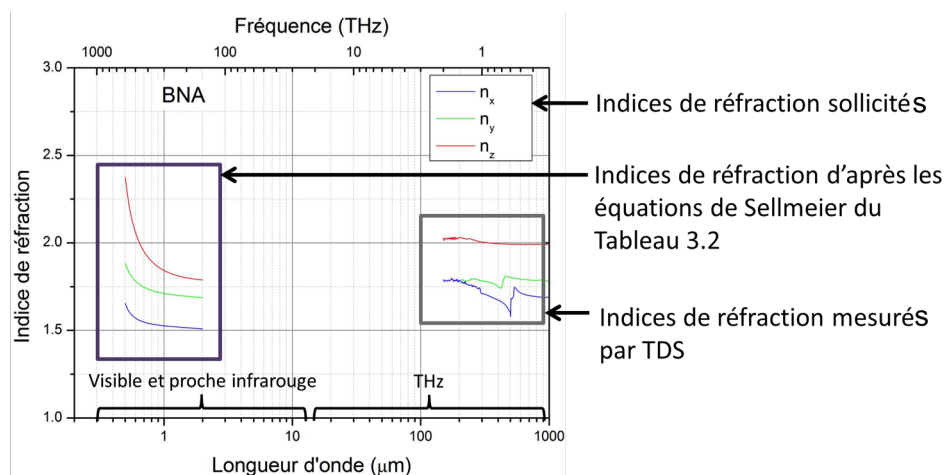


FIGURE 3.49 – Exemple de comparaison entre les indices de réfraction dans les domaines visible proche infrarouge et THz.

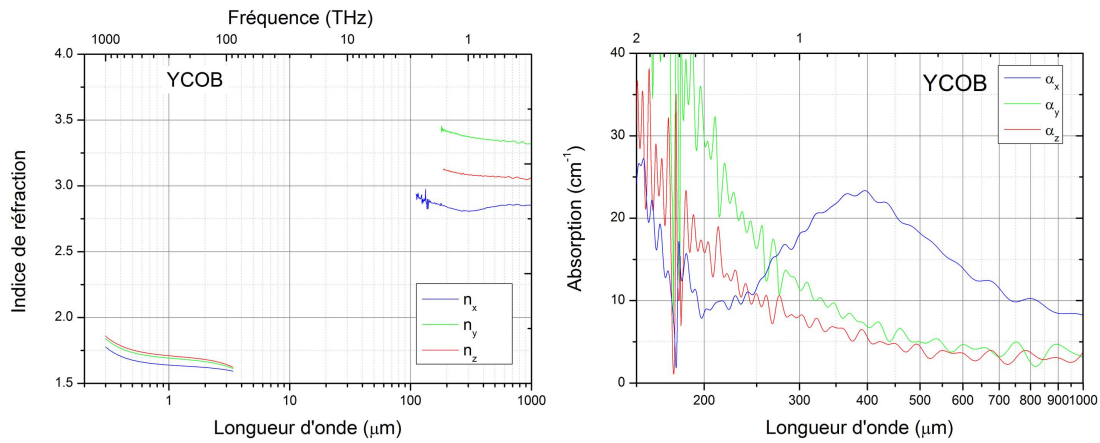


FIGURE 3.50 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de YCOB ($i=x,y,z$).

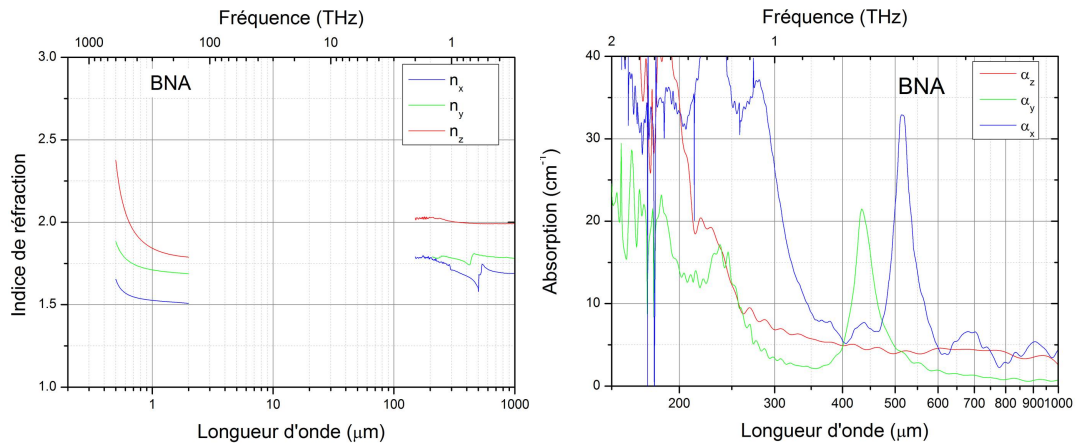


FIGURE 3.51 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de BNA ($i=x,y,z$).

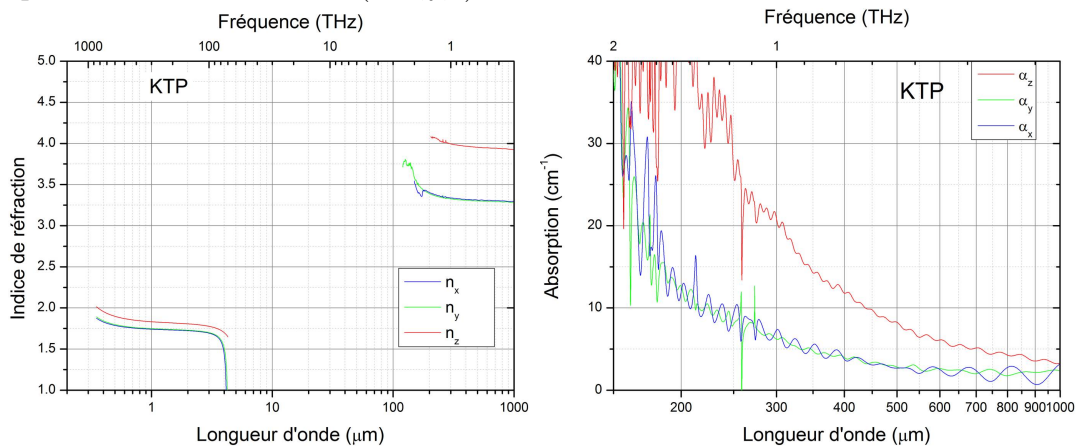


FIGURE 3.52 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de KTP ($i=x,y,z$).

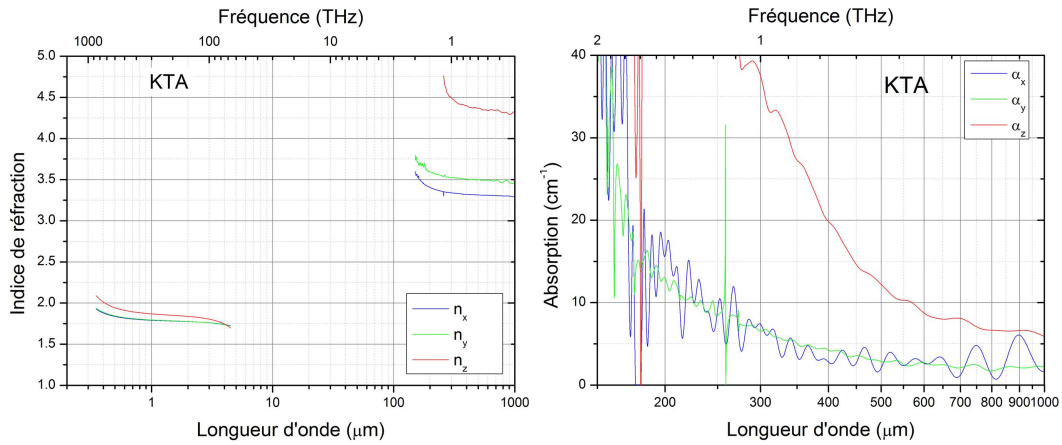


FIGURE 3.53 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de KTA ($i=x,y,z$).

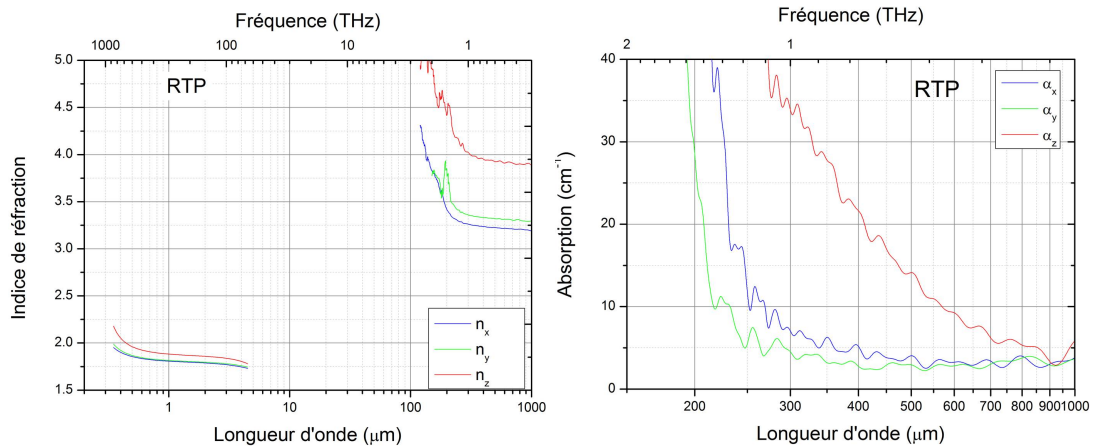


FIGURE 3.54 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de RTP ($i=x,y,z$).

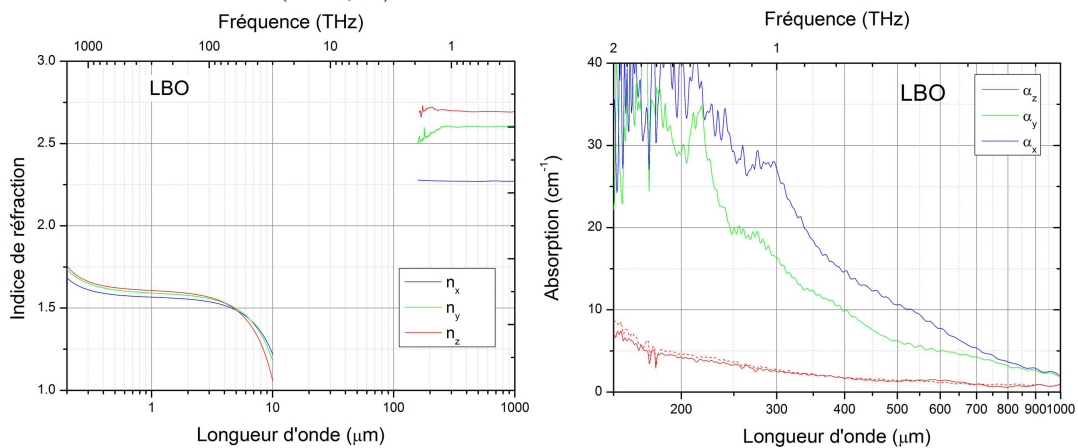


FIGURE 3.55 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de LBO ($i=x,y,z$).

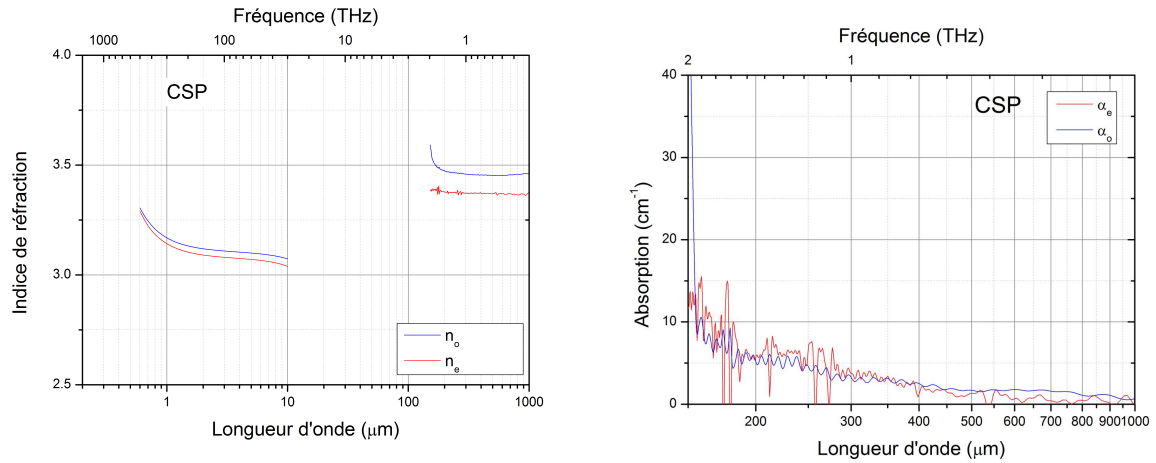


FIGURE 3.56 – Spectres des indices de réfraction n_i et des coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de CSP ($i=o,e$).

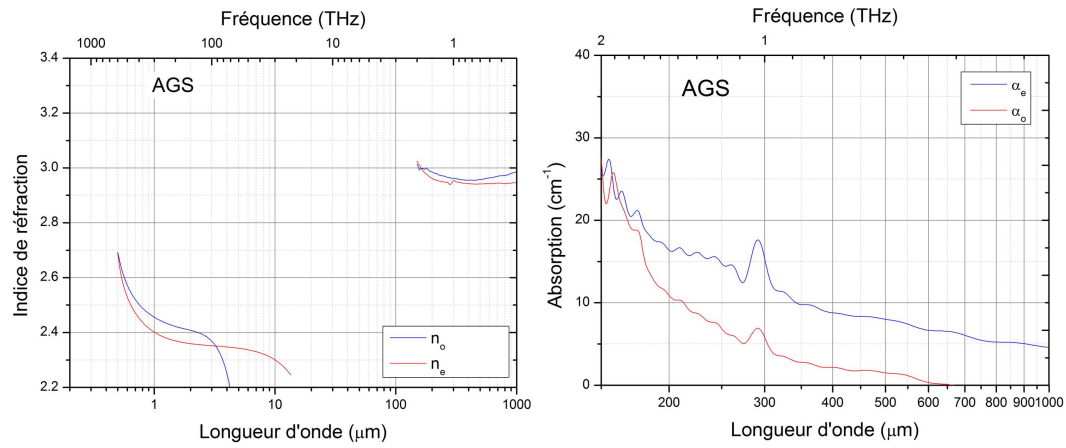


FIGURE 3.57 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de AGS ($i=o,e$).

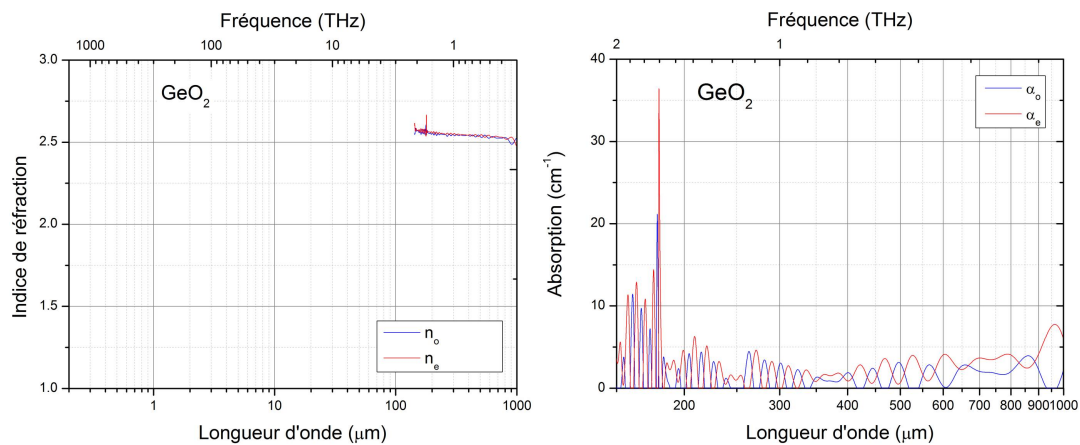


FIGURE 3.58 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de GeO_2 ($i=o,e$).

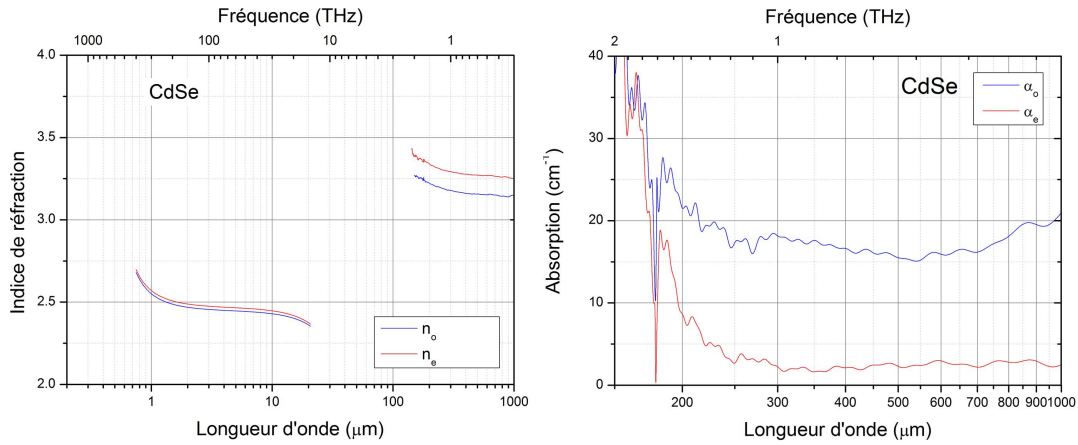


FIGURE 3.59 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de CdSe ($i=o,e$).

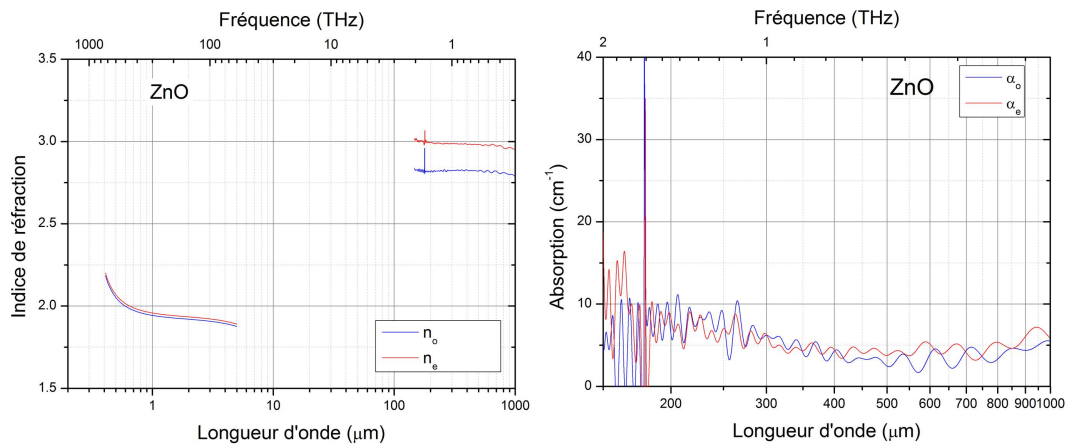


FIGURE 3.60 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de ZnO ($i=o,e$).

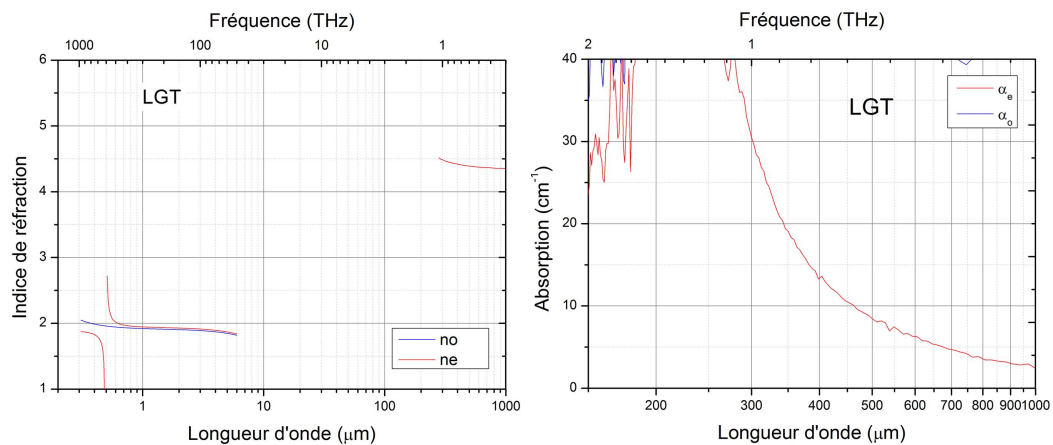


FIGURE 3.61 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de LGT ($i=o,e$).

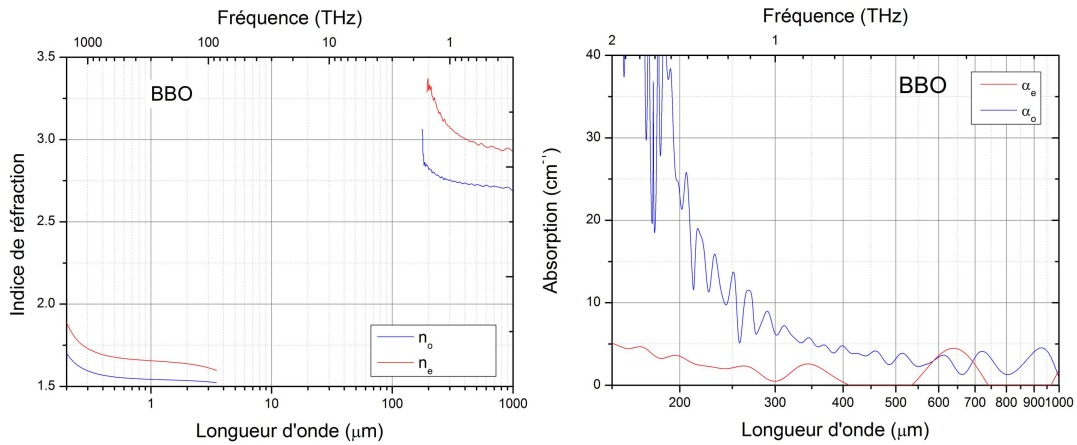


FIGURE 3.62 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de BBO ($i=o,e$).

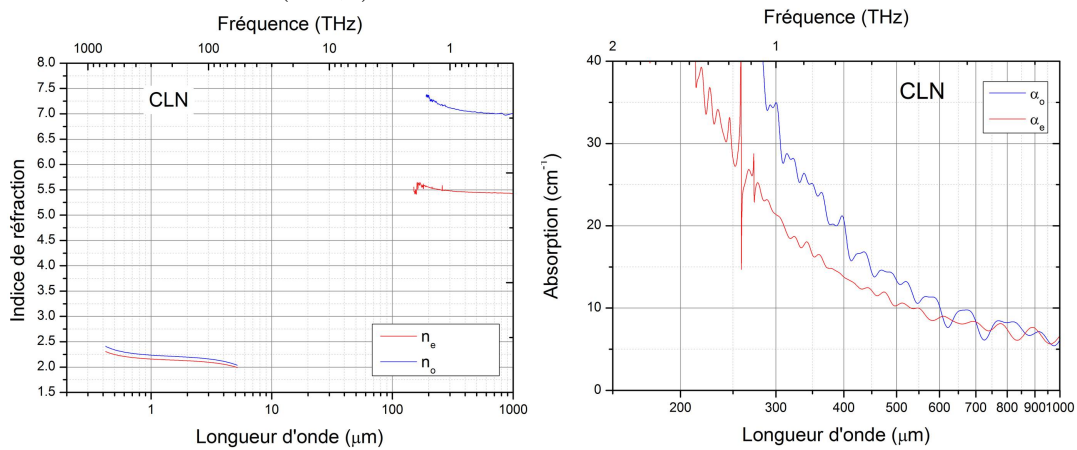


FIGURE 3.63 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de CLN ($i=o,e$).

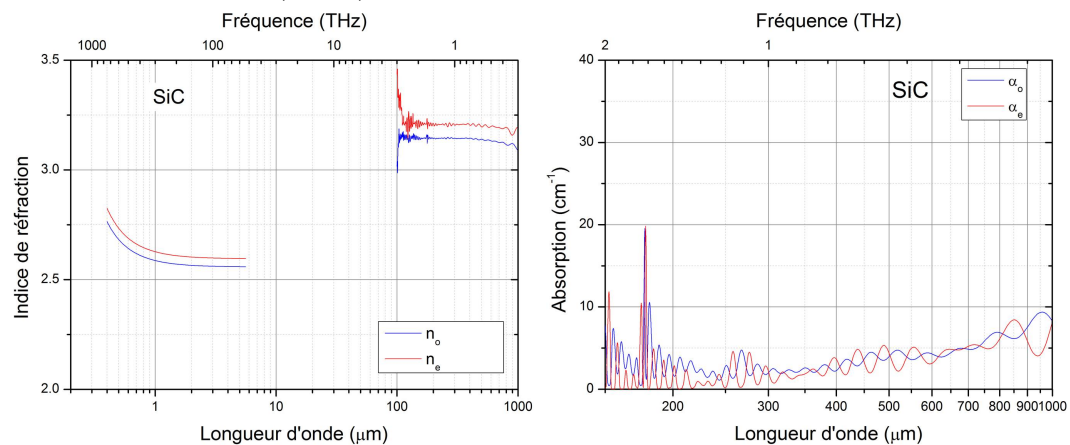


FIGURE 3.64 – Spectres des indices de réfraction n_i et coefficients d'absorption α_i principaux du cristal de SiC ($i=o,e$).

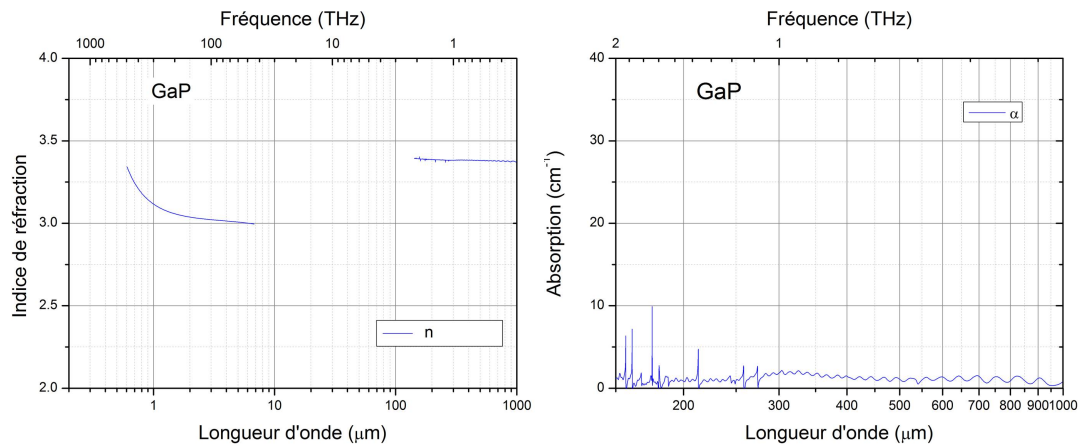


FIGURE 3.65 – Spectres des indices de réfraction n et coefficients d'absorption α principaux du cristal de GaP.

Les Figures 3.47 à 3.62 rendent compte de cristaux pour lesquels les indices dans le domaine THz ont des valeurs proches de celles des indices dans le domaine visible et proche-infrarouge. C'est le cas des cristaux de BNA, et également des cristaux de CSP, SiC et GaP. Nous pouvons espérer pour tous ces cristaux une génération THz efficace, comme cela a été montré pour BNA. De plus, tous ces cristaux sont très peu absorbants sur une large gamme spectrale du domaine THz.

Notons que les valeurs des indices de réfraction principaux déterminées par spectroscopie TDS ont une précision de l'ordre de 10^{-2} . Or nous avons indiqué dans le chapitre 2 qu'il faut une précision meilleure que 10^{-4} pour pouvoir calculer des angles d'accord de phase avec une précision meilleure que le degré.

L'ensemble des résultats de ce chapitre sera néanmoins utilisé pour effectuer les calculs d'accord de phase et de longueur de cohérence développés au chapitre suivant.

3.5 Bilan

Dans ce troisième chapitre, nous avons effectué, à notre connaissance la première étude complète dans le domaine THz des spectres de transmission en lumière polarisée et des valeurs des indices de réfraction et des coefficients d'absorption principaux pour 21 cristaux non linéaires. Dans le domaine visible et infrarouge, nous avons utilisé les données de la littérature.

Nous avons aussi étudié le cristal de BNA dans le domaine visible et infrarouge. Nous avons montré que les équations de Sellmeier de la littérature n'étaient pas assez précises sur tout son domaine de transparence. Nous avons affiné ces équations en utilisant la mesure directe des angles d'accord de phase sur cylindre. Nous avons également déterminé le spectre de transmission en lumière polarisée et mesuré le seuil de dommage optique.

Toutes ces données peuvent être utilisées pour calculer les longueurs de cohérence et les conditions d'accord de phase, qui font l'objet du chapitre suivant. C'est sur cette base

qu'il sera alors possible de déterminer les meilleurs conditions de génération d'une onde THz dans les 21 cristaux non linéaires que nous avons sélectionnés.

CHAPITRE 4

ETUDE DE LA GÉNÉRATION THZ DANS LES CRISTAUX SÉLECTIONNÉS

Ce chapitre vise à déterminer les meilleures conditions de génération d'une onde THz par DFG dans les 21 cristaux non linéaires que nous avons sélectionnés. La génération d'une onde THz monochromatique et polychromatique a été considérée.

La première partie de ce chapitre est théorique. Les calculs utilisent les éléments de théorie présentés au Chapitre 1, avec un intérêt particulier pour les paramètres importants que sont la longueur de cohérence, les conditions d'accord de phase et le coefficient effectif associé. Ils ont été effectués pour les longueurs d'onde incidentes λ_2 et λ_3 , et la longueur d'onde THz générée λ_1 des domaines de transparence des cristaux qui sont détaillés au Chapitre 3. La démarche adoptée pour l'onde THz monochromatique et polychromatique est la même que celle présentée dans l'état de l'art du Chapitre 2.

La seconde partie de ce chapitre est expérimentale. Elle présente les résultats obtenus avec quatre expériences mises en place pour générer une onde THz par DFG utilisant plusieurs types de lasers impulsionsnels. Avec le premier montage couplé avec un laser femtoseconde centré à $0,8 \mu\text{m}$, la génération d'une onde THz polychromatique a été étudiée. Cela a aussi été le cas avec un deuxième montage utilisant un laser femtoseconde accordable. Avec les deux derniers montages, couplés avec deux lasers picosecondes puis nanosecondes, l'un au moins étant accordable, la génération d'une onde THz monochromatique a été visée.

4.1 Etude théorique

4.1.1 Génération d'une onde THz monochromatique

L'étude théorique de la génération d'une onde THz monochromatique par DFG a été réalisée pour tous les cristaux non linéaires sélectionnés. Le calcul porte sur les valeurs possibles de la longueur de cohérence l_c , comprises entre l'épaisseur du cristal L et l'infini, cette dernière condition correspondant à la condition d'accord de phase. Il est présenté

uniquement pour les configurations de polarisation (types) qui sont associées à un coefficient effectif non nul, sachant que les 8 types définis au Tableau 1.6 sont a priori possibles.

D'après l'Eq. (1.45), le coefficient effectif dépend des 27 éléments non nuls des tenseurs $\chi^{(2)}$ et $F^{(2)}$. Les matrices correspondantes du tenseur $\chi^{(2)}$ sont données dans le Tableau B.1 de l'Annexe B. Elles y sont définies d'après le principe de Neumann, mais sans avoir appliqué l'approximation de Kleinman. Elles concernent les 21 cristaux sélectionnés et sont classées en fonction des groupes ponctuels pour lesquels la forme de la matrice est la même.

Seuls certains éléments du tenseur de susceptibilité électrique $\chi^{(2)}$ sont sollicités selon l'axe accessible avec les lames orientées que nous avons usinées. Pour les identifier, il faut calculer les 27 éléments du facteur champ $F^{(2)}$ pour les 8 types possibles de DFG. Nous avons effectué ce calcul pour les deux directions x et y des cristaux biaxes positifs, et pour les trois directions x, y et \vec{U} ($\theta = 90^\circ$, $\phi = 45^\circ$) des cristaux uniaxes positifs et négatifs. A titre d'information, les résultats du calcul qui concernent le facteur champ $F^{(2)}$ sont donnés dans les Tableaux B.2, B.3 et B.4, respectivement, de l'annexe B.

Le coefficient effectif est déterminé à partir de l'Eq. (1.45) qui a l'avantage d'être analytique pour les trois orientations choisies. Cette équation montre que seules les mêmes éléments non nuls des tenseurs $\chi^{(2)}$ et $F^{(2)}$ permettent d'avoir un coefficient effectif non nul.

Un calcul de l'Eq. (1.45) pour les 8 types possibles de DFG, nous a permis d'identifier ceux associés à un coefficient effectif non nul pour toutes les lames usinées. Ces types sont donnés dans le Tableau B.5 de l'Annexe B.

L'Equation (1.37), qui permet de calculer la longueur de cohérence, dépend des valeurs des indices de réfraction principaux du cristal pour les deux longueurs d'onde incidentes λ_2 et λ_3 , et pour la longueur d'onde THz générée λ_1 . Ces valeurs sont obtenues à partir des équations de Sellmeier issues de la littérature pour le visible et proche-infrarouge en utilisant les références citées dans le Tableau 3.2. Pour le cristal de BNA, nous avons utilisé les nouvelles équations de Sellmeier que nous avons établies dans le cadre de la thèse (voir Chapitre 3). Dans le domaine THz, nous avons utilisé les valeurs des indices de réfraction principaux que nous avons déterminées par spectroscopie TDS, et qui sont représentées dans les Figures 3.50 à 3.65.

Le calcul de la longueur de cohérence a été mené à partir de l'Eq. (1.37) pour toutes directions des lames orientées du Tableau B.5 et pour tous les types associés à un coefficient effectif non nul. Nous avons considéré tous les domaines de transparence des cristaux d'après les spectres de transmission issus de la littérature dans le visible et proche-infrarouge (voir Tableau 3.2), et d'après les spectres de transmission qui ont été enregistrés dans le domaine THz par spectroscopies FTIR et TDS (voir Chapitre 3).

Parmi toutes les configurations du Tableau B.5, seules quelques-unes ont satisfait la condition $L \leq l_c < \infty$, pour un ensemble de longueurs d'onde incidentes (λ_2, λ_3). Les cris-

taux, la direction et le type correspondant sont donnés dans le Tableau 4.1. L'expression analytique du coefficient effectif associé χ_{eff} est également donné.

Les valeurs de la longueur de cohérence qui ont été calculées pour les cristaux du Tableau 4.1 sont représentées dans les Figures 4.1 à 4.11. Il s'agit du tracé d'un nuancier en 3D, où la variation de la longueur de cohérence est associée à une couleur (noir si $l_c = 0$ mm, colorée si $l_c < L$ et rouge si $l_c \geq L$). Le lien entre les couleurs et les valeurs de l_c est rappelé à droite des Figures. Le nuancier de couleurs est représenté en fonction de la longueur d'onde incidente λ_2 et de la fréquence générée ν_1 . Certaines valeurs de la longueur incidente λ_3 , déduites par la loi de conservation de l'énergie, sont rappelées pour des lignes blanches incurvées. La condition d'accord de phase, pour laquelle la longueur de cohérence est infinie, se situe au centre de l'aire rouge des Figures. Elle a été trouvée pour tous les cristaux du Tableau 4.1.

Cristal	Direction	Type	χ_{eff}
YCOB	x	VII	χ_{yyz}
BNA	y	I	χ_{zxx}
		V	χ_{zzz}
LBO	x	VII	χ_{yyz}
CSP	$\theta = 90^\circ,$ $\phi = 45^\circ$	VIII	$-\frac{1}{2}\chi_{zxy} - \frac{1}{2}\chi_{zyx}$
AGS	$\theta = 90^\circ,$ $\phi = 45^\circ$	VIII	$-\frac{1}{2}\chi_{zxy} - \frac{1}{2}\chi_{zyx}$
CdSe	x	I	χ_{zxx}
		V	χ_{zzz}
ZnO	x	I	χ_{zxx}
		V	χ_{zzz}
GaP	$\theta = 90^\circ,$ $\phi = 45^\circ$	III	$-\frac{1}{2}\chi_{zxy} - \frac{1}{2}\chi_{zyx}$

TABLE 4.1 – Types de processus de DFG associés à un coefficient effectif non nul selon les directions des lames cristallines usinées et pour lesquels des longueurs de cohérence supérieures à la longueur de l'échantillon ont pu être calculées.

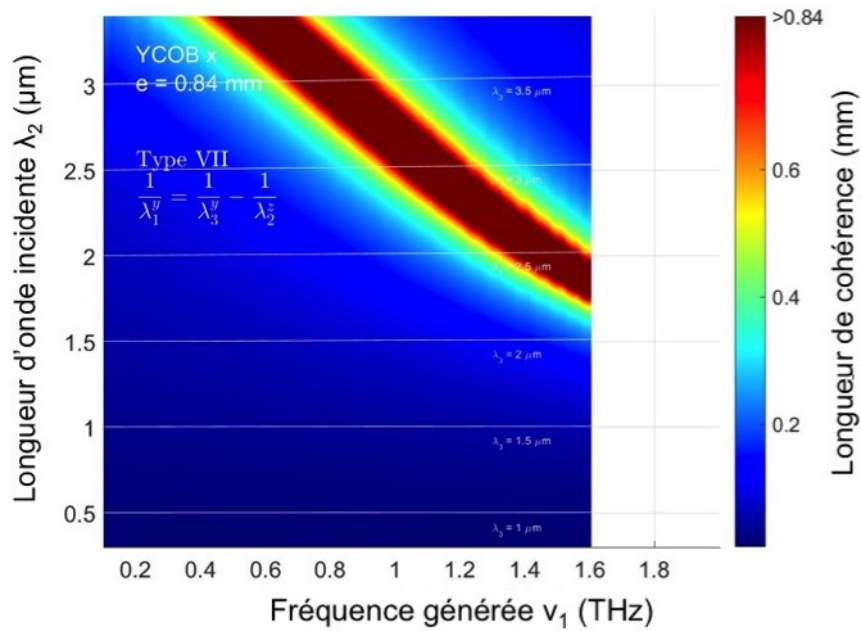


FIGURE 4.1 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type VII dans un cristal de YCOB d'épaisseur 0,84 mm et taillé dans la direction x.

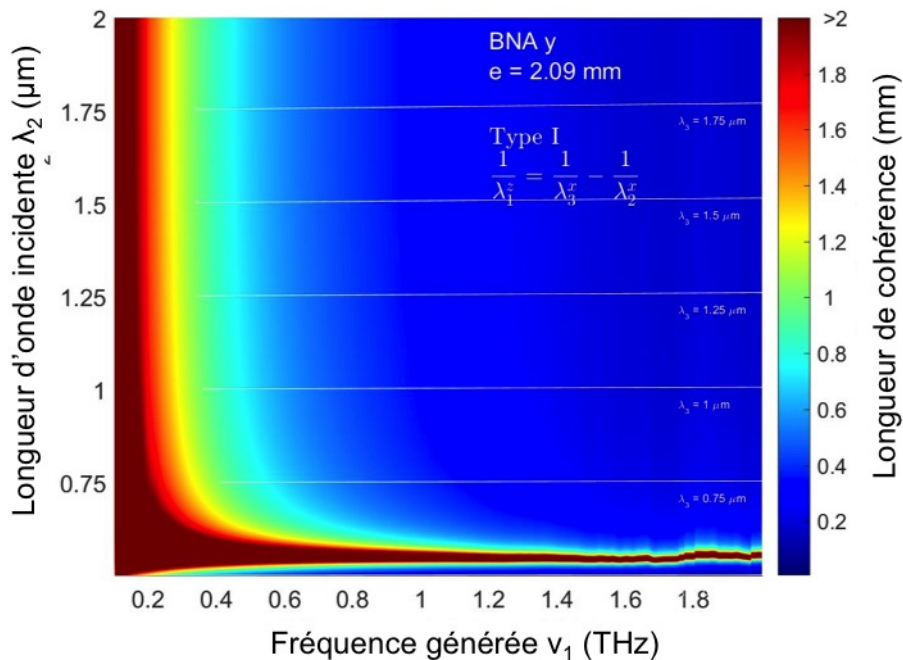


FIGURE 4.2 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type I dans un cristal de BNA d'épaisseur 2,09 mm et taillé dans la direction y.

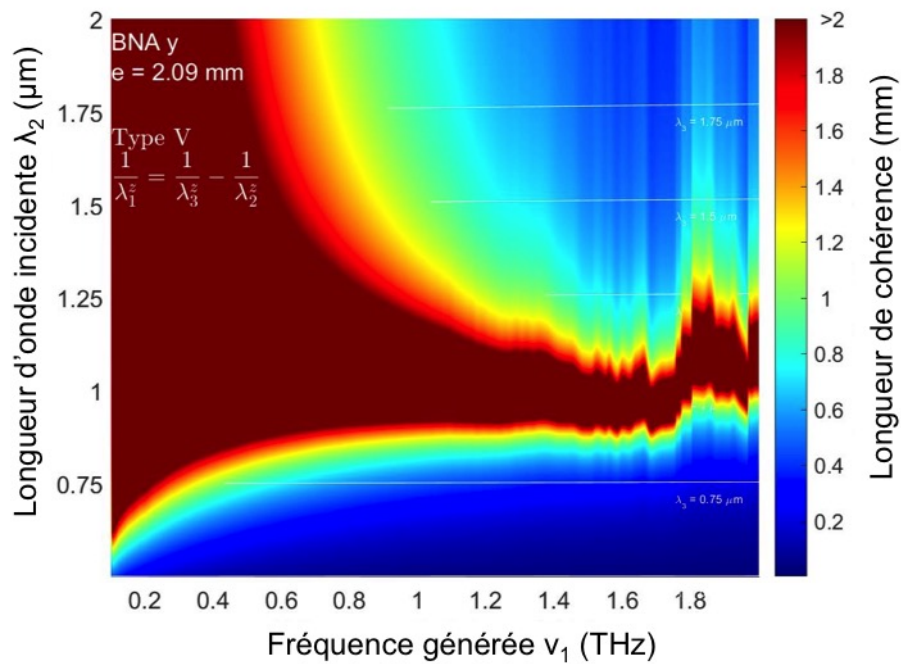


FIGURE 4.3 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de BNA d'épaisseur 2,09 mm et taillé dans la direction y.

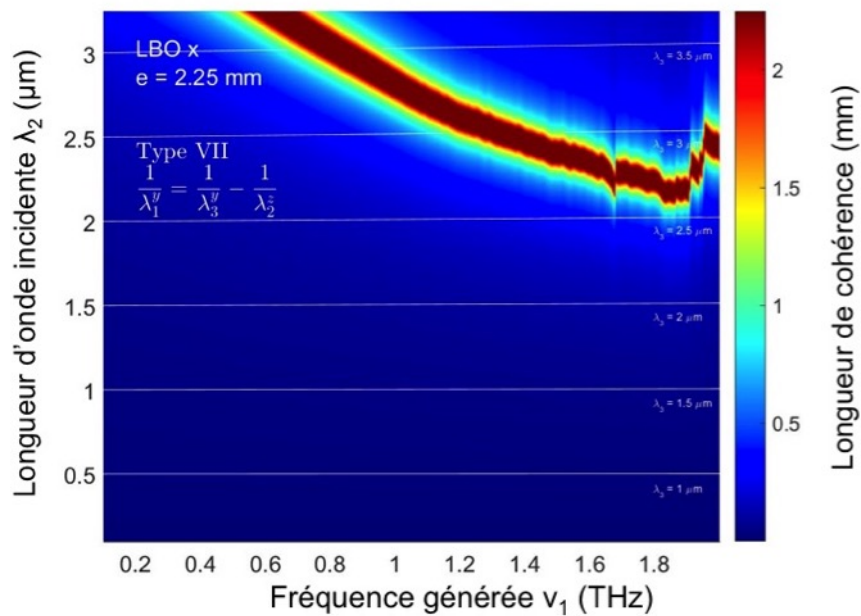


FIGURE 4.4 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type VII dans un cristal de LBO d'épaisseur 2,25 mm et taillé dans la direction x.

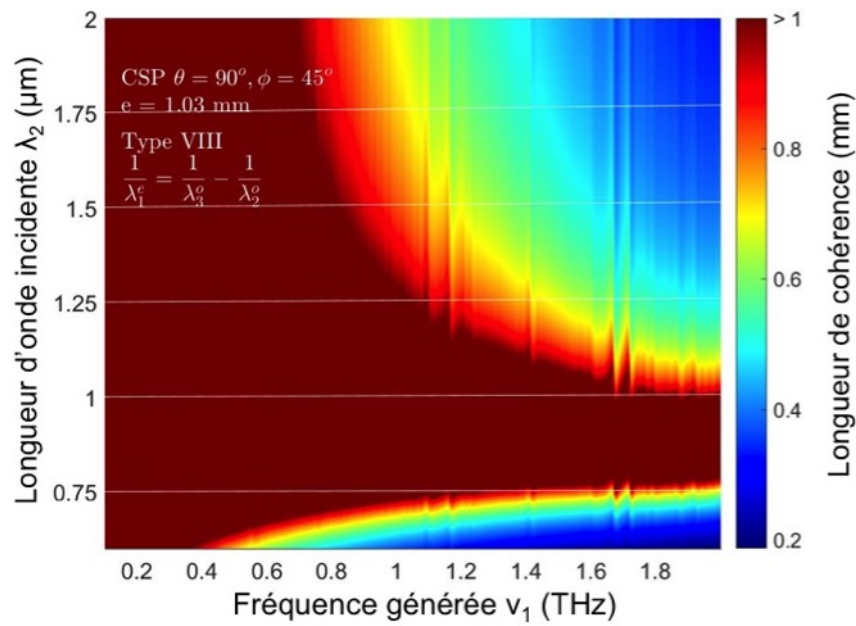


FIGURE 4.5 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type VIII dans un cristal de CSP d'épaisseur 1,03 mm et taillé dans la direction $\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$.

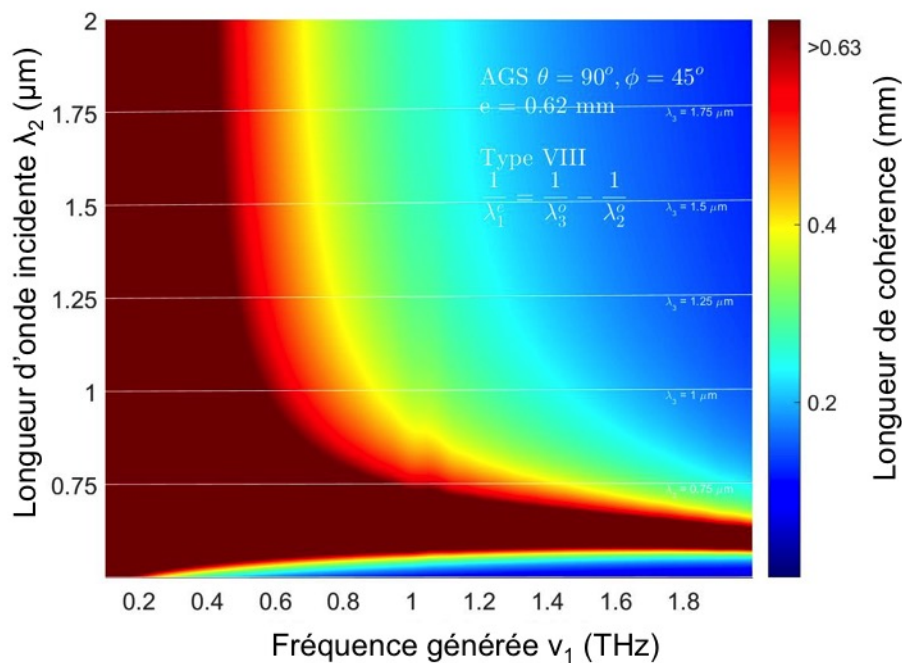


FIGURE 4.6 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type VIII dans un cristal de AGS d'épaisseur 0,62 mm et taillé dans la direction $\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$.

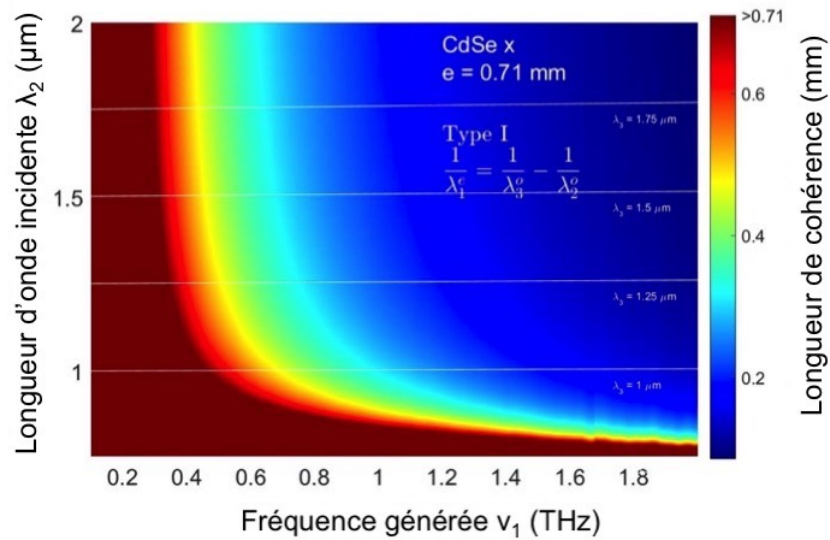


FIGURE 4.7 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type I dans un cristal de CdSe d'épaisseur 0,71 mm et taillé dans la direction x.

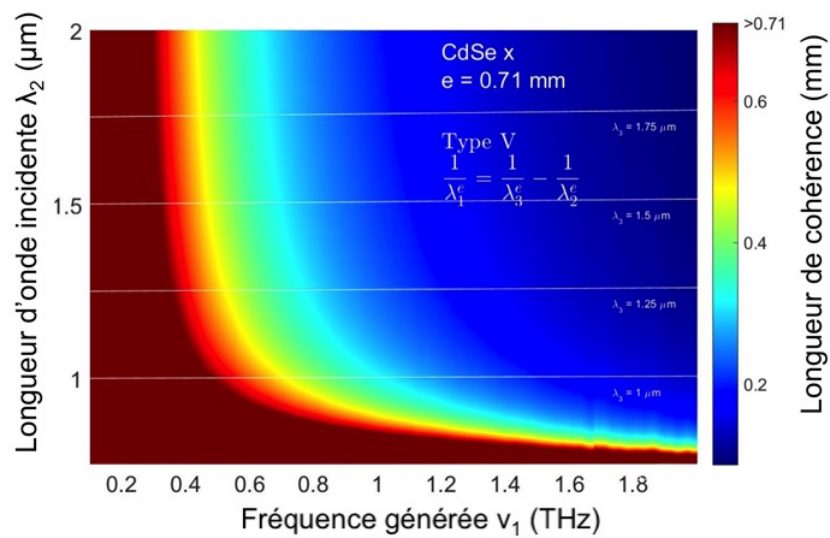


FIGURE 4.8 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de CdSe d'épaisseur 0,71 mm et taillé dans la direction x.

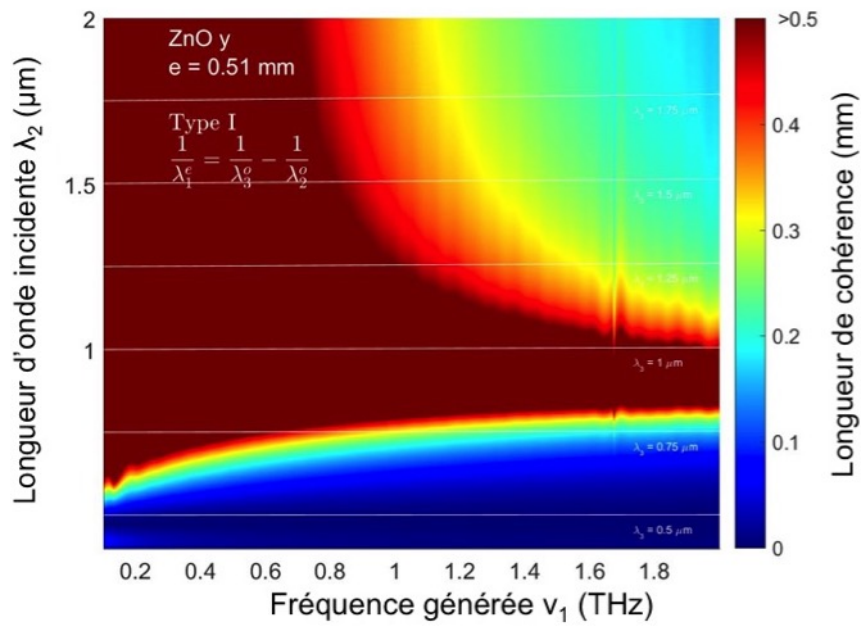


FIGURE 4.9 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type I dans un cristal de ZnO d'épaisseur 0,51 mm et taillé dans la direction x.

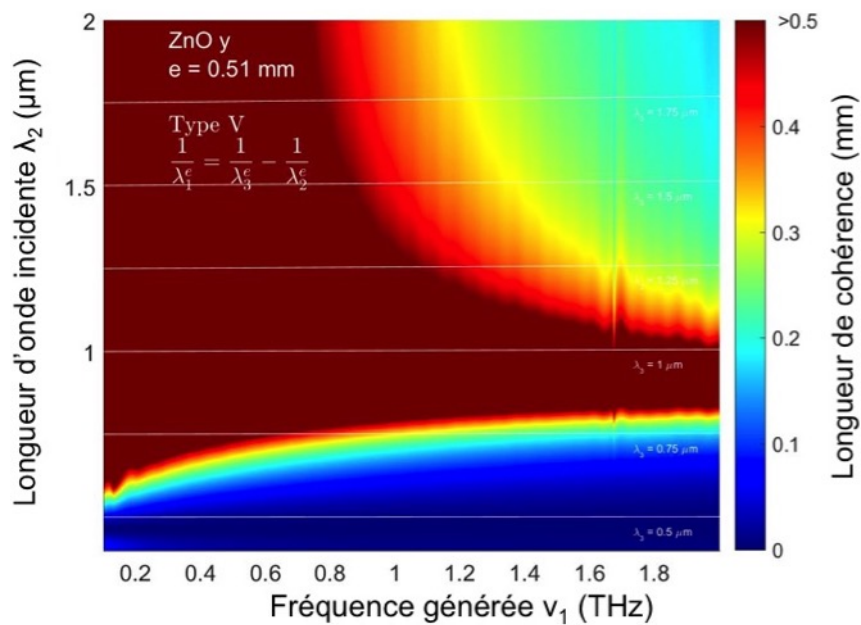


FIGURE 4.10 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de ZnO d'épaisseur 0,51 mm et taillé dans la direction x.

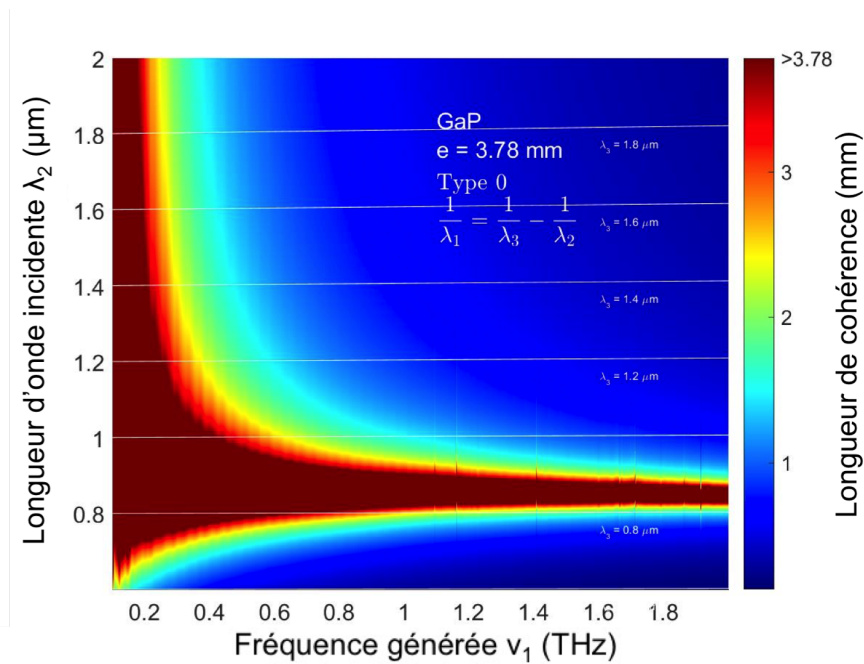


FIGURE 4.11 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type III dans un cristal de GaP d'épaisseur 3,78 mm et taillé dans une direction quelconque.

Les Figures 4.1 à 4.11 montrent que dans le cas des cristaux de BNA, CSP et ZnO, un plus grand nombre de couples de longueurs d'onde incidentes (λ_2, λ_3) permet de générer une onde THz avec une longueur de cohérence $L \leq l_c < \infty$ (voir zone rouge), les valeurs des couples étant différentes pour chaque cristal. La fréquence générée est comprise entre 0,1 et 2 THz et à très basse fréquence, l'étendue de la zone (λ_2, λ_3) est maximale pour tous ces cristaux.

D'après nos calculs, les cristaux étudiés ont les spécificités suivantes :

- dans le cristal de BNA, les conditions précédentes sont atteintes pour λ_2 localisée autour de $0,56 \mu\text{m}$ pour la DFG type I, et autour de $1 \mu\text{m}$ pour la DFG type V ;
- pour le type VII de LBO, il faut $2 \mu\text{m} < \lambda_2 < 3 \mu\text{m}$, et pour le type VII dans YCOB $1,5 \mu\text{m} < \lambda_2 < 3,0 \mu\text{m}$;
- pour CdSe, l'accord de phase est situé très proche de la longueur d'onde de coupure visible, soit $\lambda_2 = 0,75 \mu\text{m}$, pour les types I et V ;
- pour ZnO, λ_2 doit être proche de $0,9 \mu\text{m}$ pour ces deux mêmes types ;
- enfin, les conditions optimales du type VIII dans AGS et CSP sont atteintes pour une longueur d'onde λ_2 de $0,65 \mu\text{m}$ et $0,80 \mu\text{m}$ respectivement, alors que pour le type III dans GaP il s'agit de $0,85 \mu\text{m}$;

Notons que dans le cas du cristal de YCOB, la détermination de l'indice de réfraction par la mesure de TDS n'a pas permis de déterminer les valeurs principales des indices de réfraction au-delà de 1,6 THz, à cause d'un pic d'absorption du cristal à cette longueur d'onde. Le calcul présenté Figure 4.1 s'arrête donc à $\nu_1 = 1,6$ THz.

Le cristal de BNA ayant été beaucoup étudié pour la génération d'une onde THz monochromatique, nous avons pu comparer les valeurs de la longueur de cohérence calculées dans la littérature (voir chapitre 2) avec nos calculs. D'après les références du Tableau 2.1, le Type V est principalement visé. D'après le Tableau 1.4, sa longueur de cohérence dépend uniquement de la valeur de l'indice de réfraction $n^+(\lambda_i, \theta, \phi)$ aux trois longueurs d'onde en interaction, qui est égal à l'indice de réfraction principal $n_z(\lambda_i)$ avec $i = 1, 2, 3$, selon la direction y considérée. Cet indice est sollicité aux longueurs d'onde incidentes λ_2 et λ_3 du domaine de transparence visible et proche-infrarouge et à la longueur d'onde générée λ_1 entre 0,1 et 22 THz du domaine de transparence THz du cristal de BNA.

La longueur de cohérence calculée dans la littérature a été décrite dans la partie 2.2.2. du Chapitre 2 dans un cristal BNA orienté selon l'axe diélectrique y et avec une épaisseur de cristal de 1 mm. Elle est montrée dans la Figure 2.6. Nous avons voulu comparer ce résultat à notre calcul dans le même cristal. Cette comparaison a été faite en deux temps :
- Dans un premier temps, nous considérons une onde générée entre 0,1 et 20 THz selon que le calcul utilise, dans le visible et proche-infrarouge, l'équation de Sellmeier pour n_z issue de [35] ou celle que nous avons déterminée dans le Chapitre 3 et qui est décrite par l'Eq. (3.5). Nous avons utilisé l'indice de réfraction issu de [28] pour la valeur de $n_z(\lambda_1)$. La différence entre ces deux résultats est obtenue en comparant les figures 2.6 et 4.12 ;
- Dans un second temps, la comparaison a été limitée à la génération d'une onde THz entre 0,1 et 2 THz. Elle concerne l'utilisation dans le domaine THz de la valeur de l'indice de réfraction principal n_z obtenue par la spectroscopie FTIR dans [28] ou par la spectroscopie TDS que nous avons réalisées et présentées dans le chapitre 3. La différence entre ces deux résultats peut s'apprécier en comparant les figures 4.13 et 4.14. L'équation de Sellmeier utilisée pour n_z dans le domaine visible et proche-infrarouge est celle que nous avons déterminée dans le Chapitre 3, et qui est décrite par l'Eq. (3.5).

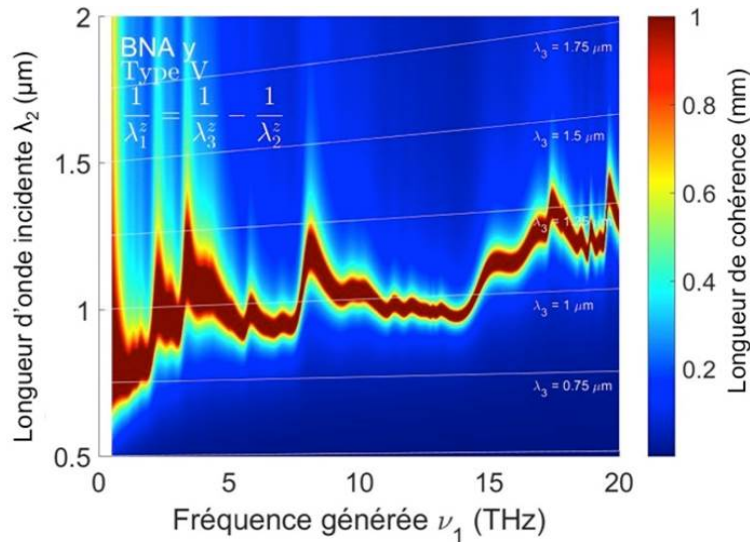


FIGURE 4.12 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de BNA taillé dans la direction y et de 1 mm d'épaisseur. L'indice de réfraction principal n_z est décrit par l' Eq. (3.5) dans le domaine visible-proche infrarouge, et par les mesures issues de [28] entre 0,5 et 22 THz.

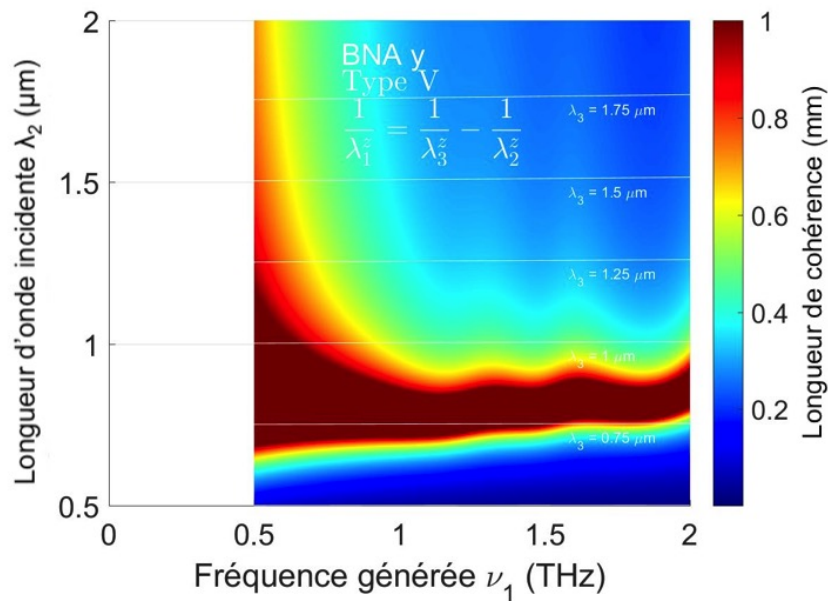


FIGURE 4.13 – Calcul de la longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de BNA taillé selon la direction y et de 1 mm d’épaisseur. L’indice de réfraction principal n_z est décrit par l’Eq. (3.5) dans le domaine visible-proche infrarouge et par [28] entre 0,5 et 2 THz.

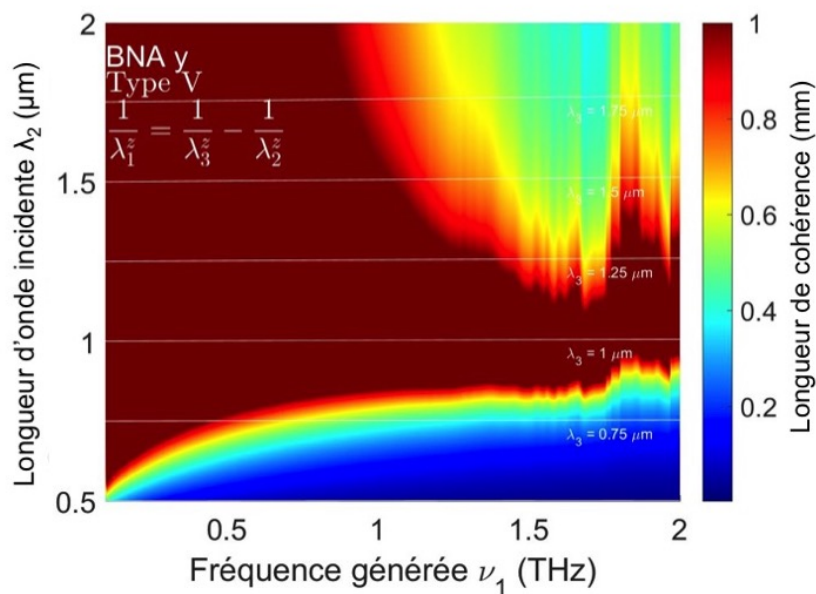


FIGURE 4.14 – Calcul de longueur de cohérence pour la génération THz par DFG de type V dans un cristal de BNA taillé dans la direction y et de 1 mm d’épaisseur. L’indice de réfraction principal n_z est décrit par l’Eq. (3.5) dans le domaine visible-proche infrarouge et par les valeurs de la Figure 3.51 entre 0,1 et 2 THz.

Dans un premier temps, le calcul de l_c sur toute la gamme 0,1 - 20 THz est comparé entre le cas où l'indice de réfraction principal n_z est décrit dans le domaine visible-proche infrarouge par l'Eq. (3.5) que nous avons déterminée et le cas où c'est l'équation de Sellmeier issue de [35] qui est utilisé. D'après la Figure 2.6, la longueur de cohérence calculée est supérieure à 1 mm (voir zones rouges) avec n_z décrit par l'équation de Sellmeier de [35] pour des longueurs d'onde incidentes comprises entre de 0,6 à 1,1 μm . D'après la Figure 4.12 qui utilise n_z décrit par l'Eq. (3.5), la longueur de cohérence calculée est supérieure à 1 mm (voir zones rouges) lorsque les deux longueurs d'onde incidentes varient plutôt entre 0,7 à 1,4 μm . On note que cette nouvelle gamme de longueur d'onde correspond mieux aux résultats expérimentaux obtenus dans la référence [34] où il est dit que les meilleurs rendements génération d'une onde THz par DFG dans un cristal de BNA ont été obtenus pour des longueurs d'onde λ_2 et λ_3 comprises entre 0,8 à 1,3 μm .

Dans un second temps, nous avons voulu comparer le calcul de l_c sur la gamme 0,5 - 2 THz, l'indice de réfraction principal n_z provenant, dans le domaine THz, des mesures par la spectroscopie FTIR de [28] ou de nos mesures par spectroscopie TDS décrites au chapitre 3. Une comparaison des Figures 4.13 et 4.14 montre qu'un plus grand nombre de couples (λ_2, λ_3) correspond à une longueur de cohérence supérieure à 1 mm, spécialement à basse fréquence THz. Cette différence de résultat peut être expliquée par le fait que les calculs de [28] utilisent des valeurs de l'indice de réfraction principal n_z qui ont été déterminées dans des échantillons de qualité différente comparée à celle de nos cristaux, comme nous l'avons expliqué au Chapitre 3. Une autre explication possible pourrait être que la détermination de l'indice de réfraction principal n_z de BNA dans le domaine THz d'après [28], a été faite à partir de la spectroscopie FTIR. Or, comme nous l'avons expliqué dans le Chapitre 2, cette spectroscopie offre des résultats au-dessus de 2 THz avec une précision de 10^{-2} . Leur utilisation en-dessous de 2 THz ne peut donc pas permettre des calculs aussi fiables de la longueur de cohérence que ceux que nous avons réalisés avec l'indice de réfraction principal n_z déterminé par spectroscopie TDS avec une précision de 10^{-2} .

Nos nouvelles équations de Sellmeier ont donc un impact sur le calcul de la longueur de cohérence pour la génération d'une onde THz par DFG aussi bien dans le domaine visible et proche-infrarouge que dans le domaine THz. Seule une étude directe de l'énergie THz monochromatique générée pour des variations des longueurs d'onde λ_2 , λ_3 et λ_1 dans les mêmes gammes spectrales que celles utilisées pour le calcul de la longueur de cohérence, permettra de valider cet impact.

4.1.2 Génération d'une onde THz polychromatique

Dans le cas de la génération polychromatique, le spectre de l'énergie THz générée peut être calculé en utilisant l'Eq. (1.36). D'après le Chapitre 1, le calcul est analytiquement faisable pour 4 types rappelés dans le Tableau 1.5, le Tableau 4.2 permettant de déterminer ceux associés à un coefficient effectif non nul selon l'orientation des lames usinées. Comme ce calcul est très fastidieux, il a été réalisé uniquement pour le type V de DFG selon l'axe y du cristal de BNA, en considérant une épaisseur de 2,09 mm. D'après le Tableau 4.1, le coefficient effectif associé est égal à χ_{zzz} . D'autre part, ce calcul du spectre

de génération THz doit également prendre en compte le spectre d'absorption dans ce même domaine THz. En effet, la contribution de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique est forte dans cette gamme comme le montre les Figures 1.50 à 1.65. Dans le cas où l'absorption aux longueurs d'onde de pompe (λ_2 et λ_2 contenues dans l'impulsion centrée à λ_0) est négligeable et où l'approximation de la pompe non dépeuplée est valable, alors la prise en compte de l'absorption à la longueur d'onde l'onde générée (λ_1) s'obtient en multipliant l'Eq. (1.35) par $e^{-\alpha_z L}$. Il vient alors :

$$\varepsilon(\omega_1, L) = 4\beta \frac{A}{\lambda_0} G(Z, w_0, \rho) \chi_{eff}^2(\lambda_1) \varepsilon_0^2 \exp\left(-\frac{4\ln 2}{\lambda_1^2 \Delta\lambda^2} \lambda_0^2\right) L^2 e^{-\alpha_z(\omega_1)L} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (4.1)$$

β , A et $G(Z, w_0, \rho)$ ont été définis dans le Chapitre 1, de même que le paramètre Δk qui s'écrit dans le cas du type V :

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda_1} (n_{g,z}(\lambda_0) - n_z(\lambda_1)) \quad (4.2)$$

Le calcul de $\varepsilon(\omega_1, L)$ a été réalisé en utilisant l'Eq. (3.5) de n_z dans le domaine visible et proche-infrarouge ; dans le domaine THz, les variations de cet indice et du coefficient d'absorption α_z ont été déterminées par spectroscopie TDS au Chapitre 3. Le résultat de ce calcul est donné dans la Figure 4.15 qui représente la valeur normalisée à l'unité de l'énergie THz générée en fonction de la fréquence THz ν_1 entre 0,1 et 2 THz. Il a été réalisé pour plusieurs longueurs d'onde centrales incidentes comprises entre et 0,8 et 1,4 μm , et pour une largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda = 40$ nm qui correspondent aux paramètres des sources qui seront utilisées dans la partie expérimentale.

D'après la Figure 4.15, le spectre de l'énergie THz générée par OR de type V selon l'axe y du cristal de BNA s'étend jusqu'à 1,2 THz. Cette figure permet de constater que ce spectre varie en fonction de la longueur d'onde centrale λ_0 . Effectivement, celui obtenu avec $\lambda_0 = 0,8 \mu\text{m}$ est moins énergétique à toutes les longueurs d'onde générées que celui obtenu avec les autres valeurs de λ_0 . De plus la valeur de l'énergie THz générée est maximale quelle que soit la fréquence THz ν_1 si la longueur d'onde centrale est égale à 1 μm .

La figure 4.16 donne à titre de comparaison le même calcul effectué en utilisant l'indice $n_z(\lambda_1)$ et le coefficient d'absorption $\alpha_z(\lambda_1)$ issus de [28]. Il a pu être réalisé pour la même largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda = 40$ nm, mais pour des longueurs d'onde centrales comprises entre et 0,7 et 1 μm .

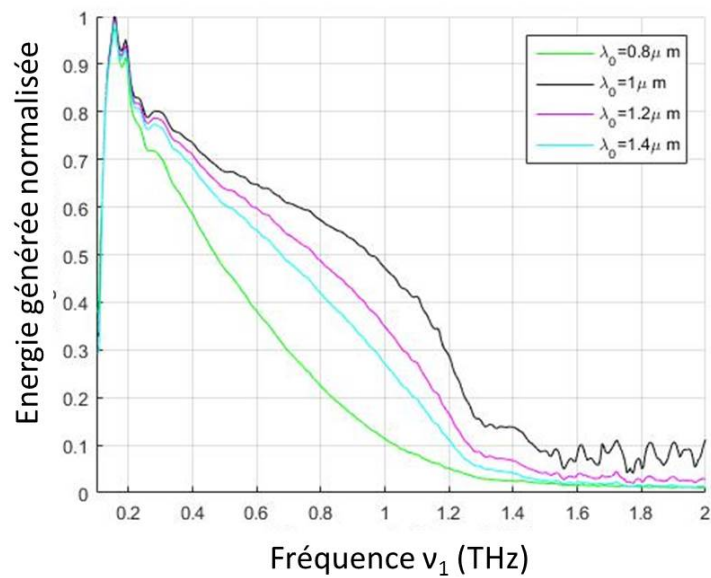


FIGURE 4.15 – Calcul du spectre de l'énergie THz générée entre 0.1 et 2 THz par OR de type V dans un cristal de BNA taillé dans la direction y et de 2,09 mm d'épaisseur. Les valeurs de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption utilisées sont celles obtenues par spectroscopie TDS et présentées Figure 3.51.

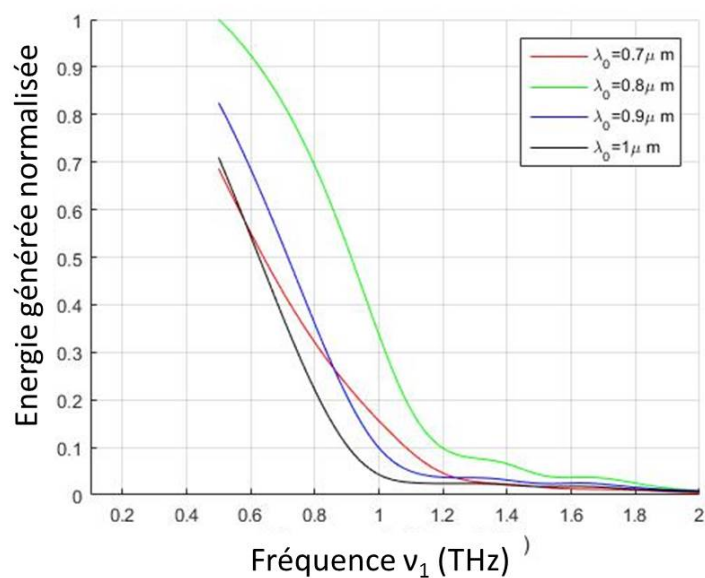


FIGURE 4.16 – Calcul du spectre de l'énergie THz générée entre 0.1 et 2 THz par OR de type V dans un cristal de BNA taillé dans la direction y et de 2,09 mm d'épaisseur. Les valeurs de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption utilisées sont celles obtenues dans [28].

D'après la Figure 4.15, le spectre de l'énergie THz générée entre 0,1 et 2 THz par le cristal de BNA ne dépasse jamais 1,2 THz quelle que soit la longueur d'onde centrale λ_0 considérée. La valeur de l'énergie THz générée est maximale quelle que soit la fréquence THz ν_1 si la longueur d'onde centrale est égale à 1 μm . En revanche, d'après la Figure 4.16, le spectre de l'énergie THz s'étend jusque 1,6 THz et la valeur de l'énergie générée est toujours maximale si la longueur d'onde centrale incidente est égale à 0,8 μm .

Nous avons pu déterminer précisément la longueur d'onde centrale pour laquelle la valeur de l'énergie générée est toujours maximale en calculant l'aire sous la courbe des Figures 4.15 et 4.16. Cette aire est représentée par la Figure 4.17. Nous avons utilisé successivement les valeurs de l'indice de réfraction n_z et du coefficient d'absorption α_z déterminés d'après les mesures FTIR de [28] entre 0,5 et 20 THz (voir courbe bleue) et d'après nos mesures de spectroscopie TDS entre 0,1 et 2 THz (voir courbe noire).

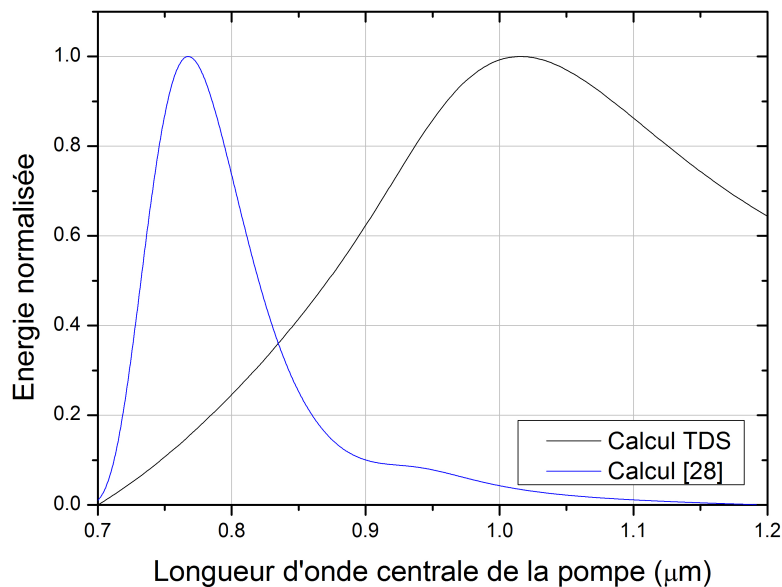


FIGURE 4.17 – Evolution de l'énergie totale générée par OR en fonction de la longueur d'onde centrale λ_0 de la pompe.

D'après la Figure 4.17, la longueur d'onde centrale optimale est égale à 0,76 μm si les valeurs de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption THz de [28] sont utilisées, alors qu'on obtient une longueur d'onde autour de 0,98 μm en utilisant les résultats de TDS du Chapitre 3. La différence entre ces deux résultats montre à nouveau l'importance de l'étude expérimentale qui permettrait de déterminer la méthode permettant d'obtenir les indices de réfraction principaux les plus fiables dans le domaine THz pour un calcul du spectre de l'énergie THz polychromatique générée qui soit capable de prédire au plus près les expériences.

4.2 Etude expérimentale

Nous rendons compte dans cette section des résultats que nous avons obtenus avec quatre expériences.

4.2.1 Génération d'une onde THz polychromatique

4.2.1.1 Montage 1 : expérience utilisant un laser femtoseconde centré à $\lambda_0=0,8 \mu\text{m}$

Ce montage est accessible au laboratoire IMEP-LAHC du Bourget du Lac. La Figure 4.18 rend compte de ses caractéristiques principales et de celles de la source femtoseconde utilisée.

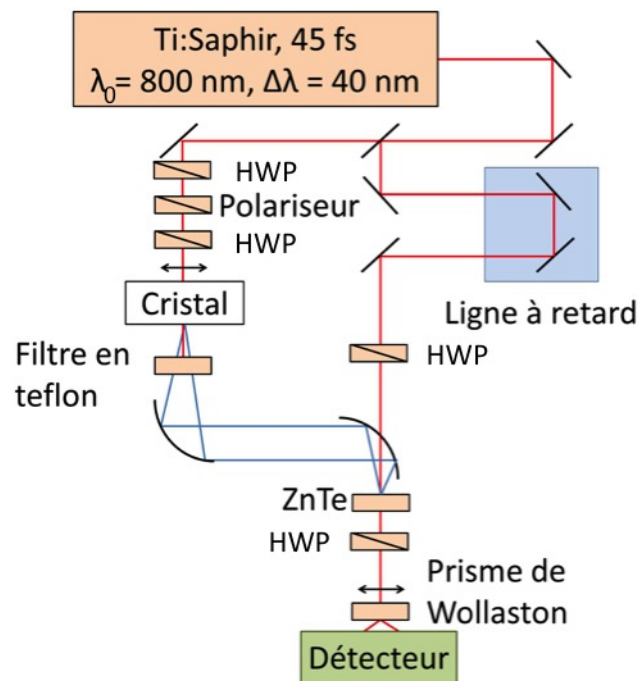


FIGURE 4.18 – Schéma du montage 1 utilisé pour la génération d'une onde THz polychromatique par OR.

La source est un laser Ti :Sapphire amplifié, de durée d'impulsion 45 fs et de taux de répétition de 1 kHz. Sa longueur d'onde est fixe et centrée à $\lambda_0 = 0,8 \mu\text{m}$. Sa largeur spectrale à mi-hauteur est $\Delta\lambda = 40 \text{ nm}$.

Le faisceau émis par la source de pompe est séparé en deux parties par une lame séparatrice. Un des faisceaux traverse un système d'atténuation composé d'une lame demi-onde et d'un polariseur. Il passe ensuite à travers une seconde lame demi-onde qui permet de contrôler l'orientation de la polarisation rectiligne incidente en fonction du type de DFG choisi. Le cristal est placé au point de focalisation d'une lentille convergente.

Un filtre en téflon coupe le faisceau incident après le cristal. En revanche, il transmet le signal THz généré (traits bleus) qui est collimaté par un premier miroir parabolique, puis focalisé dans un cristal de ZnTe par un second miroir parabolique. Pendant ce temps, le second faisceau femtoseconde, qui a été réfléchi par la lame séparatrice, traverse une ligne à retard, puis est focalisé dans le même cristal de ZnTe que l'impulsion THz.

La détection exploite à la fois le cristal de ZnTe suivi d'une lame demi-onde (HWP), d'une lentille convergente, d'un prisme de Wollaston, et d'un détecteur NIRVANA composé de deux photodiodes. La focalisation simultanée de l'impulsion THz et de l'impulsion femtoseconde induit un effet électro-optique (EO) dans le cristal de ZnTe qui produit alors un déphasage entre les deux composantes de polarisation orthogonales de l'impulsion femtoseconde se propageant dans le cristal de ZnTe. Ce déphasage est proportionnel au champ électrique de l'impulsion THz sur la durée de l'impulsion femtoseconde. Le prisme de Wollaston va séparer les deux composantes orthogonales déphasées, qui vont chacune être focalisée dans l'une des deux photodiodes du détecteur NIRVANA. Pour bien séparer ces deux composantes, la lame demi-onde contrôle l'orientation de la polarisation rectiligne qui arrive sur le prisme de Wallaston, de sorte qu'elle est transmise parallèlement à un axe principal du prisme. La différence entre les deux signaux mesurés par le détecteur est proportionnelle au champ électrique THz. Une ligne à retard peut faire varier le chemin optique de l'impulsion femtoseconde afin qu'elle puisse échantillonner l'impulsion THz de la même façon que dans l'expérience de spectroscopie TDS présentée au Chapitre 3. La transformée de Fourier de l'impulsion THz ainsi reconstituée donne accès au spectre de l'énergie de l'impulsion THz générée dans le cristal étudié.

Avec le montage de la Figure 4.18, nous avons mesuré le spectre de l'énergie de l'onde THz polychromatique dans quatre lames usinées pour tous les types associés à un coefficient effectif non nul. Nous avons orienté la polarisation incidente rectiligne selon l'une des deux orientations orthogonales correspondant aux deux axes principaux du cristal qui sont localisés à sa surface. Il s'agit de :

- la lame de BGSe orientée selon l'axe x avec un état de polarisation rectiligne orienté selon l'axe y pour étudier simultanément les OR type I et IV dont les coefficients effectifs associés sont égaux à χ_{zyy} et χ_{yyy} respectivement, vec un état de polarisation selon l'axe z pour les types V et VIII avec les coefficients effectifs χ_{zzz} et χ_{yzz} respectivement ;
 - la lame de BNA orientée selon l'axe y avec la polarisation orientée selon l'axe z (Type V et coefficient effectif χ_{zzz}) ;
 - la lame de KTP orientée selon l'axe x avec la polarisation orientée selon l'axe z (type V et coefficient effectif χ_{zzz}) ;
 - la lame CSP, orientée dans le plan (x, y) dans la direction ($\theta = 90^\circ, \phi = 45^\circ$), et la polarisation orientée dans le même plan (type VIII et coefficient effectif $-\frac{1}{2}\chi_{zxy} - \frac{1}{2}\chi_{zyx}$) ;
- L'épaisseur de toutes ces lames est donnée dans le Tableau 3.5.

Les résultats de ces mesures sont donnés dans les Figures 4.21 à 4.23. Chaque figure montre deux courbes accolées qui sont l'impulsion THz échantillonnée en fonction du temps à gauche, et le spectre de l'énergie THz générée en fonction de la fréquence THz à droite. Les caractéristiques de l'échantillon et l'orientation de la polarisation de l'onde femtoseconde incidente sont rappelées en encart des deux courbes pour chaque figure.

Notons que nous avons dû augmenter la sensibilité du détecteur NIRVANA pour certains cristaux étudiés. En effet, l'énergie THz générée est faible pour les cristaux de KTP et BGSe comparé à celle générée dans les cristaux de CSP et BNA. Cette augmentation de la sensibilité se traduit par une augmentation du bruit sur les figures 4.19, 4.20 et 4.22.

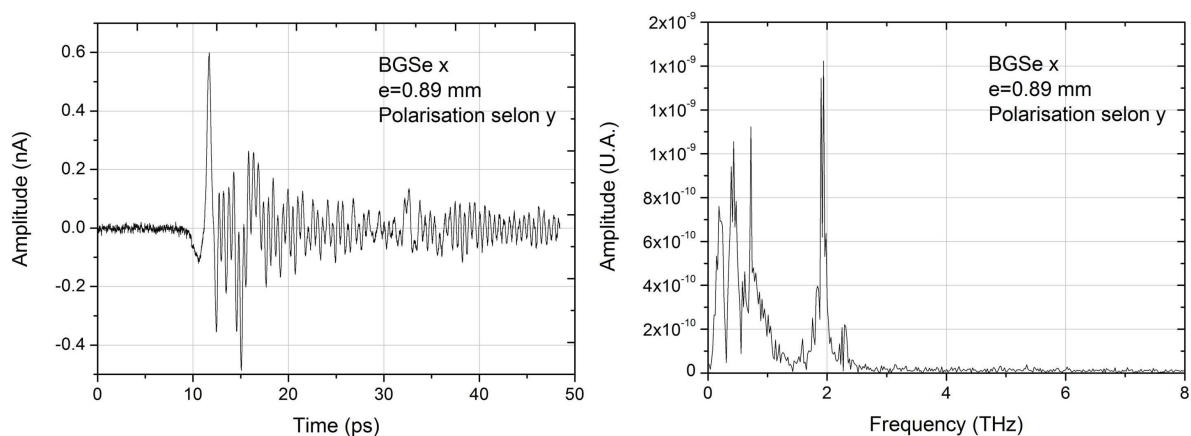


FIGURE 4.19 – Impulsion (gauche) et spectre (droite) de l'onde THz générée dans un cristal de BGSe orienté selon l'axe x et avec une polarisation incidente selon l'axe y.

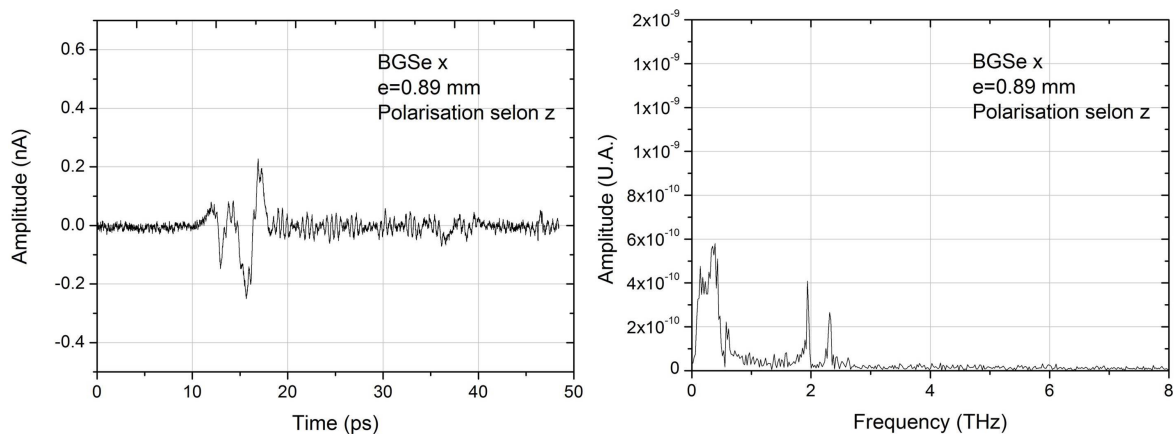


FIGURE 4.20 – Impulsion (gauche) et spectre (droite) de l'onde THz générée dans un cristal de BGSe orienté selon l'axe x et avec une polarisation incidente selon l'axe z.

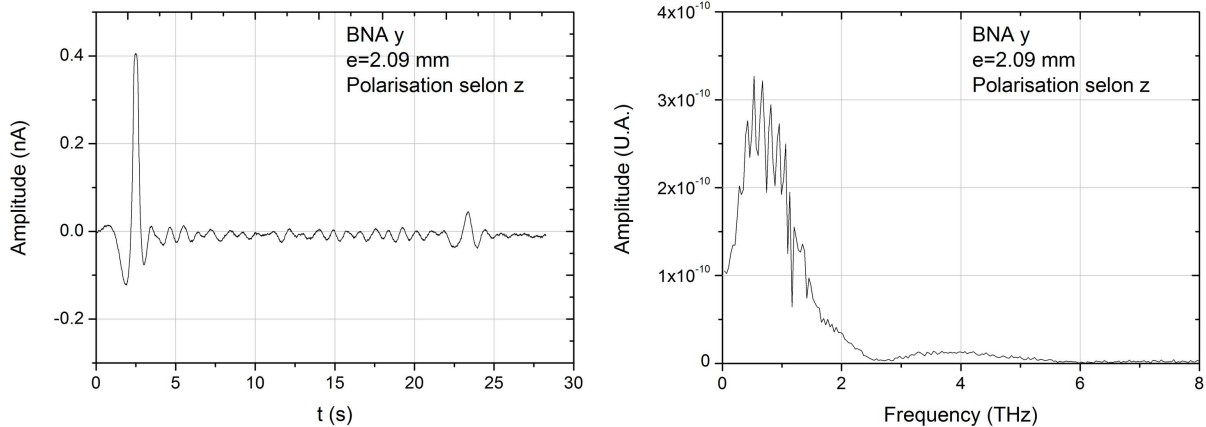


FIGURE 4.21 – Impulsion (gauche) et spectre (droite) de l'énergie THz générée dans un cristal de BNA orienté selon l'axe y et avec une polarisation incidente selon l'axe z.

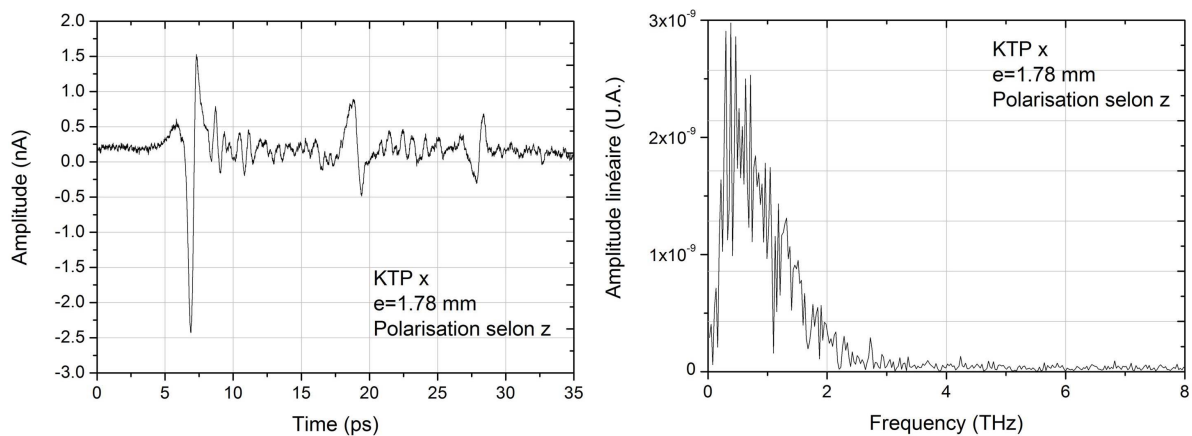


FIGURE 4.22 – Impulsion (gauche) et spectre (droite) de l'onde THz générée dans un cristal de KTP orienté selon l'axe x et avec une polarisation incidente selon l'axe z.

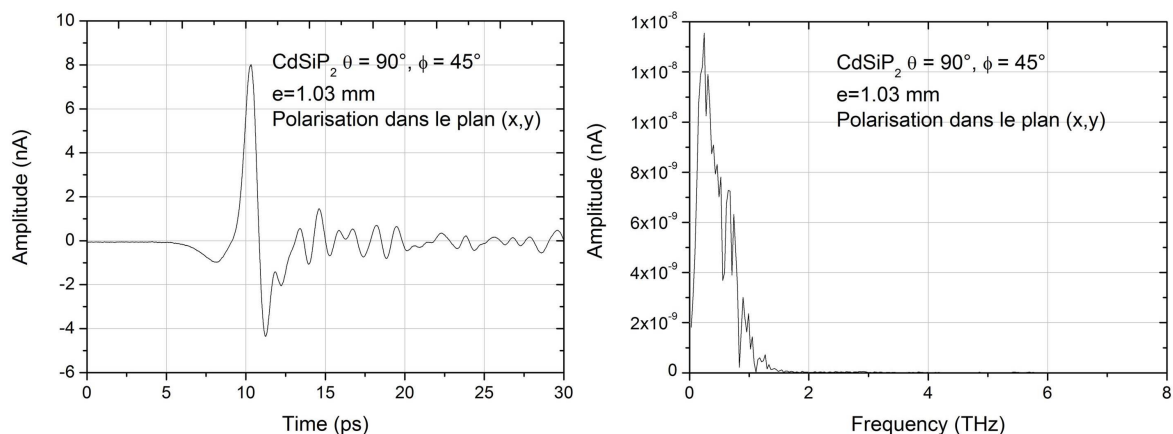


FIGURE 4.23 – Impulsion (gauche) et spectre (droite) de l'onde THz générée dans un cristal de CSP orienté à 45° dans le plan (x,y) et avec une polarisation incidente dans le plan (x,y).

- Nous avons obtenu un signal dans le cristal de BGSe pour les deux directions de polarisation. Cela est dû au fait que le tenseur $\chi^{(2)}$ de BGSe présente beaucoup d'éléments non nuls, et donc que le coefficient effectif pour les deux états de polarisation est non nul. Pour une polarisation incidente selon y, les deux éléments de tenseur χ_{zyy} et χ_{yyy} sont sollicités, et pour une polarisation selon z, il s'agit de χ_{zzz} et χ_{yzz} . L'énergie générée est très faible en-dessous de 1 THz. Cependant, nous avons observé un pic de génération très fort autour de 1,95 THz, suivi d'un second pic autour de 2,3 THz. Ces deux fréquences correspondent exactement aux bandes de transparences de BGSe d'après la Figure 3.20. La diminution de l'absorption autour de 1,9 et 2,3 THz permet à l'onde générée de se propager et de sortir du cristal à ces fréquences. Ce résultat est très intéressant pour les applications, car une raie d'absorption de l'eau se situe à 1.91 THz.

- Le spectre de BNA s'étend jusqu'à 2,5 THz, puis remonte entre 3 et 5 THz, avec un maximum à 4 THz. D'après les calculs effectués dans le chapitre précédent, la condition optimale n'a pas été atteinte pour une pompe centrée à $0,8 \mu\text{m}$. La puissance THz générée est la plus forte, comparée aux autres cristaux.

- Le spectre généré dans KTP s'étend jusqu'à 2 THz, avec des énergies faibles.

- Enfin, le spectre généré dans CSP s'étend jusqu'à 1 THz, pour une polarisation dans le plan (x,y).

4.2.1.2 Montage 2 : expérience avec un laser femtoseconde centré à λ_0 accordable

Nous avons pu compléter le travail réalisé avec le montage 1 en mettant en place à l'Institut Néel une expérience basée sur un laser femtoseconde de longueur d'onde centrale λ_0 accordable et comprise entre $0,5 \mu\text{m}$ à $2,6 \mu\text{m}$. Le schéma du montage 2 est décrit Figure 4.24.

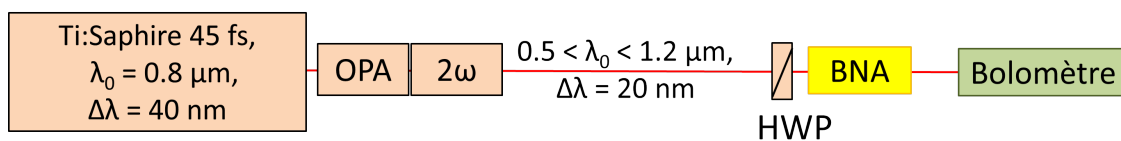


FIGURE 4.24 – Schéma du montage 2 utilisé pour la génération d'une onde THz polychromatique par OR.

Un laser Ti :Saphire génère un faisceau avec une durée d'impulsion de 60 femtosecondes, un taux de répétition de 1 kHz, une longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 0.810 \mu\text{m}$ et une largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda = 40 \text{ nm}$. Ce faisceau vient pomper un OPA (Optical Parametric Amplificator) constitué d'un cristal de BBO. : la longueur signal générée est accordable de $1,160$ à $1,820 \mu\text{m}$ et celle du complémentaire (idler) de $1,820$ à $2,600 \mu\text{m}$. Un autre cristal de BBO placé après l'OPA permet de générer la longueur d'onde moitié du signal ou du complémentaire, soit une longueur d'onde accordable entre $0,910$ et $1,300 \mu\text{m}$, et entre $0,580$ et $0,910 \mu\text{m}$ respectivement.

Pour utiliser la longueur d'onde signal, un miroir dichroïque a permis de couper le complémentaire. Avec deux jeux de deux miroirs dichroïques hautement réfléchissants sur la large bande spectrale $0,730 - 0,930 \mu\text{m}$ et $0,930 - 1,150 \mu\text{m}$, nous avons utilisé la longueur d'onde complémentaire doublée.

Pour les mesures réalisées ici, nous avons décidé d'étudier le type V dans le cristal de BNA orienté selon l'axe y. D'après les calculs donnés par la Figure 4.17, un maximum du spectre de l'énergie THz générée est attendu autour de $0,76 \mu\text{m}$ en utilisant les indices THz provenant de [28]; il est attendu $0,98 \mu\text{m}$ en utilisant nos résultats de TDS. Pour réaliser cette étude expérimentale, nous avons sélectionné la longueur d'onde signal accordable puis la longueur d'onde complémentaire doublée.

Le faisceau accordable sélectionné a été injecté dans la lame de BNA usinée selon l'axe y avec une épaisseur $1,80 \text{ mm}$. La polarisation incidente a été orientée selon l'axe z de manière à ce que le coefficient effectif soit égal à χ_{zzz} . Le faisceau incident est coupé à la sortie de la lame par un filtre en polyéthylène transparent dans le domaine THz, et l'énergie totale est détectée par un bolomètre commercialisé par QMC Instrument. Nous n'avons pas de moyen de mesurer le spectre de l'énergie THz générée.

Le résultat de l'évolution de l'énergie totale normalisée en fonction de la longueur d'onde centrale λ_0 que nous avons mesurée est donné dans la Figure 4.25. Cette mesure a été limitée par l'énergie générée par l'OPA et le cristal doubleur. Effectivement, nous n'avons pas réussi à générer une énergie THz suffisante qui puisse être détectée avec le bolomètre pour des longueurs d'onde centrales λ_0 inférieures à $1,250 \mu\text{m}$, et supérieures à $1,050 \mu\text{m}$, ces longueurs d'onde étant issues de la longueur d'onde doublée. Cette limitation a créé un trou dans nos mesures entre les deux longueurs d'onde précédentes, qui est symbolisé sur la Figure 4.25 par une zone grise.

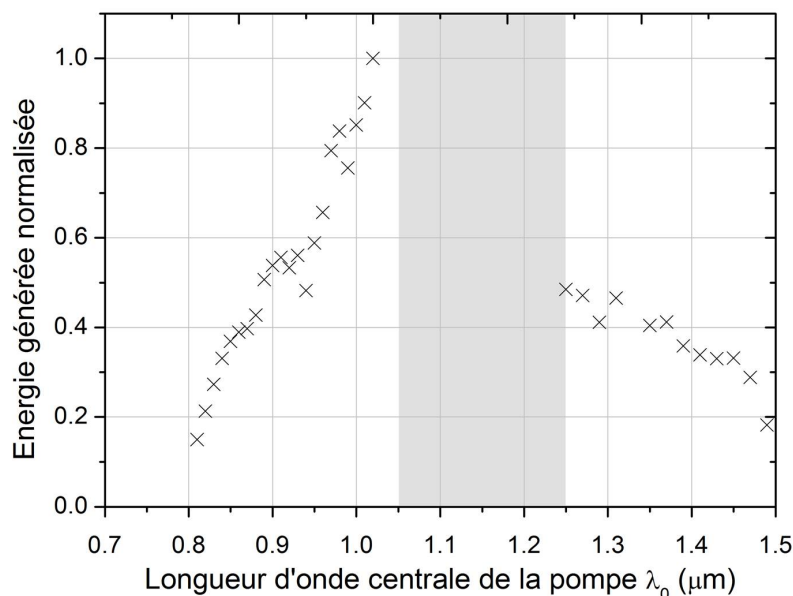


FIGURE 4.25 – Evolution, en fonction de la longueur d'onde centrale de la pompe, de l'énergie totale THz générée par OR de type V dans une lame de BNA taillée selon x.

Une comparaison entre le résultat expérimental de la Figure 4.25 et le calcul théorique de la Figure 4.17 est proposée dans la Figure 4.26. Elle permet de constater que notre mesure est plus proche du résultat théorique obtenu en utilisant l'indice de réfraction principal n_z que nous avons déterminé par la spectroscopie TDS plutôt que celui déterminé par la spectroscopie FTIR de [28].

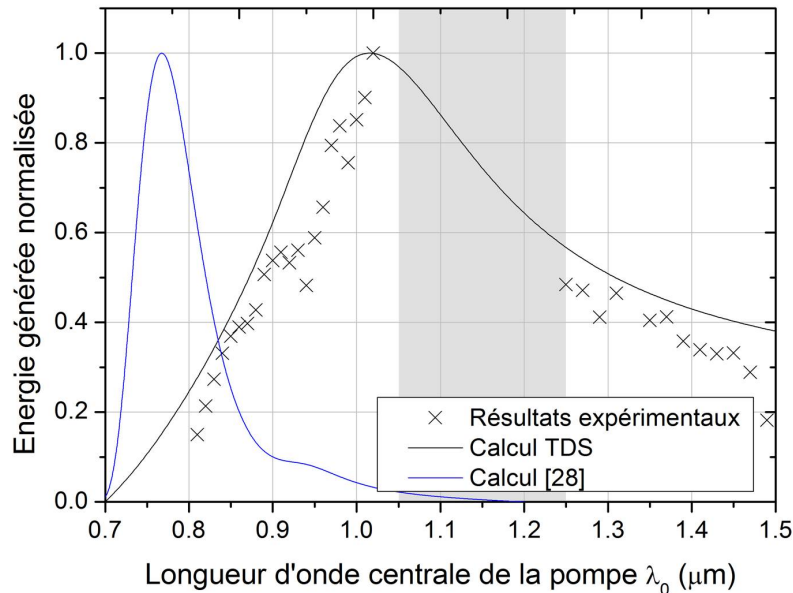


FIGURE 4.26 – Comparaison entre l'énergie totale THz générée par OR de type V dans une lame de BNA usinée selon l'axe y , selon qu'elle est mesurée ou calculée avec n_z issu de nos mesures de spectroscopie TDS ou des mesures de spectroscopie FTIR de [28].

4.2.2 Génération d'une onde THz monochromatique accordable

4.2.2.1 Montage 3 : expérience avec un laser picoseconde qui émet à $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$ et λ_2 accordable

Avec un troisième montage mis en place à l'Institut Néel, nous avons étudié la génération d'une onde THz monochromatique à partir de la DFG de type V dans le cristal de BNA usiné selon l'axe y . Les deux ondes monochromatiques incidentes sont émises par une source laser picoseconde commercialisée par Excel technology et Light Conversion. Leur longueur d'onde est $\lambda_3 = 1,064 \mu\text{m}$ et λ_2 accordable. Le schéma du montage 3 est donné par la Figure 4.27.

Le premier étage de la source picoseconde est un laser Nd :YAG de durée d'impulsion 15 ps, de fréquence de répétition 10 Hz et de longueur d'onde égale à $1,064 \mu\text{m}$. Il est séparé en deux parties par une lame séparatrice. 25% de l'énergie à $1,064 \mu\text{m}$ est triplée en fréquence ; le faisceau ainsi généré à $0,355 \mu\text{m}$ servant de laser de pompe d'un générateur paramétrique optique (OPG) qui génère une onde continuellement accordable entre 0,4 et $2,4 \mu\text{m}$. La seconde partie à $1,064 \mu\text{m}$ (75 % de l'énergie initiale) passe à travers une ligne à retard puis est recombinaisonnée colinéairement avec le faisceau accordable de l'OPG.

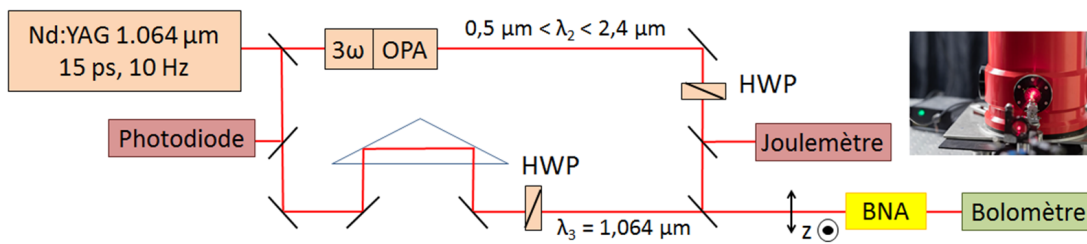


FIGURE 4.27 – Schéma du montage 3 utilisant un laser picoseconde qui émet deux longueurs d'onde monochromatiques pour la génération par DFG d'une onde THz monochromatique accordable.

En régime picoseconde, la superposition des deux faisceaux incidents dans le cristal doit être optimisée minutieusement, à la fois spatialement et temporellement. Cela a été fait dans un cristal test de KTP de 1,6 mm d'épaisseur.

Le recouvrement temporel a été optimisé en manipulant la ligne à retard insérée sur le trajet du faisceau à 1,064 μm. La longueur d'onde accordable a été réglée à 1,057 μm pour un processus de SFG de type II ($\frac{1}{\lambda_1^{xy}} + \frac{1}{\lambda_2^z} = \frac{1}{\lambda_3^{xy}}$) dans un cristal de KTP. Ce dernier génère 0,530 μm d'après le principe de conservation de l'énergie. Le rendement de conversion doit être maximum car le cristal de KTP est taillé dans la direction d'accord de phase associée ($\theta = 90^\circ$, $\phi = 23.5^\circ$). Il est suivi d'une fibre connectée à un spectromètre RedTide USB650 de chez OceanOptics. La Figure 4.28 montre le spectre des faisceaux enregistré à la sortie du cristal de KTP.

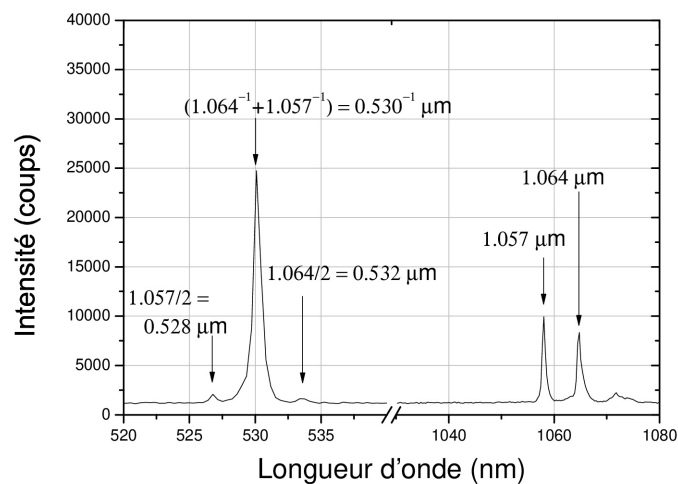


FIGURE 4.28 – Spectre obtenu avec le montage 3 à la sortie du cristal de KTP après l'optimisation des recouvrements spatial et temporel entre les deux faisceaux incidents.

La Figure 4.28 rend compte de deux pics localisés à 1,064 et 1,057 μm qui proviennent des faisceaux incidents. Deux autres pics situés à 0,532 et 0,5285 μm correspondent aux deuxièmes harmoniques des faisceaux précédents, générés en hors accord de phase. La longueur d'onde à 0,530 μm provient de la SFG type II entre le 1,064 et le 1,057 μm,

aussi obtenus en accord de phase. Le nombre de coups observé est maximal à $0,530 \mu\text{m}$ quand le recouvrement spatial et temporel entre les deux faisceaux incidents à $1,064$ et $1,057 \mu\text{m}$ est optimal, l'orientation de leur polarisation rectiligne étant aussi optimisée.

Une fois le réglage précédent effectué, nous avons étudié l'énergie THz générée par un processus de DFG type V dans le cristal de BNA. La lame utilisée est usinée selon l'axe y avec une épaisseur de $0,86 \text{ mm}$. L'orientation de la polarisation des faisceaux incidents a été ajustée parallèlement à l'axe z du cristal grâce à deux lames demi-ondes (HWP). Une lame est insérée sur le trajet de chaque faisceau, celle du faisceau accordable étant achromatique.

L'énergie de l'onde THz générée est détectée par le bolomètre commercialisé par QMC Instrument qui fonctionne refroidi à l'Helium. Une photo du bolomètre est donnée en encart de la Figure 4.27. Ce détecteur est inséré juste derrière la lame de BNA après un filtre en polyéthylène transparent dans le domaine THz.

Une photodiode et un molelectron prélèvent une partie de l'énergie des deux faisceaux incidents à $\lambda_3=1,064 \mu\text{m}$ et λ_2 . Les deux énergies incidentes sont mesurées simultanément avec l'énergie de l'onde THz monochromatique. Le rapport de l'énergie THz sur le produit des énergies incidentes permet d'accéder au rendement de conversion. Sa variation mesurée en fonction de la longueur d'onde accordable λ_2 est représentée sur la Figure 4.29.

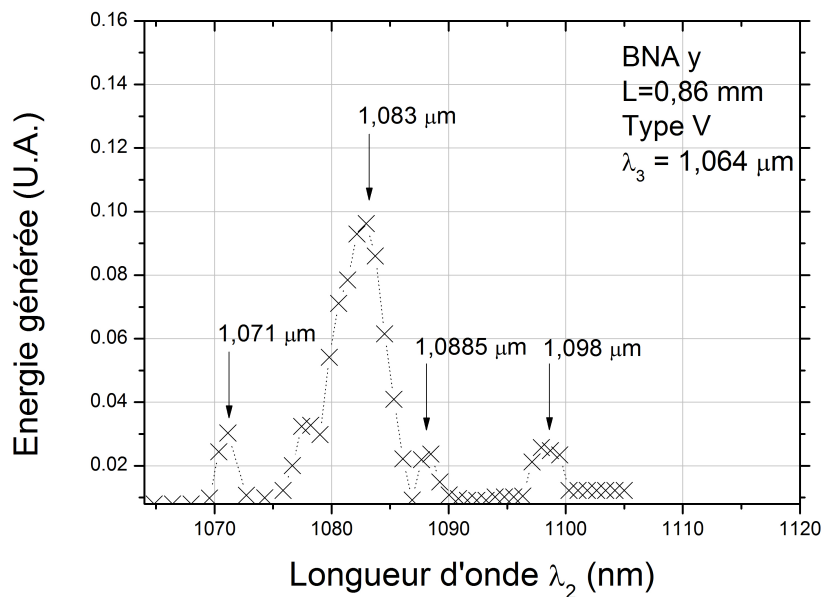


FIGURE 4.29 – Evolution du rendement de conversion de l'onde THz générée par DFG de type V en fonction de la longueur d'onde incidente accordable λ_2 dans une lame de BNA de $0,86 \text{ mm}$ d'épaisseur taillée selon l'axe y.

La Figure 4.29 montre des maxima d'énergie de l'onde THz générée pour plusieurs valeurs de λ_2 . Ils sont repérés par la valeur entre parenthèses de leur fréquence THz. Ces maxima apparaissent pour $\lambda_2=1,071 \mu\text{m}$ ($\nu_1=1,88 \text{ THz}$), $\lambda_2=1,083 \mu\text{m}$ ($\nu_1=4,94 \text{ THz}$), $\lambda_2=1,0885 \mu\text{m}$ ($\nu_1=6,4 \text{ THz}$) et $\lambda_2=1,098 \mu\text{m}$ ($\nu_1=8,9 \text{ THz}$).

La Figure 4.30 montre pour comparaison le spectre de transmission du cristal de BNA dans le domaine THz, qui est représenté ici en fonction de la longueur d'onde λ_2 . Il a été enregistré par spectroscopie FTIR et montré dans la Figure 3.24 en fonction de la fréquence THz. Cela permet de constater que le rendement de conversion de l'onde THz monochromatique accordable représenté par des points expérimentaux suit parfaitement le spectre de transmission du cristal représenté par une ligne continue.

Cependant, la Figure 4.30 ne montre plus de maxima en-dessous du pic à 1,88 THz (correspondant à $\lambda_2 = 1,071 \mu\text{m}$). Pour les autres valeurs de longueurs d'onde λ_2 localisées en-dessous de $1,071 \mu\text{m}$, le rendement de conversion généré est donc très faible, voir nul, alors que ce n'est pas le cas pour la transmission et que ce résultat est en contradiction avec le calcul effectué dans le Chapitre 3 qui a montré que la longueur de cohérence associée devrait être très grande entre 0.2 et 2 THz (voir figure 4.14).

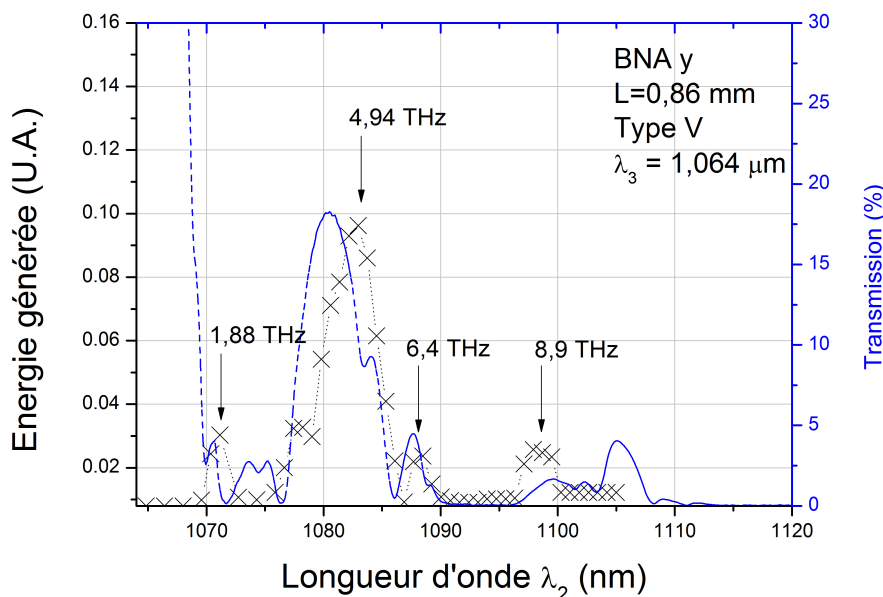


FIGURE 4.30 – Comparaison entre le rendement de conversion de l'onde THz monochromatique accordable générée par DFG de type V et le spectre de transmission pour le cristal de BNA taillé selon l'axe y avec une épaisseur de 0,86 mm.

Si les résultats de la Figure 4.30 sont prometteurs, les maxima ne permettent pas de signer une condition d'accord de phase. Il faudrait pour cela faire varier la valeur des deux longueurs d'onde incidentes afin de réaliser une cartographie expérimentale que l'on pourra comparer aux cartographies théoriques des Figure 4.13 et 4.14.

4.2.2.2 Montage 4 : expérience avec un laser nanoseconde qui émet deux longueurs d'onde accordables

4.2.2.2.1 DUAL-PPLN-OPO pompé à $1.064 \mu\text{m}$

Afin de pouvoir faire varier la valeur des deux longueurs d'onde incidentes, nous avons mis en place un montage 4 couplé à un DUAL-PPLN-OPO. C'est une source de laboratoire développée à l'Institut Néel qui émet simultanément deux faisceaux de longueurs d'onde accordables dont la valeur peut être ajustée indépendamment [32] [113]. Elle est unique en son genre. Elle est constituée de deux OPOs pompés simultanément à la longueur d'onde $\lambda_p = 1,064 \mu\text{m}$ par un même faisceau émis par le même laser Nd :YAG de durée d'impulsion 5 ns et de fréquence de répétition 10 Hz. Chaque faisceau pompe traverse une lame demi-onde suivie d'un prisme de Glan-Taylor pour régler son énergie continument.

Chaque OPO de la source exploite les propriétés de quasi-accord de phase dans un cylindre partiel de 5%MgO :PPLN dont le plan correspond au plan diélectrique (x,y), comme représenté Figure 4.31 (a). La valeur de l'énergie de pompe est ajustée entre 4 et 8 mJ avec le système d'atténuation, de manière à ne pas dépasser le seuil de dommage optique des cristaux de 5%MgO :PPLN. Le cylindre partiel est inséré entre deux miroirs plans qui constitue la cavité optique de l'OPO. Il est monté sur une rotation motorisée afin de contrôler son orientation au degré prêt lors de sa rotation.

La courbe d'accord de phase de chaque OPO est représentée Figure 4.31 (b) [114].

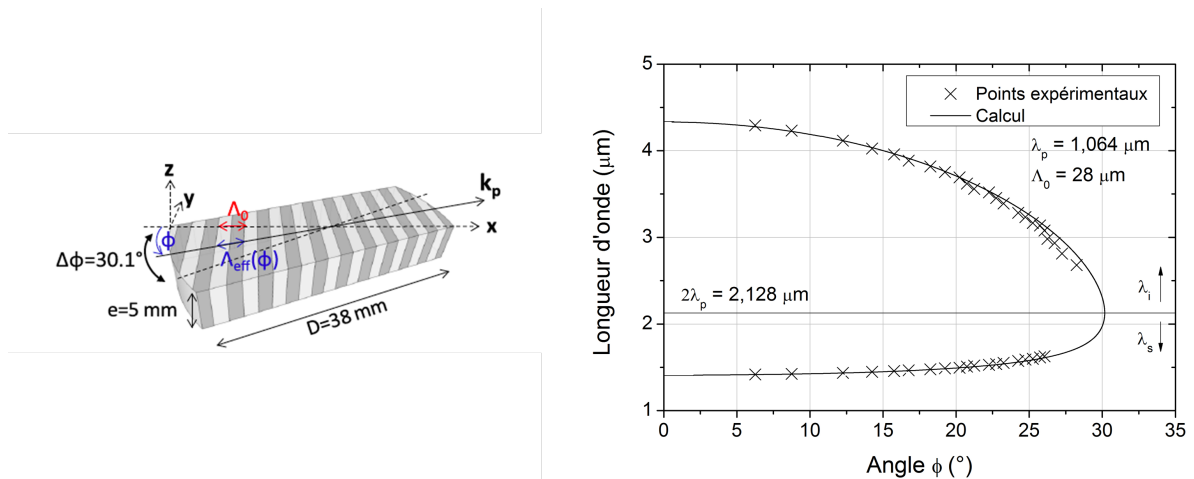


FIGURE 4.31 – Schéma d'un cylindre partiel d'un cristal de 5%MgO :PPLN en quasi-accord de phase (a) et courbe d'accord de phase d'OPO théorique (trait plein) et expérimentale (croix) en fonction de l'angle ϕ (b) [114].

D'après la Figure 4.31 (b), le DUAL-PPLN-OPO émet simultanément deux longueurs d'onde indépendantes et continument accordables entre $1,4 \mu\text{m}$ et $4,4 \mu\text{m}$. Un filtre inséré après chaque OPO permet de sélectionner la longueur d'onde signal de $1,4 \mu\text{m}$ à $2,128 \mu\text{m}$ ou idler accordable entre $4,4 \mu\text{m}$ et $2,128 \mu\text{m}$. Une lame demi-onde placée après chaque OPO permet d'ajuster la polarisation de chaque faisceau généré de manière indépendante.

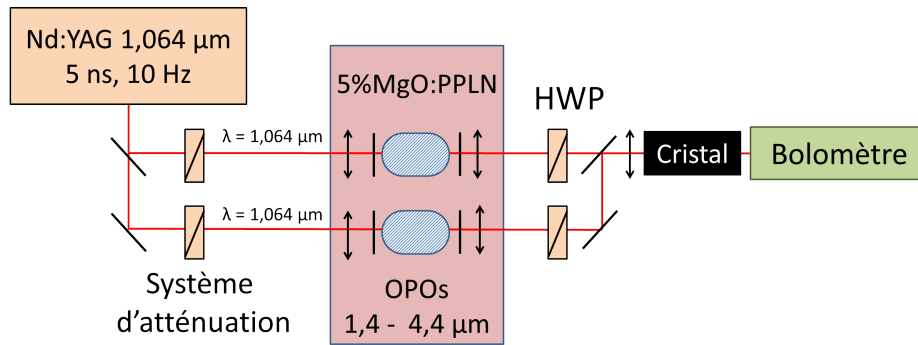


FIGURE 4.32 – Montage 4 qui utilise deux longueurs d’onde accordables entre 1,4 et 4,4 μm émises par un DUAL-PPLN-OPO nanoseconde.

Nous avons combiné colinéairement le faisceau émis par chaque OPO à l’aide de miroirs plans et d’une lame semi-transparente comme représenté sur la Figure 4.32. Mais avec les deux ondes incidentes ainsi constituées, nous n’avons rien détecté avec notre bolomètre. Notons que cela est en accord avec les Figures 4.13 et 4.14 qui prédisent la génération d’une onde entre 1,5 et 20 THz associée à une longueur de cohérence supérieure au millimètre, si les deux longueurs d’onde incidentes λ_2 et λ_3 sont comprises entre 0,7 et 1,4 μm .

Notons que d’après les calculs des Figures 4.1 et 4.4, le DUAL-PPLN-OPO devrait permettre de générer une onde THz monochromatique à partir de la DFG type VII dans les cristaux de YCOB et LBO. En effet d’après les calculs, le domaine d’accordabilité des ondes incidentes correspond à celui accessible avec le DUAL-PPLN-OPO. Mais nous n’avons pas eu le temps d’étudier ces cristaux durant la thèse. Ce travail sera mené prochainement.

D’autre part, en doublant les longueurs d’onde émises par chaque OPO, le domaine d’accordabilité des longueurs d’ondes générées devient compatible avec celui des deux ondes incidentes calculé pour la génération d’une onde THz par DFG type V dans BNA (voir Figure 4.33).

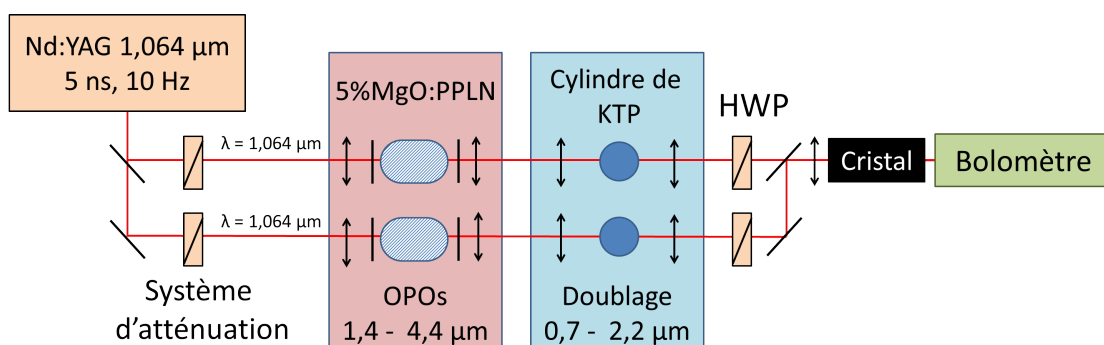


FIGURE 4.33 – Schéma de la source DUAL-PPLN-OPO doublée en fréquence pour l’étude de la génération d’une onde THz monochromatique par DFG avec deux longueurs d’onde incidentes accordables entre 0,7 et 1,4 μm .

Nous avons considéré la SHG type II dans un cylindre de KTP dont le plan correspond au plan diélectrique (x,z) ($\phi=0^\circ$). Les conditions d'accord de phase sont données par la courbe de la Figure 4.34. Il s'agit de la longueur d'onde fondamentale λ_ω en fonction de l'angle d'accord de phase qui a été calculée en utilisant les équations de Sellmeier de [115].

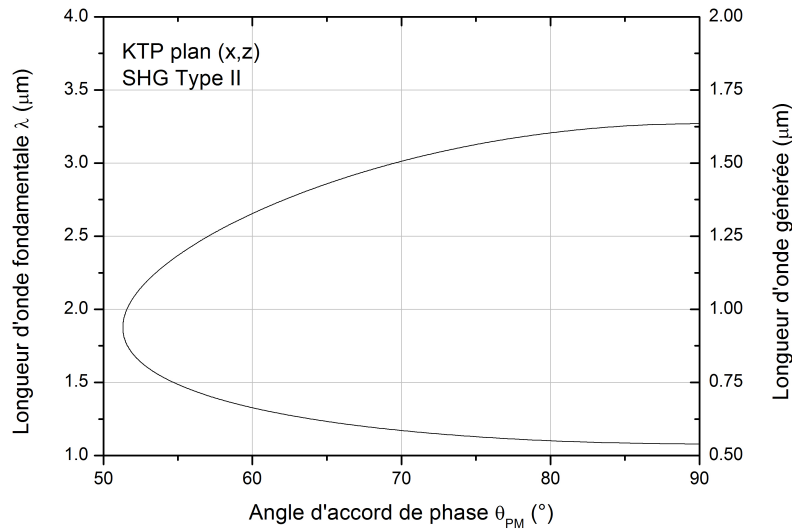


FIGURE 4.34 – Courbe d'accord de phase calculée pour la SHG type II dans le plan (x,z) de KTP en utilisant les équations de Sellmeier de [115].

Malheureusement, le rendement de conversion de SHG mesuré avec un pyromètre OPHIR PD300-TP à la sortie de chaque cylindre de KTP en fonction de la longueur d'onde générée variant entre 0,700 à 1,050 μm , chute continuellement à partir de 0,800 μm , et devient quasiment nulle au-dessus 1,020 μm , comme montré par la figure 4.35. Cette chute de l'énergie correspond à une longueur d'onde signal de l'OPO se rapprochant de la dégénérescence ($\lambda_i = \lambda_s = 2\lambda_p$) de la courbe d'accord de phase décrite par la Figure 4.31. Lorsqu'on se rapproche de cette dégénérescence, l'énergie chute, et le spectre généré par l'OPO s'élargit. Le doublage de la fréquence de ce faisceau par un cylindre de KTP n'est donc pas optimisé sur la largeur de ce spectre, ce qui conduit à des rendements de conversion très faible. Nous n'avons donc pas pu détecter avec notre bolomètre le moindre signal THz à la sortie du cristal de BNA en utilisant le montage de la Figure 4.33. Il a donc fallu trouver une autre solution.

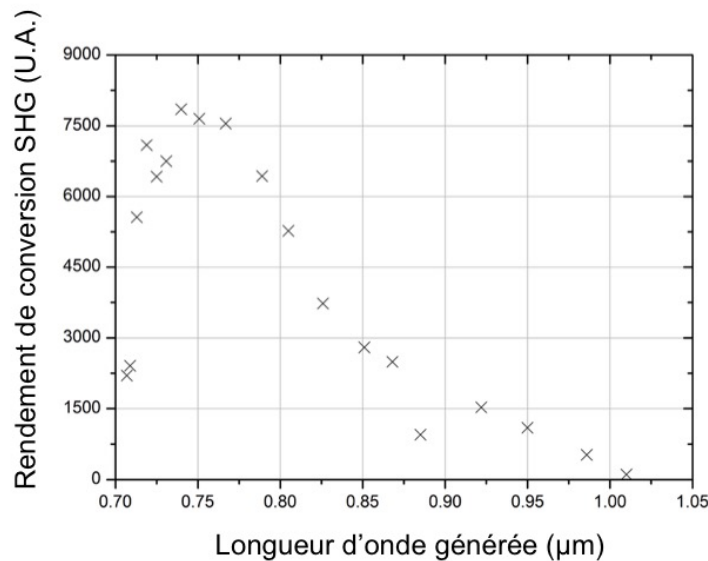


FIGURE 4.35 – Mesure du rendement de conversion de SHG à la sortie d’un cylindre de KTP en fonction de la longueur d’onde de second harmonique générée.

4.2.2.2 DUAL-KTP-OPO pompé à $0.532 \mu\text{m}$

Nous avons alors réfléchi à un nouveau montage couplé à une source nanoseconde plus énergétique qui émet deux longueurs d’onde λ_2 et λ_3 accordables indépendamment entre $0,7$ et $1,4 \mu\text{m}$, et permettant de générer une énergie telle que la génération d’une onde THz dans BNA soit détectable par un bolomètre.

Nous proposons d’utiliser une source constituée de deux OPOs pompés simultanément à $\lambda_p = 0.532 \mu\text{m}$ et le montage envisagé est représenté par la Figure 4.36. Cette longueur d’onde de pompe est accessible avec un cristal doubleur de KTP à partir d’un processus de SHG de l’onde fondamentale émise par le laser Nd :YAG de durée d’impulsion 5 ns et de fréquence de répétition 10 Hz déjà présenté. Il faut mettre en place une lame séparatrice qui constitue deux faisceaux de pompe à $\lambda_p = 0.532 \mu\text{m}$ et insérer sur leur chemin une lame demi-onde suivie d’un prisme de Glan-Taylor pour régler l’énergie continument.

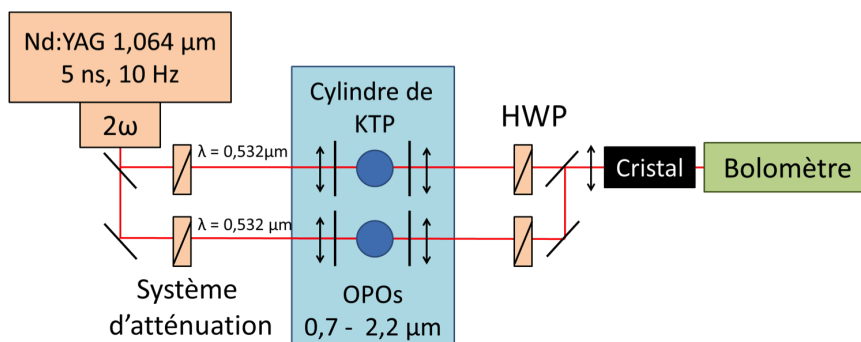


FIGURE 4.36 – Schéma du montage expérimental envisagé pour la génération d’une onde THz par DFG dans BNA avec deux longueurs d’onde incidentes énergétiques et accordables entre $0,7$ et $2 \mu\text{m}$.

L'idée est de considérer également KTP pour réaliser les OPO. La courbe d'accord de phase de chaque OPO a été calculée en utilisant des équations de Sellmeier issues de [115]. Elle est représentée dans la Figure 4.37 ; il s'agit de la variation de la valeur de la longueur d'onde signal et complémentaire générée par l'OPO en fonction de l'angle d'accord de phase θ_{PM} dans le plan (x,z) de KTP. D'après la Figure 4.37, pour $49,5^\circ < \theta < 90^\circ$, la longueur d'onde complémentaire vérifie $2,23 \mu\text{m} < \lambda_s < 1,092 \mu\text{m}$ et la longueur d'onde signal $0,7 \mu\text{m} < \lambda_i < 1,036 \mu\text{m}$.

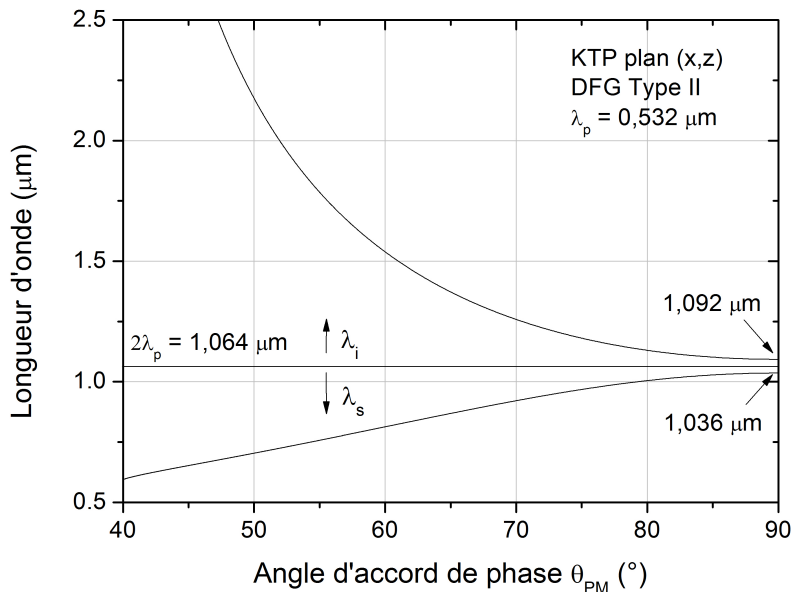


FIGURE 4.37 – Courbe d'accord de phase d'OPO de type II en fonction de l'angle θ dans le plan (x,z) de KTP.

La mise en place de la source DUAL-KTP-OPO, sa caractérisation et son utilisation sont en cours.

4.3 Bilan

Dans ce dernier chapitre, nous avons réalisé des études théoriques et expérimentales de la génération d'une onde THz polychromatique et monochromatique dans des cristaux non linéaires parmi ceux que nous avons sélectionnés dans le Chapitre 3.

En utilisant les spectres de transmission dans le visible, proche-infrarouge et THz, les indices de réfraction dans le domaine visible et proche infrarouge et sur la gamme 0,1-2 THz, ainsi que les coefficients d'absorption sur cette même gamme, nos calculs ont permis de déterminer des possibilités pour la génération d'ondes THz sur cette gamme.

Des conditions d'accord de phase ou des longueurs de cohérence supérieures à l'épaisseur des lames usinées ont été trouvées pour beaucoup de cristaux sélectionnés. C'est la

cas des cristaux de YCOB, BNA, LBO, CdSe, ZnO, CSP, AGS et GaP pour la génération d'une onde THz monochromatique à partir de deux longueurs d'ondes incidentes qui couvrent leur domaine de transparence visible-proche infrarouge. Nous avons également donné un exemple de calcul du spectre de l'énergie générée d'une onde THz polychromatique dans le cristal de BNA, .

Nous avons présenté aussi quatre montages expérimentaux couplés à des lasers de durées d'impulsion différentes. La plupart de ces montages ont pu être utilisés pour la génération d'une onde THz dans le cristal de BNA par DFG de type V.

L'utilisation de deux lasers femtosecondes, l'un caractérisé par une impulsion centrée à $0,8 \mu\text{m}$ et l'autre à une longueur d'onde centrale accordable, a permis dans d'observer la génération d'une onde THz polychromatique dans plusieurs cristaux .

Avec l'impulsion centrée à $0,8 \mu\text{m}$, un large spectre THz a été généré dans les cristaux de BGSe, BNA, KTP et CSP ,et les énergies correspondantes se sont avérées particulièrement fortes dans les cristaux de BNA et CSP. Avec le laser femtoseconde accordable, nous avons pu réaliser une génération THz dans BNA , ce premier résultat nécessitant encore des investigations plus poussées qui sont en cours de réalisation.

Les deux autres montages ont été mis en place pour générer une onde THz monochromatique accordable.

Le premier, couplé à un laser picoseconde, a permis de déterminer les valeurs des longueurs d'onde incidentes permettant de générer une onde THz avec un rendement optimal lorsque l'une des deux longueur d'onde de pompe est fixée à $1,064 \mu\text{m}$, dans le cristal de BNA. Ce montage expérimental a l'inconvénient d'avoir l'une des deux longueurs d'onde fixe.

Le dernier montage, qui utilise un laser nanoseconde permettant d'émettre deux longueurs d'onde accordables et ajustables indépendamment l'une de l'autre, est en cours de développement. Cependant, nos premiers essais dans le cristal de BNA avec les montages envisagés ont permis d'identifier une nouvelle source qu'il reste à mettre en place. Les expériences à venir permettront de statuer sur sa capacité à émettre deux longueurs d'onde incidentes accordables dans le domaine déterminé par nos calculs, et qui serait assez énergétique pour permettre la détection des ondes THz avec un bolomètre.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette thèse a porté sur l'étude de la génération d'une onde THz par Différence de Fréquences (DFG) dans les cristaux non linéaires.

Dans le premier chapitre, nous avons rappelé les éléments de théorie permettant de décrire les propriétés optiques linéaires et non linéaires dans les cristaux. Nous avons notamment développé le processus de DFG, qui peut conduire à la génération d'une onde THz monochromatique ou polychromatique selon les cas.

Le second chapitre présente l'état de l'art de l'étude des cristaux non linéaire pour la génération THz. Nous avons décrit les techniques permettant de déterminer les spectres de transmission dans le domaine THz. Il s'agit de la spectroscopie FTIR et de la TDS. Nous avons également expliqué comment cette dernière permet de déterminer simultanément les indices de réfraction et les coefficients d'absorption principaux dans le domaine THz. A partir de ces résultats, nous avons calculé les longueurs de cohérence et les conditions d'accord de phase. Enfin, nous avons présenté un état de l'art non exhaustif sur les cristaux non linéaires ayant conduit à la génération d'onde THz, qu'elle soit monochromatique ou polychromatique. Cet état de l'art nous a permis de déterminer une méthodologie permettant d'étudier la génération THz dans tout cristal non linéaire. Nous avons développé et utilisé cette méthodologie, comme décrit dans les deux chapitres suivants.

Le troisième chapitre a porté sur la mesure des paramètres important pour la génération THz pour vingt et un cristaux non linéaires. Dans le domaine du visible et du proche infrarouge, ce qui correspond aux longueurs d'onde incidentes, nous avons étudié la littérature afin de déterminer les indices de réfraction, le spectre de transmission et le seuil de dommage optique de vingt cristaux. Dans le cas du cristal de BNA, nous avons considéré nos propres mesures. Nous avons prouvé que les équations de Sellmeier de BNA issues de la littérature n'étaient pas suffisamment précises pour effectuer des calculs d'accord de phase. A partir de la mesure des directions d'accord de phase sur un échantillon de BNA taillé sous forme de cylindre, nous avons affiné ces équations et pu effectuer des calculs plus fiables.

Dans le domaine THz, nous avons utilisé les techniques de spectroscopie FTIR et TDS afin de déterminer le spectre de transmission des 21 cristaux, de 0,1 à 20 THz. La TDS a également permis de déterminer les indices de réfraction et coefficients d'absorption principaux.

Le quatrième chapitre décrit les études de génération THz à partir des données spectroscopiques obtenues dans le troisième chapitre. Des calculs ont tout d'abord permis de faire ressortir huit cristaux, pour lesquels des longueurs de cohérences supérieures à 1 mm ont été calculées entre 0,1 et 2 THz. Il s'agit des cristaux de YCOB, BNA, LBO, CSP, AGS et GaP.

Au vu des résultats des calculs, nous avons présenté quatre montages expérimentaux pour la génération THz par DFG : deux montages permettant la génération d'une onde monochromatique accordable, et deux montages permettant la génération d'une onde polychromatique.

Concernant la génération polychromatique, le premier montage est caractérisé par une longueur d'onde incidente centrée à $0,8 \mu\text{m}$. Nous l'avons utilisé pour étudier les cristaux de BGSe, BNA, KTP et CSP, pour lesquels nous avons obtenu un signal. Les cristaux de BNA et de CSP ont conduit aux plus fortes énergies. Dans le cristal de BGSe, nous avons observé un pic d'énergie autour de 2 THz. Afin de compléter les résultats obtenus avec ce premier montage, nous avons préparé un second montage expérimental basé sur un laser femtoseconde dont la longueur d'onde centrale est accordable entre $0,730$ et $2,600 \mu\text{m}$. Nous avons notamment pu améliorer l'énergie générée avec le cristal de BNA. L'optimisation de ce montage est en cours, et permettra de scanner la longueur d'onde centrale de l'impulsion incidente afin d'améliorer les résultats puis de faire les mesures sur tous les échantillons que nous avons sélectionnés.

Concernant la génération monochromatique, nous avons généré un rayonnement THz dans le cristal de BNA en régime picoseconde avec une pompe fixe à $1,064 \mu\text{m}$. Plusieurs optima ont été observés à 1,88 THz, 4,94 THz, 6,40 THz et 8,9 THz. Enfin, nous avons proposé une expérience basée sur deux OPO permettant de réaliser la cartographie complète de la génération THz, pour des longueurs d'onde de pompe variant de $0,7$ à $4,4 \mu\text{m}$. Si le banc de mesure permettant de couvrir la gamme $1,4 - 4,4 \mu\text{m}$, basé sur des OPO constitués de cylindres partiels de 5%MgO :PPLN est déjà en place, il n'a pas permis pour l'instant de détecter une onde THz. Le second banc de mesure, basé sur deux OPO utilisant des cylindres de KTP permettant de générer des faisceaux dont chacune des deux longueurs d'onde est accordable sur la gamme $0,7 - 2,2 \mu\text{m}$. La mise en place de cette expérience est en cours, et devrait conduire très prochainement aux premiers résultats d'accord de phase dans le cristal de BNA. Nous avons d'ailleurs reçu très récemment de nouveaux échantillons de BNA. Afin de vérifier la reproductibilité de nos travaux sur ce cristal, nous allons alors effectuer de nouvelles mesures dans le domaine visible et proche infrarouge. Cela permettra notamment de déterminer la reproductibilité, de même que la qualité des cristaux et donc du procédé de croissance cristalline.

Les résultats obtenus dans ce travail de thèse sont des résultats fondamentaux et

préliminaires. Effectivement, nous avons permis de sélectionner, parmi les 21 cristaux initiaux, les cristaux les plus prometteurs pour la génération d'une onde THz à forte intensité. Cependant, à l'heure actuel, il ne nous est pas possible de déterminer lequel de ces cristaux est celui qui sera utilisé dans les dispositifs futurs. Pour cela, la mesure des rendements de conversion et des conditions d'accord de phase est nécessaire, et fera l'objet d'études ayant pour but de poursuivre ce travail de thèse.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] G. Ducournau, P. Szriftgiser, F. Pavanello, E. Peytavit, M. Zaknoune, D. Bacquet, A. Beck, T. Akalin, and J.-F. Lampin. THz communications using photonics and electronic devices : the race to data-rate. *Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves*, 36 :198-220, 2015.
- [2] J. Valdamis, G. Mourou, and C. Gobel. Subpicosecond electrical sampling. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 19, No. 4 :664–667, 1983.
- [3] D. H. Auston and K. P. Cheung. Coherent time-domain far-infrared spectroscopy. *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 2, No. 4 :606–612, 1985.
- [4] M. van Exter, C. Fattinger, and D. Grischkowsky. Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor. *Optics Letters*, Vol. 14, No. 20 :1128–1130, 1989.
- [5] H.-B. Liu, Y. Chen, and X.-C. Zhang. Characterization of anhydrous and hydrated pharmaceutical materials with THz time-domain spectroscopy. *Journal of Pharmaceutical Sciences*, Vol. 96, No. 4 :927–934, 2007.
- [6] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira, and D. Zimdars. THz imaging and sensing for security applications-explosives, weapons and drugs. *Institute of Physics Publishing*, 20 :S266–S280, 2005.
- [7] Y. C. Shen, T. Lo, P. F. Taday, B. E. Cole, W. R. Tribe, and M. C. Kemp. Detection and identification of explosives using terahertz pulsed spectroscopic imaging. *Applied Physics Letters*, 86, 241116 :1–3, 2005.
- [8] F. Ospald, W. Zouaghi, R. Beigang, C. Matheis, J. Jonuscheit, B. Recur, J.-P. Guillet, P. Mounaix, W. Vleugels, P. Venegas Bosom, L. Vega Gonzalez, I. Lopez, R. M. Edo, Y. Sternberg, and M. Vandewal. Aeronautics composite material inspection with a terahertz time-domain spectroscopy system. *Optical Engineering*, 53(3), 031208 :1–14, 2014.
- [9] I. Duling and D. Zimdars. Revealing hidden defects. *Nature Photonics*, Vol. 3 :630–632, 2009.
- [10] A. J. Fitzgerald, E. Berry, N. N. Zinovev, G. C. Walker, M. A. Smith, and J. M. Chamberlain. An introduction to medical imaging with coherent terahertz frequency radiation. *Physics in Medicine and Biology*, 47 :R67–R84, 2002.

- [11] J. Y. Park, H. J. Choi, G.-E. Nam, K.-S. Cho, and J.-H. Son. In vivo dual-modality terahertz/magnetic resonance imaging using superparamagnetic iron oxide nanoparticles as a dual contrast agent. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, Vol. 2, No 1 :93–98, 2011.
- [12] J.-P. Guillet, M. Roux, K. Wang, X. Ma, F. Fauquet, H. Balacey, B. Recur, F. Darraq, and P. Mounaix. Art painting diagnostic before restoration with terahertz and millimeter waves. *Journal of Infrared, Millimeter and TeraHertz Waves*, 38(4), 2017.
- [13] Z.W. Zhang, K.J. Wang, Y. Lei, Z.Y. Zhang, Y.M. Zhao, C.Y. Li, A. Gu, N.C. Shi, K. Zhao, H.L. Zhan, and C.L. Zhang. Non-destructive detection of pigments in oil painting by using terahertz tomography. *Science China Physics, Mechanics and Astronomy*, Vol. 58, No. 12, 2015.
- [14] CNRS Le Journal. De nouvelles ondes à la vue perçante. <https://lejournal.cnrs.fr/articles/de-nouvelles-ondes-a-la-vue-perçante>, Mars 2015.
- [15] Zhong K., Shi W., Xu D., Liu P., Wang Y., Mei J., Yan C., Fu S., and Yao J. Optically pumped terahertz sources. *Science China Technological Sciences*, Vol. 60, No. 12 :1801–1818, 2017.
- [16] M. Serena Vitiello, G. Scalari, B. Williams, and P. De Natale. Quantum cascade lasers : 20 years of challenges. *Optics Express*, Vol. 23, No. 4 :5167–5182, 2015.
- [17] M. A. Belkin and F. Capasso. New frontiers in quantum cascade lasers : high performance room temperature terahertz sources. *Physics Scripts*, 90, 118002 :1–13, 2015.
- [18] S.-H. Yang, M. R. Hashemi, C. W. Berry, and M. Jarrahi. 7.5photoconductive emitters with three-dimensional plasmonic contact electrodes. *IEEE Transactions on TeraHertz Science and Technology*, Vol. 4, No. 5 :575–581, 2014.
- [19] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics*. New York : W. A. Benjamin, 1965.
- [20] B. Boulanger and J. Zyss. 1.7. Nonlinear optical properties. *International Tables for Crystallography*, Vol. D, chapter 1.7 :178–219, 2006.
- [21] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, fourth edition edition, 1970.
- [22] J. Q. Yao and T. S. Fahlen. Calculations of optimum phase match parameters for the biaxial KTiOPO₄. *Journal of Applied Physics*, 55 (1) :65–68, 1984.
- [23] A. Yariv and P. Yeh. *Optical waves in crystals : propagation and control of laser radiation*. New York : Wiley, 1984.
- [24] A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R. U. A. Khan, and P. Günter. Generation of terahertz pulses through optical rectification in organic DAST crystals : theory and experiment. *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 23, No. 9 :1822–1835, 2006.
- [25] B. Boulanger and G. Marnier. Field factor calculation for the study of the relationships between all the 3-wave non-linear optical interactions in uniaxial and biaxial crystals. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 3 :8327–8350, 1991.

- [26] R. C. Miller. Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals. *Applied Physics Letters*, 5(1) :17–19, 1964.
- [27] Brucker. Vertex-80 FT-IR Spectrometer. Brochure.
- [28] K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, and H. Ito. Optimized terahertz-wave generation using BNA-DFG. *Optics Express*, Vol. 17, No. 17 :14832–14838, 2009.
- [29] F. Garet. Spectroscopie dans le domaine thz. Formation THz-TDS, 4-6 juillet 2017, Le Bourget du lac.
- [30] L. Duvillaret, F. Garet, and J.-L. Coutaz. A reliable method for extraction of material parameters in terahertz Time-domain Spectroscopy. *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics*, Vol. 2, No. 3 :3399–3402, 1996.
- [31] W. L. Bond. Measurement of the refractive indices of several crystals. *Journal of Applied Physics*, 36, 1674, 1965.
- [32] Vincent Kemlin. *Parametric infrared generation : from crystals to devices*. PhD thesis, Grenoble INP, 2013.
- [33] Y. Petit, P. Segonds, and B. Boulanger. Monoclinic crystal optics. *Invited Paper in Laser and Photonics Reviews*, DOI 10.1002/lpor.201200078 :1–18, 2013.
- [34] T. Notake, K. Nawata, H. Kawamata, T. Matsukawa, F. Qi, and H. Minamide. Development of an ultra-widely tunable DFG-THz source with switching between organic nonlinear crystals pumped with a dual-wavelength BBO optical parametric oscillator. *Optics Express*, Vol. 20, No. 23 :25850–25857, 2012.
- [35] M. Fujiwara, M. Maruyama, M. Sugisaki, H. Takahashi, S. Aoshima, R. Cogdell, and H. Hashimoto. Determination of the d-tensor components of a single crystal of N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 45, No. 29 :1528–1530, 2006.
- [36] S. Ohno, K. Miyamoto, H. Minamide, and H. Ito. New method to determine the refractive index and the absorption coefficient of organic nonlinear crystals in the ultra-wideband THz region. *Optics Express*, Vol. 18, No. 16 :17306–17312, 2010.
- [37] F. Pan, G. Knöpfle, Ch. Bosshard, S. Follonier, R. Spreiter, M. S. Wong, and P. Günter. Electro-optic properties of the organic salt 4-N,N-dimethylamino-4'-N-methylstilbazolium tosylate. *Applied Physics Letter*, 69 (1) :13–15, 1996.
- [38] K. Suizu, K. Miyamoto, T. Yamashita, and H. Ito. High-power terahertz-wave generation using DAST crystal and detection using mid-infrared powermeter. *Optics Letters*, Vol. 32, No. 19 :2885–2887, 2007.
- [39] M. Shalaby, C. Vicario, K. Thirupugalmani, S. Brahadeeswaran, and C. P. Hauri. Intense THz source based on BNA organic crystal at Ti :sapphire wavelength. *Optics Letters*, Vol. 41, No. 8 :1777–1780, 2016.
- [40] K. Miyamoto, H. Minamide, M. Fujiwara, H. Hashimoto, and H. Ito. Widely tunable terahertz-wave generation using an N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal. *Optics Letters*, Vol. 33, No. 3 :252–254, 2008.
- [41] K. Kawase, T. Hatanaka, H. Takahashi, K. Nakamura, T. Taniuchi, and H. Ito. Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal by dual signal-wave parametric oscillation of periodically poled lithium niobate. *Optics Letters*, Vol. 25, No. 23 :1714–1716, 2000.

- [42] P. Liu, D. Xu, Y. Li, X. Zhang, Y. Wang, J. Yao, and Y. Wu. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal DSTMS. *EPL*, 106, 60001 :1–5, 2014.
- [43] J. E. Schaar, K. L. Vodopyanov, and M. M. Fejer. Intracavity terahertz-wave generation in a synchronously pumped optical parametric oscillator using quasi-phase-matched GaAs. *Optics Letters*, Vol. 32, No. 10 :1284–1286, 2007.
- [44] J. E. Schaar, K. L. Vodopyanov, P. S. Kuo, M. M. Fejer, X. Yu, A. Lin, J. S. Harris, D. Bliss, C. Lynch, V. G. Kozlov, and W. Hurlbut. Terahertz sources based on intracavity parametric down-conversion in quasi-phase-matched gallium arsenide. *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics*, Vol. 14, No. 2 :354–362, 2008.
- [45] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Kimura, and K. Saito. Frequency-tunable high-power terahertz wave generation from GaP. *Journal of applied physics*, Vol. 93, No. 8 :4610–4615, 2003.
- [46] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Kimura, and K. Saito. Tunable terahertz wave generation in the 3- to 7-THz region from GaP. *Applied Physics Letters*, Vol. 83, No. 2 :237–239, 2003.
- [47] T. Taniuchi and H. Nakanishi. Collinear phase-matched terahertz-wave generation in GaP crystal using a dual-wavelength optical parametric oscillator. *Journal of Applied Physics*, Vol. 95, No. 12 :7588–7591, 2004.
- [48] W. Shi and Y. J. Ding. Tunable terahertz waves generated by mixing two copropagating infrared beams in GaP. *Optics Letters*, Vol. 30, No. 9 :1030–1032, 2005.
- [49] I. Tomita, H. Suzuki, H. Ito, H. Takenouchi, K. Ajito, R. Rungsawang, and Y. Ueno. Terahertz-wave generation from quasi-phase-matched GaP for $1.55\mu\text{m}$ pumping. *Applied Physics Letters*, 88, 071118 :1–3, 2006.
- [50] E. B. Petersen, W. Shi, A. Chavez-Pirson, N. Peyghambarian, and A. T. Cooney. Efficient parametric terahertz generation in quasi-phase-matched GaP through cavity enhanced difference-frequency generation. *Applied Physics Letters*, 98, 121119 :1–3, 2011.
- [51] K. Saito, Y. Nagai, K. Yamamoto, K. Maeda, T. Tanabe, and Y. Oyama. Terahertz wave generation via nonlinear parametric process from ϵ -GaSe single crystals grown by liquid phase solution method. *Optics and Photonics Journal*, 4 :213–218, 2014.
- [52] J. Mei, K. Zhong, M. Wang, Y. Liu, D. Xu, W. Shi, Y. Wang, J. Yao, R. A. Norwood, and N. Peyghambarian. Widely-tunable high-repetition rate terahertz generation in GaSe with a compact dual-wavelength KTP OPO around $2\mu\text{m}$. *Optics Express*, Vol. 24, No. 20 :23368–23375, 2016.
- [53] A. Majkic, M. Zgonik, A. Petelin, M. Jazbinsek, B. Ruiz, C. Medrano, and P. Günter. Terahertz source at 9.4 THz based on a dual-wavelength infrared laser and quasi-phase matching in organic crystal OH1. *Applied Physics Letters*, 105, 141115 :1–4, 2014.
- [54] A. Brenier. Two-frequency pulsed YLiF_4 :Nd lasing out of the principal axes and THz generation. *Optics Letters*, Vol. 40, No. 19 :4496–4499, 2015.

- [55] P. Liu, X. Zhang, C. Yan, D. Xu, Y. Li, W. Shi, G. Zhang, X. Zhang, J. Yao, and Y. Wu. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal 2-(3-(4-hydroxystyryl)-5,5-dimethylcyclohex-2-enylidene)malononitrile. *Applied Physics Letters*, 108, 011104 :1–3, 2016.
- [56] W. Shi and Y. J. Ding. Continuously tunable and coherent terahertz radiation by means of phase-matched difference-frequency generation in zinc germanium phosphide. *Applied Physics Letters*, Vol. 83, No. 5 :848–850, 2003.
- [57] D. Creeden, J. C. McCarthy, P. A. Ketteridge, P. G. Schunemann, T. Southward, J. J. Komiak, and E. P. Chicklis. Compact, high average power, fiber-pumped terahertz source for active real-time imaging of concealed objects. *Optics Express*, Vol. 15, No. 10 :6478–6483, 2007.
- [58] K. Kuroyanagi, M. Fujiwara, H. Hashimoto, H. Takahashi, S. Aoshima, and Y. Tsuchiya. All organic terahertz electromagnetic wave emission and detection using highly purified N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystals. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 45, No. 5A :4068–4073, 2006.
- [59] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander. Terahertz optical rectification from <110> zinc-blende crystals. *Applied Physics Letters*, 64 (11) :1324–1326, 1994.
- [60] X. Xie, J. Xu, and X.-C. Zhang. Terahertz wave generation and detection from a CdTe crystal characterized by different excitation wavelengths. *Optics Letters*, Vol. 31, No. 7 :978–980, 2006.
- [61] X. Wu, S. Carbajo, K. Ravi, F. Ahr, G. Cirmi, Y. Zhou, O. D. Mücke, and F. X. Kärtner. Terahertz generation in lithium niobate driven by Ti :sapphire laser pulses and its limitations. *Optics Letters*, Vol. 39, No. 18 :5403–5406, 2014.
- [62] W. R. Huang, S.-W. Huang, E. Granados, K. Ravi, K.-H. Hong, L. E. Zapata, and F. X. Kärtner. Highly efficient terahertz pulse generation by optical rectification in stoichiometric and cryo-cooled congruent lithium niobate. *Journal of Modern Optics*, pages 1–8, 2014.
- [63] F. D. J. Brunner, A. Schneider, and P. Günter. Velocity-matched terahertz generation by optical rectification in an organic nonlinear optical crystal using a Ti :Sapphire laser. *Applied Physics Letters*, 94, 061119 :1–3, 2009.
- [64] B. N. Carnio, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, and A. Y. Elezzabi. Generation of broadband terahertz pulses via optical rectification in a chalcopyrite CdSiP₂ crystal. *Optics Letters*, Vol. 42, No. 19 :3920–3923, 2017.
- [65] B. Monoszlai, C. Vicario, M. Jazbinsek, and C. P. Hauri. High-energy terahertz pulses from organic crystals : DAST and DSTMS pumped at Ti :sapphire wavelength. *Optics Letters*, Vol. 38, No. 23 :5106–5109, 2013.
- [66] C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri. Spatiotemporal focusing dynamics of intense supercontinuum THz pulses. *Physical Review Letters*, 110, 123902 :1–5, 2013.
- [67] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri. Generation of 0,9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr :Mg₂SiO₄ laser. *Optics Letters*, Vol. 39, No. 23 :6632–6635, 2014.

- [68] M. Shalaby and C. P. Hauri. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness. *Nature Communication*, 6 :5976 :1–8, 2015.
- [69] M. Nagai, K. Tanaka, H. Ohtake, T. Bessho, T. Sugiura, T. Hirosumi, and M. Yoshida. Generation and detection of terahertz radiation by electro-optical process in GaAs using $1.56\mu\text{m}$ fiber laser pulses. *Applied Physics Letters*, Vol. 85, No. 18 :3974–3976, 2004.
- [70] G. Imeshev, M. E. Fermann, K. L. Vodopyanov, M. M. Fejer, X. Yu, J. S. Harris, D. Bliss, and C. Lynch. High-power source of THz radiation based on orientation-patterned GaAs pumped by a fiber laser. *Optics Express*, Vol. 14, No. 10 :4439–4444, 2006.
- [71] J.-H. Jeong, B.-J. Kang, J.-S. Kim, M. Jazbinsek, S.-H. Lee, S.-C. Lee, I.-H. Baek, H. Yun, J. Kim, Y. S. Lee, J.-H. Kim, F. Rotermund, and O.-P. Kwon. High-power broadband organic THz generator. *Scientific reports*, 3 :3200 :1–8, 2013.
- [72] F. D. J. Brunner, S.-H. Lee, O.-P. Kwon, and T. Feurer. THz generation by optical rectification of near-infrared laser pulses in the organic nonlinear optical crystal HMQ-TMS. *Optical Materials Express*, Vol. 4, No. 8 :1586–1592, 2014.
- [73] F. D. J. Brunner, O.-P. Kwon, S.-J. Kwon, M. Jazbinsek, A. Schneider, and P. Günter. A hydrogen-bonded organic nonlinear optical crystal for high-frequency terahertz generation and detection. *Optics Express*, Vol. 16, No. 21 :16496–16508, 2008.
- [74] C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri. Scaling submillimeter single-cycle transients toward megavolts per centimeter field strength via optical rectification in the organic crystal OH1. *Optics Letters*, Vol. 37, No. 5 :899–901, 2012.
- [75] A. G. Stepanov, C. Ruchert, J. Levallois, C. Erny, and C. P. Hauri. Generation of broadband THz pulses in organic crystal OH1 at room temperature and 10K. *Optical Materials Express*, Vol. 4, No. 4 :870–875, 2014.
- [76] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling. *Applied Physics Letters*, 69 (16) :2321–2323, 1997.
- [77] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. G. Roskos. Large-area electro-optic ZnTe terahertz emitter. *Optics Express*, Vol. 13, No. 14 :5353–5362, 2005.
- [78] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Banduler, 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. *Optics Express*, Vol. 15, No. 20 :13212–13220, 2007.
- [79] Elodie Boursier. *Generation paramétrique infrarouge dans les cristaux de $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ et BaGa_4Se_7* . PhD thesis, Grenoble INP, 2016.
- [80] T. M. Glushkova, D. F. Kiselev, I. B. Makhlina, M. M. Firsova, and A. P. Shtyrkova. Trigonal germanium dioxide : its preparation and optical parameters. *Moscow University : Physics Bulletin*, Vol. 47, No. 1 :55–58, 1992.
- [81] J. Yao, W. Yin, K. Feng, X. Li, D. Mei, Q. Lu, Y. Ni, Z. Zhang, Z. Hu, and Y. Wu. Growth and characterization of BaGa_4Se_7 crystal. *Journal of Crystal Growth*, Vol. 346, Issue 1, 2012.

- [82] E. Boursier, P. Segonds, B. Ménaert, V. Badikov, V. Panyutin, D. Badikov, V. Petrov, and B. Boulanger. Phase-matching directions and refined Sellmeier equations of the monoclinic acentric crystal BaGa_4Se_7 . *Optics Letters*, Vol. 41, No. 12 :2731–2734, 2016.
- [83] J. Luo, S. J. Fan, H. Q. Xie, K. C. Xiao, S. X. Qian, Z. W. Zhong, G. X. Qian, R. Y. Sun, and J. Y. Xu. Thermal and Nonlinear Optical Properties of $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$. *Crystal research and Technology*, 36 :1215–1221, 2001.
- [84] P. Segonds, B. Boulanger, B. Ménaert, J. Zaccaro, J. P. Salvestrini, M. D. Fontana, R. Moncorgé, F. Porée, G. Gadret, J. Mangin, A. Brenier, G. Boulon, G. Aka, and D. Pelenc. Optical characterizations of $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ and $\text{Nd}:\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$. *Optical Materials*, 29 :975–982, 2007.
- [85] T. Notake, K. Nawata, H. Kawamata, T. Matsukawa, and H. Minamide. Solution growth of high-quality organic n-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal for ultra-wideband tunable dfg-thz source. *Optical Materials Express*, Vol. 2, No. 2 :119–125, 2012.
- [86] C. Bernerd, P. Segonds, J. Debray, T. Notake, M. Koyama, H. Minamide, H. Ito, and B. Boulanger. Quadratic nonlinear optical properties of the organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) biaxial crystal. *Optics Letters*, Vol. 43, No. 8 :1818–1821, 2018.
- [87] B. Boulanger, J.P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy. Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched second-harmonic generation in a single KTP crystal cut as a sphere. *Journal of the Optical Society of America*, Vol. 14, No. 6 :1380–1386, Juin 1997.
- [88] H. Li, F. Zhou, X. Zhang, and W. Ji. Bound electronic Kerr effect and self focusing induced damage in second-harmonic-generation crystals. *Optics Communications*, 144 :75–81, 1997.
- [89] A.-P. Fève, B. Boulanger, O. Pacaud, I. Rousseau, B. Ménaert, and G. Marnier. Phase-matching measurements and Sellmeier equations over the complete transparency range of KTiOAsO_4 , RbTiOAsO_4 and CsTiOAsO_4 . *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 17, No. 5 :775–780, 2000.
- [90] Y. S. Iseledchik, A. I. Pisarevsky, A. L. Prosvirnin, V. V. Starshenko, and N. V. Svitanko. Nonlinear optical properties of the flux grown RbTiOPO_4 crystal. *Optical Materials*, 3 :237–242, 1994.
- [91] J. J. Carvajal, P. Segonds, A. Peña, J. Zaccaro, B. Boulanger, F. Diaz, and M. Aguilo. Structural and optical properties of $\text{RbTiOPO}_4:\text{Nb}$ crystals. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19 :116214 (15(pp)), 2007.
- [92] C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, and S. Lin. New nonlinear-optical crystal : LiB_3O_5 . *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 6, No. 4 :616–621, 1989.
- [93] H. Kong, J. Wang, H. Zhang, X. Yin, X. Cheng, Y. Lin, X. Hu, X. Xu, and M. Jiang. Growth and characterization of $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$ crystal. *Crystal research and Technology*, Vol. 39, No. 8 :686–691, 2004.
- [94] E. Boursier, P. Segonds, B. Boulanger, C. Felix, J. Debray, D. Jegouso, B. Ménaert, D. Roshchupkin, and I. Shoji. Phase-matching directions, refined Sellmeier

- equations, and second-order nonlinear coefficient of the infrared Langatate crystal $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$. *Optics Letters*, Vol. 39, No. 13 :4033–4036, 2014.
- [95] D. Zhang, Y. Kong, and J.-Y. Zhang. Optical parametric properties of 532-nm-pumped beta-barium-borate near the infrared absorption edge. *Optics Communications*, 184 :485–491, 2000.
- [96] D. E. Zelmon, D. L. Small, and D. Jundt. Infrared corrected Sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol. magnesium oxide-doped lithium niobate. *Journal of the Optical Society of America B*, Vol. 14, No. 12 :3319–3322, 1997.
- [97] S. Niedermeier, H. Schilinger, R. Sauerbrey, B. Adolph, and F. Bechstedt. Second-harmonic generation in silicon carbide polytypes. *Applied Physics Letters*, Vol. 75, No. 5 :1215–1221, 1999.
- [98] S. Singh, J. R. Potopowicz, L. G. Van Uitert, and S. H. Wemple. Nonlinear optical properties of hexagonal silicon carbide. *Applied Physics Letters*, Vol. 19, No. 3 :53–56, 1971.
- [99] A. Hildenbrand, C. Kieleck, A. Tyazhev, G. Marchev, G. Stöppler, M. Eichhorn, P. Schunemann, and V. Petrov. Laser damage studies of CdSiP_2 and ZnGeP_2 nonlinear crystals with nanosecond pulses at 1064 and 2090 nm. *Proceedings of SPIE-The international Society for Optical Engineering*, 2014.
- [100] V. Kemlin, P. Brand, B. Boulanger, P. Segonds, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, B. Ménaert, and J. Debray. Phase-matching properties and refined Sellmeier equations of the new nonlinear infrared crystal CdSiP_2 . *Optics Letters*, Vol. 36, No. 10 :1800–1802, 2011.
- [101] A. Harasaki and K. Kato. New data on the nonlinear optical constant, phase-matching and optical damage of AgGaS_2 . *Japanese Journal of Applied Physics*, pages 700–703.
- [102] United crystals. Unitedcrystals.com/KDPPProp.html.
- [103] F. Zernike Jr. Refractive indices of ammonium dihydrogen phosphate and potassium dihydrogen phosphate between 2000 and 1.5μ . *Journal of the optical Society of America*, Vol. 54, No. 10 :1215–1220, 1964.
- [104] D. A. Roberts. Dispersion equations for nonlinear optical crystals : KDP, AgGaSe_2 , and AgGaS_2 . *Applied Optics*, Vol. 35, No. 24 :4677–4688, 1996.
- [105] G. C. Bhar. Refractive index interpolation in phase-matching. *Applied Optics*, Vol. 15, No. 2 :305–307, 1976.
- [106] *Handbook of Optics, 3rd edition, Vol. 4*. McGraw-Hill, 2009.
- [107] Y. Li, F. Liu, Y. Li, L. Chai, Q. Xing, M. Hu, and C. Wang. Experimental study on GaP surface damage threshold induced by high repetition rate femtosecond laser. *Applied Optics*, Vol. 50, No. 13 :1958–1962, 2011.
- [108] Jr A. S. Barker. Dielectric dispersion and phonon line shape in gallium phosphide. *Physical Reviews*, Vol. 165, No. 3, 1968.
- [109] J. L. Smith. Surface damage of GaAs from 0.694- and $1.06\text{-}\mu$ laser radiation. *Journal of Applied Physics*, Vol. 43, No. 8 :3399–3402, 1972.

- [110] M. Fujiwara, K. Yanagi, M. Maruyama, M. Sugisaki, K. Kuroyanagi, H. Takahashi, S.-I. Aoshima, Y. Tsuchiya, A. Gall, and H. Hashimoto. Second order nonlinear optical properties of the single crystal of N-Benzyl-2-methyl-4-nitroaniline : anormalous enhancement of the d_{333} component and its possible origin. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 45, No. 11 :8676–8685, 2006.
- [111] *International Tables for crystallography, Volume D, Physical properties of crystals*. A. Authier, 2013.
- [112] B. Ménaert, J. Debray, J. Zaccaro, P. Segonds, and B. Boulanger. Bulk culinders and sheres : from shaping to use for linear and nonlinear optics. *Optical Materials Express*, Vol. 7, No. 8 :3017–3022, 2017.
- [113] Kemlin V., Jegouso D., Debray J., Segonds P., Boulanger B., Menaert B., Ishizuki H., Taira T., Mennerat G., Melkonian J.M., and Godard A. Dual-wavelength source from 5%MgO :PPLN cylinders devoted to the characterization of nonlinear crystals for infrared generation. *Optics Express*, Vol. 21, No. 23, 2013.
- [114] Kemlin V., Jegouso D., Debray J., Segonds P., Boulanger B., Menaert B., Ishizuki H., and Taira T. Widely tunable Optical Parametric Oscillator in a 5 mm-thick 5%MgO :PPLN partial cylinder. *Optics Letters*, Vol. 38, No. 6 :860–862, 2013.
- [115] K. Kato and E. Takaoka. Sellmeier and thermo-optic dispersion formulas for KTP. *Applied Optics*, Vol. 41, No. 24 :5040–5044, 2002.

ANNEXE A

$$k^\pm(\omega_3, \theta, \phi) - k^\pm(\omega_3 - \omega_1, \theta, \phi) = \omega_1 \frac{k^\pm(\omega_3) - k^\pm(\omega_3 - \omega_1)}{\omega_1} \quad (\text{A.1})$$

En effectuant le changement de variable $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, et pour des pulsations : $\omega_1 \ll \omega_2$, et donc : $\omega_2 \simeq \omega_0$, on obtient :

$$\omega_1 \frac{k^\pm(\omega_1 + \omega_2) - k^\pm(\omega_2)}{\omega_1} = \omega_1 \left. \frac{dk^\pm}{d\omega} \right|_{\omega_0} \quad (\text{A.2})$$

ANNEXE B

Groupe ponctuel	Cristaux	$\chi^{(2)}$
m (miroir selon x)	BGSe	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & \chi_{xxy} & \chi_{xyx} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zyz} & \chi_{zzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
m (miroir selon y)	YCOB	$\begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & \chi_{xxy} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & 0 & 0 \end{pmatrix}$
mm2	BNA, KTP, KTA, RTP, LBO	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
$\bar{4}2m$	AGS, CSP, ADP, KDP, DKDP	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{xyz} & \chi_{xzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxz} & \chi_{yza} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} & \chi_{zyx} \end{pmatrix}$
622	GeO ₂	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{xyz} & \chi_{xzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxz} & \chi_{yza} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} & \chi_{zyx} \end{pmatrix}$
6mm	CdSe, ZnO	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
32	LGT	$\begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & 0 & \chi_{xyz} & \chi_{xzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxz} & \chi_{yza} & \chi_{xyx} & \chi_{yyx} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} & \chi_{zyx} \end{pmatrix}$
3m	CLN, SiC, BBO	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & \chi_{xxz} & \chi_{xxy} & \chi_{xyx} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & 0 & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
$\bar{4}3m$	GaP, GaAs	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{xyz} & \chi_{xzy} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxz} & \chi_{yza} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} & \chi_{zyx} \end{pmatrix}$

TABLE B.1 – Tenseur $\chi^{(2)}$ des 9 groupes ponctuels associés aux 21 cristaux du Tableau 3.1.

	Type							
Direction	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII
x	$F_{zyy}=1$	$F_{zyz}=1$	$F_{yyz}=1$	$F_{yyy}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zzy}=1$	$F_{yzy}=1$	$F_{yzz}=1$
y	$F_{zxx}=1$	$F_{zxz}=1$	$F_{xxz}=1$	$F_{xxx}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zxx}=1$	$F_{xzx}=1$	$F_{xzz}=1$

TABLE B.2 – Elements du facteur champ non nuls dans les directions x et y des cristaux biaxes positifs, pour les 8 types d'interactions de DFG.

	Type							
Direction	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII
x	$F_{zyy}=1$	$F_{zyz}=1$	$F_{yyz}=1$	$F_{yyy}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zzy}=1$	$F_{yzy}=1$	$F_{yzz}=1$
y	$F_{zxx}=1$	$F_{zxz}=1$	$F_{xxz}=1$	$F_{xxx}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zxx}=1$	$F_{xzx}=1$	$F_{xzz}=1$
\vec{U}	$F_{zxx}=\frac{1}{2}$ $F_{zyy}=\frac{1}{2}$ $F_{zxy}=-\frac{1}{2}$ $F_{zyx}=-\frac{1}{2}$	$F_{zyz}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{zxx}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$	$F_{xyz}=-\frac{1}{2}$ $F_{yyz}=\frac{1}{2}$ $F_{xxz}=\frac{1}{2}$ $F_{yxz}=-\frac{1}{2}$	$F_{xxx}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{xyy}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{xxz}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{zxx}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yxx}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yyy}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yxx}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yzz}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$	$F_{zzz}=1$	$F_{zzy}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{zxx}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$	$F_{xzy}=-\frac{1}{2}$ $F_{yzy}=\frac{1}{2}$ $F_{zxx}=\frac{1}{2}$ $F_{yzz}=-\frac{1}{2}$	$F_{xzz}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{yzz}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$

TABLE B.3 – Elements du facteur champ non nuls dans les directions x, y et \vec{U} des cristaux uniaxes positifs, pour les 8 types d'interactions de DFG.

	Type							
Direction	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII
x	$F_{zyy}=1$	$F_{zyz}=1$	$F_{yyz}=1$	$F_{yyy}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zzy}=1$	$F_{yzy}=1$	$F_{yzz}=1$
y	$F_{zxx}=1$	$F_{zxz}=1$	$F_{xxz}=1$	$F_{xxx}=1$	$F_{zzz}=1$	$F_{zxx}=1$	$F_{xzx}=1$	$F_{xzz}=1$
\vec{U}	$F_{xzz}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{yzz}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$	$F_{xzy}=-\frac{1}{2}$ $F_{yzy}=\frac{1}{2}$ $F_{zxx}=\frac{1}{2}$ $F_{yzz}=-\frac{1}{2}$	$F_{zzy}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{zxx}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$	$F_{zzz}=1$	$F_{xxx}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{xyy}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{xxz}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{zxx}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yxx}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yyy}=\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yxx}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$ $F_{yzz}=-\frac{\sqrt{2}}{4}$	$F_{zzy}=\frac{\sqrt{2}}{2}$ $F_{zxx}=-\frac{\sqrt{2}}{2}$	$F_{xzy}=-\frac{1}{2}$ $F_{yzy}=\frac{1}{2}$ $F_{zxx}=\frac{1}{2}$ $F_{yzz}=-\frac{1}{2}$	$F_{zxx}=\frac{1}{2}$ $F_{zyy}=\frac{1}{2}$ $F_{zxy}=-\frac{1}{2}$ $F_{zyx}=-\frac{1}{2}$

TABLE B.4 – Elements du facteur champ non nuls dans les directions x, y et \vec{U} des cristaux uniaxes négatifs, pour les 8 types d'interactions de DFG.

Groupe ponctuel	Classe de symétrie	Cristaux	Direction	Types non nuls
m (miroir selon x)	Biaxe > 0	BGSe	x	I, II, III, IV, V, VI, VII, VIII
			y	I, III, V, VII
m (miroir selon y)	Biaxe > 0	YCOB	x	I, III, V, VII
			y	I, II, III, IV, V, VI, VII, VIII
mm2	Biaxe > 0	BNA, KTP, KTA, RTP, LBO	x	I, III, V, VII
			y	I, III, V, VII
$\bar{4}2m$	Uniaxe < 0	AGS, CSP, ADP KDP, DKDP	x	
			y	
			\vec{U}	II, VI, VIII
32	Uniaxe > 0	LGT	x	
			y	IV
			\vec{U}	I, III, IV, VII
622	Uniaxe > 0	GeO ₂	x	
			y	
			\vec{U}	I, III, VII
6mm	Uniaxe > 0	CdSe, ZnO	x	I, III, V, VII
			y	I, III, V, VII
			\vec{U}	I, III, V, VII
3m	Uniaxe > 0	BBO, SiC	x	I, III, IV, V, VII
			y	I, III, V, VII
			\vec{U}	I, III, IV, V, VII
3m	Uniaxe < 0	CLN	x	II, IV, V, VI, VIII
			y	II, IV, VI, VIII
			\vec{U}	II, IV, V, VI, VIII

TABLE B.5 – Types non nuls pour la génération de THz pour les 21 cristaux du Tableau 3.1.

ANNEXE C

LISTE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS ORALES

PUBLICATION

- C. Bernerd, P. Segonds, J. Debray, T. Notake, M. Koyama, H. Minamide, H. Ito and B. Boulanger, Quadratic nonlinear optical properties of the organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) crystal, *Optics Letters*, Vol. 43, No. 8 :1818-1821, 2018.

COMMUNICATIONS ORALES

- C. Bernerd, P. Segonds, J. Debray, T. Notake, M. Koyama, H. Minamide, H. Ito and B. Boulanger, Refined Sellmeier equations up to the near-infrared in the organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) crystal, *Mid-Infrared Coherence Sources (MICS)*, Strasbourg, France, March 25-27, 2018.

- C. Bernerd, P. Segonds, J. Debray, T. Notake, M. Koyama, H. Minamide, H. Ito and B. Boulanger, Phase-Matching Conditions and Refined Sellmeier equations up to the near-infrared in the organic BNA crystal, *Advanced Solid State Lasers Conference (ASSL)*, Boston, Massachusetts, USA, November 2018 (submitted).



Optics Letters

Quadratic nonlinear optical properties of the organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) biaxial crystal

CYRIL BERNERD,^{1,2} PATRICIA SEGONDS,^{1,2,*} JÉRÔME DEBRAY,^{1,2} TAKASHI NOTAKE,³ MIO KOYAMA,³ HIROAKI MINAMIDE,³ HIROMASA ITO,³ AND BENOÎT BOULANGER^{1,2}

¹Université Grenoble Alpes, Institut NEEL, F-38042 Grenoble, France

²CNRS, Institut NEEL, F-38042 Grenoble, France

³Tera-photonics laboratory, RIKEN Center for Advanced Photonics, 519-1399, Aramaki-aoba, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-0845, Japan

*Corresponding author: patricia.segons@neel.cnrs.fr

Received 18 January 2018; revised 21 February 2018; accepted 22 February 2018; posted 15 March 2018 (Doc. ID 320101); published 11 April 2018

We performed the direct measurement of second harmonic generation and sum frequency generation phase-matching directions in the organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal over its visible and near-infrared transparency range. The fit of these data allowed us to refine the Sellmeier equations of the three principal refractive indices in this range. With these equations, we improved the calculated tuning curves of terahertz emission from a phase-matched difference frequency process. We also determined the absolute magnitude of the d_{24} nonlinear coefficient. © 2018 Optical Society of America

OCIS codes: (190.2620) Harmonic generation and mixing; (190.4400) Nonlinear optics, materials; (190.4975) Parametric processes.

<https://doi.org/10.1364/OL.43.001818>

Recently, there has been real interest in many applications requiring terahertz (THz) coherent light, in particular spectroscopy or imaging of biological objects. But it implies the use of high power and very broadband coherent light sources covering as much as possible the range 0.1 to 30 THz. Such sources could be designed from optical rectification (OR) in the femtosecond regime or from phase-matched quadratic difference frequency generation (DFG) in the nanosecond regime [1]. The most powerful devices have been achieved in the two organic nonlinear crystals 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbavolium (DAST) [2–6] and N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) [6–9] thanks to their very high nonlinearity and their ability to be phase-matched. The THz emission range extended between 1 and 20 THz using millimeter-thick slabs cut along the y -dielectric axis [9]. The key issue was to have two independent incoming beams for which the wavelengths can be tuned over the visible and near-infrared transparency ranges of the nonlinear crystals where commercial pump sources are available.

Our current interest concerns BNA because it has the potential to open the door to practical applications. The present work is motivated by the lack of reliable data in the infrared range to

determine at best the phase-matching conditions. This biaxial crystal belongs to the $mm2$ orthorhombic point group. The Sellmeier equations describing the wavelength dispersion of the three principal refractive indices, n_x , n_y , and n_z , with $n_x < n_y < n_z$, have been determined between 0.5 and 1.064 μm with prisms using the deviation technique [10]. Under Kleinman's assumption, the second-order electric susceptibility tensor of BNA has three nonzero and independent elements. Using the contracted notation, they write: $d_{31} = d_{15}$, $d_{32} = d_{24}$, and d_{33} . The magnitudes of d_{32} and d_{33} have been estimated at 0.532 μm using the Maker fringe method and KTP as a reference. The magnitude of d_{31} was found negligible compared to the two other nonlinear coefficients [10].

In this Letter, we report the direct measurement of Types I and II second harmonic generation (SHG) and sum frequency generation (SFG) phase-matching directions. We studied the xz plane of BNA, where the x - and z -dielectric axes correspond to the a - and c -crystallographic axes respectively, the c axis lying along the binary rotation axis. These angular data allowed us to refine the Sellmeier equations in the visible and near-infrared transparency ranges of the crystal. We also determined the absolute magnitude of the nonlinear coefficient d_{24} , and worked out calculations for THz emission from phase-matched DFG between two incoming beams.

High-quality and several-millimeter-size single BNA crystals were grown at 60°C, using a concentration of 0.3 g/ml of ethanol as the solvent and the solution method described in Ref. [11]. In a first step, transmission spectra in polarized light were recorded using a y cut and 2.64-mm-thick slab polished to optical quality. We used a 0.175 to 3.3 μm Perkin–Elmer Lambda 900 spectrometer associated with a photomultiplier tube for the range 0.175 to 0.800 μm , and with a Peltier-cooled PbS photodiode between 0.80 and 3.30 μm . We found that BNA is transparent from 0.5 to 2 μm with two absorption peaks located at 1.50 and 1.68 μm , as in Ref. [10].

The second step of this work has been the direct measurement of phase-matching directions. For that purpose, it was

sufficient to study the xz plane of the biaxial crystal BNA. Following Ref. [12], the effective coefficient is nonzero for Type I SFG and SHG in the xz plane (except along the z axis) when the spherical angular coordinate θ is smaller than the optical axis angle V_z . It is also the case for Type II SHG and SFG when θ is greater than V_z . We took the relation of order: $\lambda_3 < \lambda_2 \leq \lambda_1$. The corresponding energy conservation relations and the associated configurations of polarization are the following: $(1/\lambda_\omega^y + 1/\lambda_\omega^y = 1/\lambda_{2\omega}^{xz})$ for Type I SHG and $(1/\lambda_1^y + 1/\lambda_2^y = 1/\lambda_3^{xz})$ for Type I SFG when $\theta < V_z$; $(1/\lambda_\omega^y + 1/\lambda_\omega^{xz} = 1/\lambda_{2\omega}^y)$ for Type II SHG and $(1/\lambda_1^{xz} + 1/\lambda_2^y = 1/\lambda_3^y)$ for Type II SFG when $\theta > V_z$. The superscript refers to the direction of polarization, along the y axis or in the xz plane.

The corresponding phase-matching angles were measured in a BNA crystal cut as a cylinder polished on its curved face, the rotation axis being along the y axis as shown in Fig. 1. We used a specific method described in Ref. [13]. The diameter was $D = 4.96 \pm 0.04$ mm, the acylindricity $\Delta D/D$ being below 1%. The precision of the rotation axis oriented along the y axis is better than 0.05° .

All directions of the xz plane were accessible since the cylinder could rotate around the y axis thanks to an automatic Kappa circle. They were marked out using the spherical angular coordinates θ with $\varphi = 0^\circ$. The cylinder was illuminated by one or two laser beams when studying SHG and SFG, respectively. For that purpose, it was properly inserted between two CaF_2 lenses with the same 100 mm focal length, as shown in Fig. 1. For SHG, the fundamental beam was provided by a 5-ns-pulse, 10 Hz repetition rate optical parametric oscillator (OPO) from the continuum. The OPO was tunable between 0.4 and 2.4 μm and pumped by the third harmonic of the 1.064 μm wavelength of a Nd:YAG laser. For SFG, a part of the 1.064 μm beam was mixed collinearly in the cylinder with the tunable OPO beam. Achromatic half-wave plates (HWP) provided the requested configurations of polarizations for the incoming tunable beams according to Type I and II.

The energies ε_i of the incoming beams were measured using a reflected beam on the beam splitter (BS) shown in Fig. 1. A filter placed at the exit of the crystal allows the residual incoming beams to be cut, so that the energy ε_g of the generated beam is the only one to be measured. The conversion efficiency is defined as $\eta = \varepsilon_g/\varepsilon_i$ with $\varepsilon_i = \varepsilon_\omega$ and $\varepsilon_g = \varepsilon_{2\omega}$ for SHG while $\varepsilon_i = \varepsilon_1 + \varepsilon_2$ and $\varepsilon_g = \varepsilon_3$ for SFG. All energies were measured using photodiodes coupled to amplifiers. The maximum value of the conversion efficiency η corresponds to the phase-matching angle θ_{PM} read on the Kappa circle with an accuracy of $\pm 0.5^\circ$ and to the generated phase-matching wavelength λ_{PM} recorded with an accuracy of ± 1 nm by using a HR 4000 Ocean Optics spectrometer. The dots of Figs. 2 and 3 show the recorded tuning curves of SHG and SFG, respectively. Note that for Type I SHG and SFG, no measurement of conversion efficiency is reported

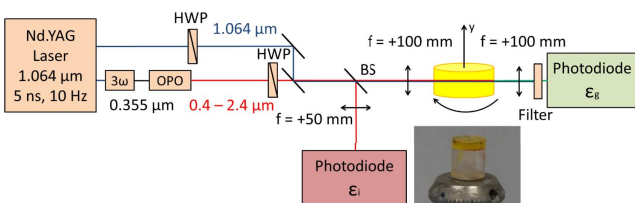


Fig. 1. Scheme of the experimental setup used for phase-matching measurements in the 4.96-mm-diameter BNA cylinder shown in the inset.

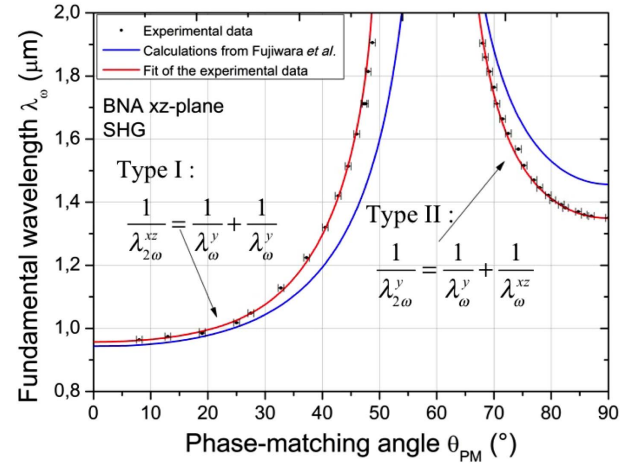


Fig. 2. Types I and II SHG tuning curves of BNA in the xz plane.

along the z axis ($\theta_{\text{PM}} = 0^\circ$) since the associated effective coefficient is zero, as mentioned above. We also calculated the tuning curves using the Sellmeier equations of Ref. [10]. They are shown as blue lines in Figs. 2 and 3.

The angular gap between the SHG and SFG tuning curves of Types I and II is due to the optical axis: it ranges between 44° and 59° using the Sellmeier equations of Ref. [10], and between 46° and 55° using Eqs. (1)–(3) over the fundamental and second harmonic wavelengths of Fig. 3 [12]. Figures 2 and 3 show a significant discrepancy between our recorded data and calculations using Ref. [10]. This discrepancy indicates that the refractive indices published in Ref. [10] have to be refined. It can be done from the simultaneous fit of our phase-matching measurements shown in Figs. 2 and 3, using a Levenberg–Maquardt algorithm encoded with Matlab. The best fit relies on three Sellmeier equations describing the wavelength dispersion of the three principal refractive indices,

$$n_x^2(\lambda) = 2.3035 + \frac{0.0297}{\lambda^2 - 0.1820} - 0.0091\lambda^2, \quad (1)$$

$$n_y^2(\lambda) = 2.8593 + \frac{0.0655}{\lambda^2 - 0.1548} - 0.0073\lambda^2, \quad (2)$$

$$n_z^2(\lambda) = 3.1321 + \frac{0.2199}{\lambda^2 - 0.1624} + 0.0024 \lambda^2, \quad (3)$$

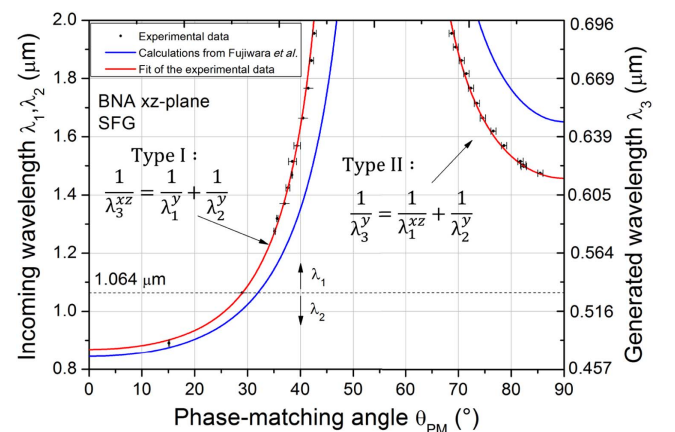


Fig. 3. Types I and II SFG tuning curves of BNA in the xz plane.

where the wavelength λ is in micrometers. The accuracy of all the coefficients is 10^{-4} thanks to measured phase-matching angles with a precision of $\pm 0.5^\circ$. Equations (1)–(3) are valid between 0.5 and 2 μm , corresponding to the wavelength range over which the phase-matching angles were measured. The main reason of the discrepancy between experiments and calculations is that the calculations were performed from the measurement of the refractive indices using the prism method in which accuracy was not better than 10^{-3} on the one hand, and these data were recorded on the limited range, between 0.5 and 1.064 μm , on the other hand. Another possible explanation is a difference of the crystal quality between the BNA samples studied in the present work and in Ref. [10]. Actually, the quality often strongly depends on the synthesis process and the crystal-growth technique in the case of organic crystals, which can change the refractive indices values.

In a third step, we worked at the determination of the absolute magnitude of the nonlinear coefficient d_{24} of BNA. It can be done from angle noncritical phase-matched (NCPM) Type II SHG ($1/\lambda_\omega^y + 1/\lambda_\omega^z = 1/\lambda_{2\omega}^y$) along the x axis, the fundamental wave being polarized at 45° of the z axis. This direction of propagation is of interest because the corresponding spatial walkoff is nil and d_{24} is the only coefficient to be involved. The corresponding fundamental wavelength obtained from Fig. 2 is $\lambda_\omega^{\text{PM}} = 1.349 \mu\text{m}$, and the associated effective coefficient, d_{eff} , is equal to d_{24} at $\lambda_{2\omega}^{\text{PM}} = 0.674 \mu\text{m}$, which is exactly the data to determine. We performed this measurement relatively to the value of d_{24} of KTP at 0.66 μm ($d_{24}^{\text{KTP}} = 2.37 \pm 0.17 \text{ pm/V}$) that can be measured from Type II SHG ($1/\lambda_\omega^y + 1/\lambda_\omega^{xz} = 1/\lambda_{2\omega}^y$) phase-matched at ($\theta_{\text{PM}}^{\text{KTP}} = 58.5^\circ$, $\varphi_{\text{PM}}^{\text{KTP}} = 0^\circ$). The associated effective coefficient is $d_{\text{eff}}^{\text{KTP}}(0.66 \mu\text{m}) = 2.02 \pm 0.02 \text{ pm/V}$ [14].

We used the setup of Fig. 1 where BNA and KTP slabs replaced the cylinder. The thickness of the BNA slab shown in the inset of Fig. 4 was $L^{\text{BNA}} = 3 \text{ mm}$. That of KTP was $L^{\text{KTP}} = 0.59 \text{ mm}$. We chose a small thickness for KTP to minimize the spatial-walkoff effect, knowing that it is nil in BNA cut along the x axis. The very close values of the phase-matching fundamental wavelengths (1.349 μm for BNA and 1.320 μm for KTP) have the advantage of removing the spectral response of the experimental setup and detectors. Using the knife method, we measured a beam waist diameter of 200 μm at the input surface of the slabs. That gives a Rayleigh length equal to 95 mm, which is much larger than L^{BNA} and L^{KTP} , ensuring parallel beam propagation inside the samples.

In each slab, the fundamental and second harmonic energies ϵ_ω and $\epsilon_{2\omega}$ were simultaneously measured. The corresponding normalized conversion efficiency magnitude $\eta = \epsilon_{2\omega}/\epsilon_\omega$ was recorded as a function of the fundamental wavelength λ_ω and of the θ angle. It is shown respectively in Figs. 4 and 5 for BNA. The shift of Fig. 4 is due to an accuracy of $\pm 2 \text{ nm}$ for the fundamental wavelength. The recorded wavelength and angular acceptances of BNA, defined by the width of the phase-matching peaks at 0.405 of their maximum, are in full accordance with calculations using our Eqs. (1)–(3). The geometrical and interaction lengths are also equal, meaning that BNA was grown with a volume free of defect.

A comparison between the conversion efficiency maximum values recorded in BNA and KTP leads to the absolute value $d_{24}^{\text{BNA}}(0.6745 \mu\text{m})$ relative to $d_{24}^{\text{KTP}}(0.66 \mu\text{m})$ using

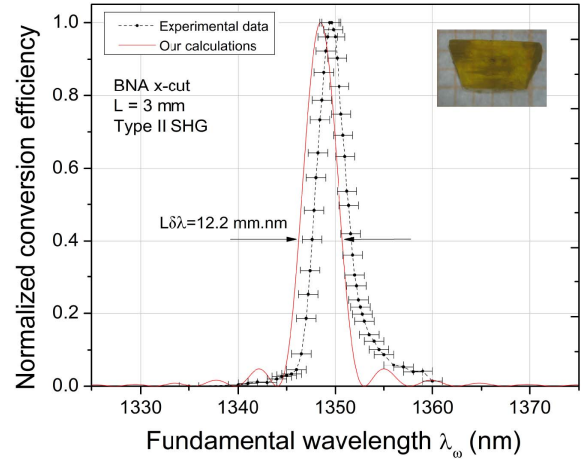


Fig. 4. Calculated (continuous line) and measured (dots linked with dashed line) normalized conversion efficiency of angle NCPM Type II SHG in a 3-mm-thick x -cut BNA slab as a function of the wavelength λ_ω .

$$|d_{24}^{\text{BNA}}|^2 = \frac{A_{\text{II}}^{\text{KTP}} \eta^{\text{BNA}} (L^{\text{KTP}})^2 G^{\text{KTP}} (\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}})^2}{A_{\text{II}}^{\text{BNA}} \eta^{\text{KTP}} (L^{\text{BNA}})^2 G^{\text{BNA}} (\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}})^2} (d_{\text{eff}}^{\text{KTP}})^2, \quad (4)$$

with

$$A_{\text{II}}^{\text{KTP}} = \left[\frac{T_y^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}/2) T_y^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}) T_{xz}^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}, \theta_{\text{PM}}^{\text{KTP}})}{n_y^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}/2) n_y^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}) n_{xz}^{\text{KTP}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{KTP}}, \theta_{\text{PM}}^{\text{KTP}})} \right], \quad (5)$$

and

$$A_{\text{II}}^{\text{BNA}} = \left[\frac{T_y^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}/2) T_y^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}) T_z^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}, 90^\circ)}{n_y^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}/2) n_y^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}) n_z^{\text{BNA}}(\lambda_{\text{PM}}^{\text{BNA}}, 90^\circ)} \right]. \quad (6)$$

n_i , with $i = (x, y, z)$, represent the three principal refractive indices of BNA and KTP crystals. T_i , with $i = (x, y, z)$, are the corresponding transmission coefficients. We calculated the factors A using the Sellmeier equations [(1)–(3)] of BNA and

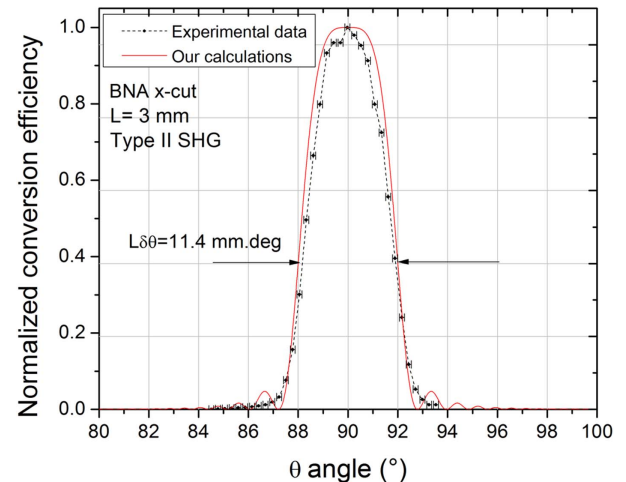


Fig. 5. Calculated (continuous line) and measured (dots linked with dashed line) normalized conversion efficiency of angle NCPM Type II SHG in a 3-mm-thick x -cut BNA slab as a function of the θ angle.

Ref. [13] for KTP. G_{KTP} is the attenuation function due to the spatial walkoff in the Type II SHG phase-matching direction of KTP, and we found $G_{\text{KTP}} = 0.997$. For BNA cut along the x axis, $G_{\text{BNA}} = 1$.

We measured $\eta^{\text{BNA}} = 12.8 \times 10^{-3}$ and $\eta^{\text{KTP}} = 14.8 \times 10^{-3}$, leading to $|d_{24}^{\text{BNA}}(0.6745 \mu\text{m})| = 4.5 \pm 0.2 \text{ pm/V}$. After applying Miller's rule [12], it becomes $|d_{24}^{\text{BNA}}(0.532 \mu\text{m})| = 5.5 \pm 0.2 \text{ pm/V}$. This value is significantly smaller than that previously measured: $|d_{24}^{\text{BNA}}(0.532 \mu\text{m})| = 15.6 \pm 0.9 \text{ pm/V}$, from phase-matched Type II SHG using a BNA slab cut at $\theta_{\text{PM}} = 26.9^\circ$ in the xy plane [10]. The disagreement is strong. One explanation could be that Kleinman symmetry law, which allows d_{24} to be considered equal to d_{32} , is inappropriate in this wavelength range located near the band-gap. Besides, applying Miller's rule could be also inappropriate because an enhancement of the nonlinear coefficients can be expected near the bandgap. Measurements at higher wavelengths are left as future works to confirm these hypotheses.

Finally, using the setup shown in Fig. 1, we compared the surface damage threshold of BNA and KTP. The laser beam was emitted by a Nd:YAG laser at $1.064 \mu\text{m}$ with a pulse duration of 5 ns and a repetition rate of 10 Hz. We used a 150 mm focal lens leading to a beam-waist radius of $30 \mu\text{m}$ at the slabs input surface. The damage threshold was determined from the observation of the early stage damage of this surface after several 1 min shootings, and the incoming energy increased by a step of $25 \mu\text{J}$. In BNA, we observed a surface damage at an incoming energy of $171 \mu\text{J}$ corresponding to a peak power of 0.96 GW/cm^2 . It is about 4 times weaker than that of KTP that was damaged at $717 \mu\text{J}$, i.e., at 4.05 GW/cm^2 .

The main use of BNA is THz emission from phase-matched Type 0 DFG ($1/\lambda_1^z = 1/\lambda_3^z - 1/\lambda_2^z$), where λ_2 and λ_3 are the independent incoming wavelengths from its visible–infrared transparency range and λ_1 is the generated THz wavelength. We were interested in calculating the tuning curve by considering all possible values of λ_2 and λ_3 between 0.5 and $2 \mu\text{m}$. This interaction is coupled by the highest nonlinear coefficient d_{33} when propagating the waves at any angle in the xy plane

of BNA. Our calculation combines two sets of Sellmeier equations of the principal refractive index n_z : in the THz range we used the equation of Ref. [8], while in the visible–infrared we took either the equation of Ref. [10] or of Eq. (3).

The two corresponding calculated tuning curves are shown in Fig. 6. For a given THz wave generated at λ_1 by Type 0 phase-matched DFG, the wavelength of the two incoming beams, λ_2 and λ_3 , can be directly determined from Fig. 6. For example, to generate $\nu_1^{A,B} = 15.2 \text{ THz}$ ($\lambda_1^{A,B} = 19.7 \mu\text{m}$), the wavelengths of the two incoming beams are $\lambda_2^A = 1.165 \mu\text{m}$ and $\lambda_3^A = 1.1 \mu\text{m}$ using our Sellmeier equations or $\lambda_2^B = 0.932 \mu\text{m}$ and $\lambda_3^B = 0.888 \mu\text{m}$ using the Sellmeier equations of Ref. [10]. Figure 6 shows that according to our calculations from the present work, the two incoming wavelengths must vary in the range 0.8 to $1.4 \mu\text{m}$ to generate THz between 0.1 and 20 THz, and not in the range calculated in Ref. [8]. Note also that our calculation corroborates the data recorded in a $300\text{-}\mu\text{m}$ -thick y-cut BNA with two incoming beams emitted by a dual wavelength $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ (BBO) OPO [6].

In conclusion, we performed for the first time to our knowledge a complete study of the phase-matching directions of BNA for SHG and SFG pumped at $1.064 \mu\text{m}$. Our results allowed refining the Sellmeier equations between 0.5 and $2 \mu\text{m}$. These equations can improve any calculated phase-matching angle of SHG and DFG in the visible and near-infrared transparency ranges of BNA. Used for the two pump wavelengths, they can improve calculated phase-matching angles of Type 0 DFG for a generation in the THz range.

Acknowledgment. The authors thank Ms. Mikiko Saito for growing excellent BNA crystals.

REFERENCES

1. G. K. Kitaeva, *Laser Phys. Lett.* **5**, 559 (2008).
2. T. Hatanaka, H. Takahashi, K. Nakamura, and T. Taniuchi, *Opt. Lett.* **25**, 651 (2000).
3. H. Adachi, T. Taniuchi, M. Yoshimura, S. Brahadeeswaran, T. Higo, M. Takagi, Y. Mori, T. Sasaki, and H. Nakanishi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L1121 (2004).
4. A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, U. A. Khan, and P. Günter, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1822 (2006).
5. K. Suizu, K. Miyamoto, T. Yamashita, and H. Ito, *Opt. Lett.* **32**, 2885 (2007).
6. T. Notake, K. Nawata, H. Kawamata, T. Matsukawa, F. Qi, and H. Minamide, *Opt. Express* **20**, 25850 (2012).
7. M. Shalaby, C. Vicaro, K. Thirupugalmani, S. Brahadeeswaran, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **41**, 1777 (2016).
8. K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, and H. Ito, *Opt. Express* **17**, 14832 (2009).
9. K. Kuroyanagi, M. Fujiwara, H. Hashimoto, H. Takahashi, S. Aoshima, and Y. Tsuchiya, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 4068 (2006).
10. M. Fujiwara, M. Maruyama, M. Sugisaki, H. Takahashi, S. Aoshima, R. Cogdell, and H. Hashimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 1528 (2007).
11. T. Notake, K. Nawata, H. Kawamata, T. Matsukawa, and H. Minamide, *Opt. Mater. Express* **2**, 119 (2012).
12. B. Boulanger and J. Zyss, *International Tables for Crystallography, Vol. D: Physical Properties of Crystals*, A. Authier, ed., International Union of Crystallography (Kluwer Academic, 2006), pp. 178–219.
13. B. Ménaert, J. Debray, J. Zaccaro, P. Segonds, and B. Boulanger, *Opt. Mater. Express* **7**, 3017 (2017).
14. B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, C. Bonnin, P. Villeval, and J. J. Zondy, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 1380 (1997).

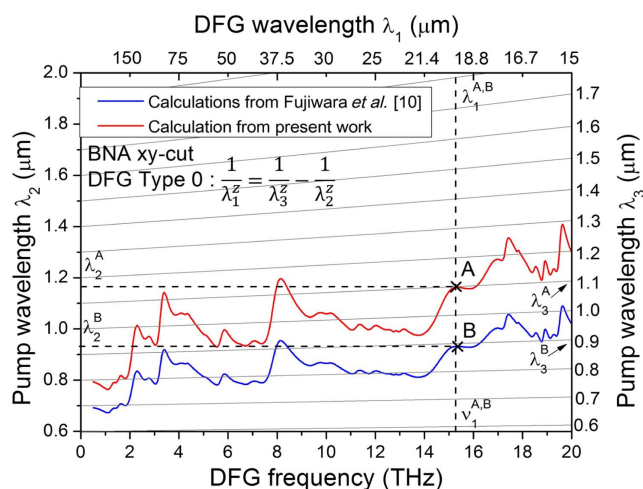


Fig. 6. Type 0 DFG calculated tuning curve at any angle in the xy plane of BNA. The wavelength (frequency) $\lambda_1^{A,B}$ ($\nu_1^{A,B}$) obtained from λ_2^A or λ_2^B values and the grey lines is an example showing how to use the graph.

Génération d'ondes TeraHertz par Différence de Fréquences

Le domaine des ondes TeraHertz (THz) s'étend de l'infrarouge lointain (15 μm / 20 THz) aux ondes radios (3000 μm / 0.1 THz). La couverture spectrale des sources actuelles, qu'elles soient thermique (lampes à mercure...), électronique (diode Gunn...) ou optique (laser, antennes...), ne permet pas de répondre à l'ensemble des applications en spectroscopie et en imagerie. Une alternative à ces sources est l'optique non linéaire paramétrique, qui permet de générer des ondes THz à partir du processus de Différence de Fréquences (DFG), et qui consiste à injecter un ou deux lasers dans un cristal non linéaire. Afin de couvrir au mieux le très large domaine THz, il est nécessaire de déterminer un ensemble de cristaux dont les propriétés optiques permettent de générer ces ondes avec de forts rendements de conversion.

Le travail présenté dans ce manuscrit de thèse décrit l'étude de ces propriétés pour un ensemble de cristaux non linéaires, ainsi que des résultats expérimentaux de génération THz à partir de la DFG entre deux lasers monochromatiques en régime nanoseconde et picoseconde, ou entre deux composantes de Fourier au sein d'une impulsion laser femtoseconde. Nous avons sélectionné vingt nouveaux cristaux jamais étudiés dans le domaine THz auparavant, ainsi que le nouveau cristal organique de BNA. Nous avons mesuré leurs spectres de transmission du visible au THz, ainsi que les propriétés optiques non linéaires incluant les conditions d'accord de phase et le rendement de conversion.

Mots-clés :

TERAHERTZ; CRISTAUX; OPTIQUE NON LINEAR; DIFFERENCE DE FREQUENCES

TeraHertz Waves Generation from Difference Frequency Generation

THz-waves extend from the far InfraRed (15 μm – 20 THz) to radio waves (3000 μm – 0.1 THz). Current sources based on thermal (Mercury lamps...), electronics (Gunn diode...) or optics (laser, antennas...) technologies can't cover this wide spectral range for applications in spectroscopy and imaging. An alternative is provided by parametric nonlinear optics, which leads to the generation of THz waves from Difference Frequency Generation (DFG) by injecting one or two lasers in a nonlinear crystal. To better cover the wide THz domain, it is necessary to determine nonlinear crystals with optical properties leading to the generation of such waves with high conversion efficiencies.

This PhD thesis is devoted to the study of these properties for a panel of nonlinear crystals, along with experimental results of THz generation from DFG between two monochromatic lasers in the nanosecond and picosecond regimes, or between two Fourier components within a femtosecond laser. We selected twenty new crystals never studied before in the THz domain, along with the organic crystal of BNA. We measured their transmission spectra from visible to THz, and their nonlinear properties including phase-matching conditions and conversion efficiency.

Keywords :

TERAHERTZ; CRYSTALS; NONLINEAR OPTICS; DIFFERENCE FREQUENCY GENERATION