

# **Génération d'impulsions laser terahertz par redressement optique dans des cristaux non-linéaires**

par

**Alain Tremblay**

Mémoire présenté au Département de Physique en vue  
de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

**FACULTÉ DES SCIENCES  
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE**

Sherbrooke, Québec, Canada, mars 2005

*Le 30 mars 2005*

*le jury a accepté le mémoire de M. Alain Tremblay dans sa version finale.*

**Membres du jury**

**M. Denis Morris**  
Directeur  
Département de physique

**M. René Côté**  
Membre  
Département de physique

**M. Mario Poirier**  
Président-rapporteur  
Département de physique

## **SOMMAIRE**

Ce mémoire de maîtrise présente les résultats de mesures de l'intensité moyenne associée à des impulsions laser terahertz (THz) générées par redressement optique dans trois types de cristaux non-linéaires : ZnTe, GaSe et GaAs. Effectuées à l'aide d'un bolomètre, ces mesures constituent la première étape d'un processus devant mener à la mise en place d'un montage de spectroscopie THz résolue en temps reposant sur des effets non-linéaires. On peut les diviser en deux parties. Dans un premier temps, la variation du signal en fonction de l'orientation du champ exciteur relativement aux axes cristallographiques a été étudiée pour chacun des échantillons. Les résultats obtenus confirment que le rayonnement détecté est effectivement généré par redressement optique. Ces résultats ont également permis de déterminer l'orientation qui maximise l'émission de THz pour chacun des échantillons. Une deuxième série de mesures a servi à étudier certaines caractéristiques importantes du faisceau dans le contexte de la mise en place d'un montage de spectroscopie THz résolue en temps. Les mesures de l'intensité en fonction de la distance échantillon-bolomètre ont montré que dans un montage typique de spectroscopie THz, le faisceau parcourt plusieurs fois la distance d'atténuation du rayonnement THz dans l'air. Ce résultat fait ressortir l'importance de travailler sous atmosphère exempte d'humidité. Par ailleurs, l'angle d'ouverture du cône d'émission THz a été estimé à  $1^\circ$  à partir des courbes du signal en fonction de la position transversale du bolomètre. Finalement, les mesures de l'intensité THz en fonction de l'intensité associée au champ d'excitation ont fait ressortir un phénomène de saturation dans le ZnTe et le GaSe.

## **REMERCIEMENTS**

Je tiens d'abord à remercier mon directeur de recherche, le Pr. Denis Morris. Sa disponibilité pour venir prêter main-forte lorsque des pépins se présentaient au laboratoire ne s'est jamais démentie, et sa capacité à se tirer d'affaires rapidement après s'être mis dans le pétrin entrera dans la légende.

J'aimerais également remercier Stéphane Savard pour m'avoir aidé à faire la plupart des transferts d'hélium dans le bolomètre, Stéphane Melançon pour avoir toujours su trouver et mettre en place des solutions à une vitesse supra-lumineuse lorsque la situation le demandait, et le Pr. Patrick Fournier pour le prêt de certains équipements de son laboratoire. Un merci spécial à Jacques Corbin pour ses judicieux conseils sur le nettoyage et l'amincissement des échantillons, et pour son aide précieuse dans le découpage des pastilles de GaAs.

Merci également à Hugo Bourque et à Bassem Salem, avec lesquels j'ai eu l'occasion de travailler au laboratoire. La mise en commun d'interrogations, de questions et de réponses permet toujours d'accélérer l'apprentissage des subtilités d'une technique, d'un montage ou d'un appareil.

Je m'en voudrais de passer sous silence le support informatique offert par Patrick Vachon (Windows et Linux) et Charles Doiron (Mac). Grâce à leurs vastes connaissances et à leur service rapide, j'ai pu me préoccuper davantage de physique que d'informatique.

Finalement, merci aussi à Hugo, François, Marie-Christine, Dany, Michel et Ronan pour leur présence agréable au bureau. Ce fut notamment un plaisir de trouver en Hugo et François des partenaires dans mon obsession Simpsonienne. Quant aux autres ils ont su, par leur sens de l'humour et par leur écoute, aider à dédramatiser les choses dans les moments moins faciles.

# TABLE DES MATIÈRES

SOMMAIRE .....	i
REMERCIEMENTS.....	ii
TABLE DES MATIÈRES .....	iii
LISTE DES TABLEAUX.....	v
LISTE DES FIGURES .....	vi
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1: THÉORIE DE LA RÉPONSE NON-LINÉAIRE D'ORDRE 2 .....	4
1.1 Réponse d'un semiconducteur à un champ électrique appliqué.....	4
1.1.1 Réponse à une excitation non résonante.....	5
1.1.2 Développement de la polarisation en série de Taylor et effets non-linéaires.....	7
1.2 Caractéristiques de la réponse non-linéaire.....	11
1.2.1 Ordre de la réponse non-linéaire vs symétrie du cristal .....	11
1.2.2 Symétrie de Kleinman et notation 3x6 .....	11
CHAPITRE 2: APPLICATION AUX CRISTAUX UTILISÉS POUR LE PROJET.....	14
2.1 Cristaux utilisés pour le projet.....	14
2.2 Réponse non-linéaire d'ordre 2 des cristaux des groupes $\bar{6}2m$ et $43m$ .....	16
2.2.1 Cristaux du groupe $43m$ coupés dans le plan (110).....	16
2.2.2 Cristal de GaSe de surface parallèle au plan $xy$ .....	18
2.2.3 Cas du GaAs : excitation résonante.....	19
CHAPITRE 3: MONTAGE EXPÉRIMENTAL.....	23
3.1 Système laser émettant dans le proche infrarouge.....	23
3.2 Bolomètre .....	25
3.3 Ensemble du montage .....	28
CHAPITRE 4: RÉSULTATS ET ANALYSE.....	30
4.1 Mesures du signal en fonction de l'orientation des cristaux .....	30
4.1.1 Composantes du champ THz en fonction de l'orientation des échantillons.....	30

4.1.2 Intensité THz en fonction de l'orientation des échantillons 43m.....	33
4.1.3 Mesures à polariseur fixe avec le GaSe.....	36
4.2 Mesures d'intérêt pour la mise en place de montages de spectroscopie THz .....	37
4.2.1 Atténuation du faisceau dans l'air.....	38
4.2.2 Divergence du faisceau terahertz .....	40
4.2.3 Profil transversal d'intensité du faisceau terahertz .....	42
4.2.4 Intensité THz vs intensité du faisceau d'excitation.....	44
CONCLUSION .....	48
ANNEXE A.....	51
BIBLIOGRAPHIE.....	54

## LISTE DES TABLEAUX

1. Échantillons utilisés pour le projet. L'orientation des surfaces est exprimée dans le système d'axes du cristal à l'aide des indices de Miller .....	15
2. Énergie de gap à 300 K des semiconducteurs utilisés vs énergie des photons associés à la longueur d'onde centrale du spectre du faisceau incident.....	20
3. Distances d'atténuation $a$ du faisceau THz obtenues avec les 3 échantillons.....	39
4. Valeurs de $\Delta y$ obtenues à différentes distances échantillon-bolomètre avec les échantillons de ZnTe et de GaSe. ....	42

## LISTE DES FIGURES

1. Changement de coordonnées dans le cas des cristaux du groupe $43m$ .....	17
2. Champ électrique associé à un faisceau frappant perpendiculairement la surface d'un échantillon coupé dans le plan (001).....	19
3. Schéma du système laser.....	24
4. Principe de fonctionnement du bolomètre composite.....	26
5. Le bolomètre utilisé pour la détection du rayonnement THz.....	27
6. Montage typique utilisé pour la génération et la détection de THz.....	28
7. Intensité des composantes THz en fonction de l'angle $\theta$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $z'$ du ZnTe.....	31
8. Intensité des composantes THz en fonction de l'angle $\theta$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $z'$ du GaAs. ....	32
9. Intensité des composantes THz en fonction de l'angle $\phi$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $x$ du GaSe. ....	33
10. Signal recueilli en fonction de l'angle $\theta$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $z'$ du ZnTe sans polariseur. ....	34
11. Signal recueilli en fonction de l'angle $\theta$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $z'$ du GaAs sans polariseur. ....	35
12. Signal recueilli en fonction de l'angle $\phi$ entre $\mathbf{E}$ et l'axe $x$ du GaSe avec l'axe du polariseur orienté parallèlement à $\mathbf{E}$ . ....	36
13. Intensité THz en fonction de la distance entre le cristal de ZnTe et le bolomètre. ....	39
14. Intensité THz en fonction de la position transversale du bolomètre pour deux distances cristal-bolomètre différentes avec l'échantillon de ZnTe. ....	41
15. Intensité THz en fonction du carré de l'ouverture $r$ d'un diaphragme placé devant la fenêtre de détection du bolomètre.....	43
16. Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau excitateur avec l'échantillon de GaAs.....	45
17. Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau excitateur avec l'échantillon de GaSe. ....	46
18. Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau excitateur avec l'échantillon de ZnTe.....	47
A.1. Systèmes d'axes du laboratoire (primé) et du cristal (non primé).....	51

## **INTRODUCTION**

La région du spectre électromagnétique désignée sous le nom de *terahertz* (THz) suscite un vif intérêt chez les scientifiques de plusieurs disciplines. Des phénomènes variés mettent en effet en jeu des énergies associées à cette gamme de fréquence (1 THz équivaut à une longueur d'onde de 300  $\mu\text{m}$  et à une énergie de 4 meV). Le besoin de sources de radiation émettant du THz en continu, mais aussi en régime impulsionnel, est donc très présent dans de nombreux domaines de recherche.

Par exemple, en chimie organique, l'étude des transitions entre les niveaux de vibration de biomolécules nécessite l'utilisation d'impulsions THz d'une durée inférieure aux temps de relaxation des molécules. En optoélectronique, les impulsions dans l'infrarouge moyen et lointain sont très utiles pour étudier les transitions inter-sous-bandes dans les structures à confinement quantique comme les puits et les fils quantiques. Ces structures, déjà présentes dans des appareils comme les lecteurs de disques compacts, seront de plus en plus utilisées dans les technologies modernes en optoélectronique. En physique du solide, on peut utiliser des impulsions THz pour étudier la dynamique des quasiparticules dans les supraconducteurs ainsi que les bandes d'absorption phononique et multi-phononique dans les organiques et les semiconducteurs. Et les récents développements dans le domaine de l'imagerie THz, qui permettent de visualiser des objets en 3 dimensions, laissent entrevoir le jour où les impulsions THz remplaceront les Rayons-X, notamment dans les aéroports.

Le gamme du THz est une région du spectre électromagnétique encore mal exploitée par les chercheurs. Ainsi, bien que les sources émettant un rayonnement cohérent dans les domaines du visible et du proche infrarouge soient nombreuses et leur utilisation répandue, les domaines de l'infrarouge moyen et lointain posent problème. L'un des principaux obstacles à la mise au point de sources THz à l'état solide est la difficulté de trouver des milieux émetteurs

transparents dans cette gamme de fréquence où l'absorption phononique est normalement importante.

Jusqu'à tout récemment, les antennes photoconductrices étaient les sources les plus répandues d'impulsions THz. La complexité du processus de fabrication des antennes, ainsi que la nécessité de les polariser fortement pour obtenir des intensités d'émission appréciables, rendent cependant nécessaire la mise au point de technologies compétitives.

L'avènement de sources laser pouvant émettre des impulsions d'une durée inférieure à la picoseconde a permis de développer une nouvelle voie pour la génération d'impulsions laser THz : la génération à la différence des fréquences dans des matériaux à indice de non-linéarité élevé, ou *matériaux non-linéaires*. Dans ce type de matériaux, la polarisation électrique d'ordre 2 générée par les champs électriques élevés associés à des impulsions laser ultra-brèves oscille à la différence des fréquences des champs appliqués. Un cas particulier de ce processus est le *redressement optique*, qui désigne le cas où deux composantes spectrales d'une même impulsion se mélangent.

L'émission de THz par redressement optique est un exemple de simplicité. L'utilisation d'un seul faisceau d'excitation évite de longues et fastidieuses séances d'alignement de faisceaux invisibles (la génération de THz par mélange d'ondes se fait avec des faisceaux dans le proche infrarouge). Dans un montage de redressement optique comme celui qui fut utilisé dans le cadre du présent projet, il suffit d'aligner le faisceau d'excitation, dont la queue du spectre est visible, sur le cristal non-linéaire. De plus, les échantillons ne nécessitent pas de préparation a priori, bien qu'un amincissement à quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  soit nécessaire pour augmenter la largeur de bande de l'impulsion générée [1].

Le seul désavantage majeur des cristaux non-linéaires est la faiblesse du signal qu'ils permettent de générer : l'énergie par impulsion obtenue avec les antennes à grande ouverture les plus performantes dépasse de plusieurs ordres de grandeur ce que l'on peut obtenir avec des cristaux non-linéaires [2, 3]. Le redressement optique avec accord de phase dans des

matériaux non-linéaires et biréfringents permet toutefois de compenser partiellement cet inconvénient. Le terme *accord de phase* est utilisé pour désigner les mélanges d'ondes qui conservent la quantité de mouvement. L'émission causée par la polarisation non-linéaire se fait alors sur toute l'épaisseur du cristal, alors qu'elle est confinée à des tranches d'une centaine de  $\mu\text{m}$  à l'entrée et à la sortie de l'échantillon en l'absence d'accord de phase [4, 5]. L'accord de phase dans le GaSe permet de multiplier par 100 la puissance du faisceau généré [3], en plus de donner accès à des fréquences aussi élevées que 41 THz ( $\lambda \approx 7 \mu\text{m}$ ) [6].

Le présent projet consistait à générer des impulsions THz par redressement optique dans des cristaux non-linéaires sans accord de phase. Il constitue un retour à la base. Au moment où il fut mis en branle, des essais de génération et de détection résolue en temps de THz étaient en cours au laboratoire de spectroscopie femtoseconde du département de physique depuis un an, sans succès. Seuls de très faibles signaux avaient pu être détectés à l'aide d'un bolomètre, avec une antenne photoconductrice comme émetteur. Le système d'impulsions laser amplifiées venant tout juste d'être optimisé, il fut décidé de l'utiliser comme source d'impulsions excitatrices dans des cristaux non-linéaires, et de revenir à la base en faisant des essais de détection avec le bolomètre. Ce type de détection non résolue en temps, assez simple à mettre en place, permet de déterminer les conditions optimales d'émission et de propagation du faisceau THz. Il s'agissait d'une étape essentielle dans le processus devant mener à la mise en place de montages de détection résolue en temps.

La théorie de la réponse non-linéaire d'ordre 2, à la base du redressement optique et des mélanges à 3 ondes en général, est exposée au premier chapitre. L'application aux cas précis des cristaux utilisés dans le cadre du projet est ensuite vue au chapitre 2. Le chapitre 3 traite des principaux composants du montage expérimental, et une configuration typique du montage y est présentée. Les résultats des différentes études effectuées sur le rayonnement généré sont présentés et analysés au chapitre 4. Le mémoire se termine par la conclusion et la présentation de perspectives.

# CHAPITRE 1

## THÉORIE DE LA RÉPONSE NON-LINÉAIRE D'ORDRE 2

Dans le présent chapitre, un traitement classique de la réponse des semiconducteurs à un champ électrique appliqué est présenté, et les caractéristiques du terme d'ordre 2 de la réponse non-linéaire sont étudiées. C'est en effet la composante non-linéaire d'ordre 2 de la polarisation diélectrique qui est à l'origine du redressement optique et des autres mélanges à trois ondes dans les cristaux non-linéaires.

### ***1.1 Réponse d'un semiconducteur à un champ électrique appliqué***

Dans cette section, on s'intéresse à l'explication physique de la polarisation électrique dans les solides et en particulier dans les semiconducteurs.

Il est bien connu que la réponse des solides à un champ électrique appliqué varie grandement en fonction du type de matériau. La mécanique classique permet d'expliquer qualitativement le comportement des métaux et des isolants soumis à un champ électrique. Par exemple, les électrons d'un métal, que la mécanique classique considère localisés et libres, se regroupent à la surface du matériau pour annuler le champ électrique interne. À l'opposé, les électrons des couches périphériques des atomes d'un isolant, qui sont liés à un noyau atomique, ne peuvent se déplacer sur des distances plus grandes que la distance interatomique. D'un point de vue quantique, le champ électrique déforme les orbitales de ces électrons, ce qui induit une polarisation électrique dans le matériau. Dans les solides cristallins, c'est le moment dipolaire électrique qui domine la polarisation. Comme les fluctuations de la polarisation à l'échelle atomique n'influencent pas les propriétés macroscopiques du cristal, on peut ignorer ces fluctuations et assimiler la polarisation induite à un moment dipolaire électrique moyen par unité de volume  $\mathbf{P}$ .

La réponse d'un semiconducteur à un champ électrique appliqué est plus complexe à modéliser. Il est nécessaire de faire appel à des concepts quantiques pour l'expliquer. La notion de photon, et en particulier l'énergie  $\hbar\omega$  des photons du faisceau incident (où  $\hbar$  est la constante de Planck divisée par  $2\pi$ ), joue en effet un rôle crucial dans notre compréhension de la réponse d'un semiconducteur à une excitation optique. Ainsi, lorsque l'énergie des photons est insuffisante pour générer des paires électron-trou, on peut traiter un semiconducteur intrinsèque (non-dopé) comme un isolant. Par contre, lorsque l'énergie est de l'ordre de celle du gap, on doit tenir compte des contributions des paires de porteurs générées à la polarisabilité du matériau [5].

La première partie de la présente section traite du cas où  $\hbar\omega$  est plus petit que l'énergie de gap  $E_{gap}$  du semiconducteur. Une explication mathématique de l'origine des effets non-linéaires dans le cas non résonant, par le biais d'un développement en série de Taylor de  $\mathbf{P}$ , ainsi que l'application au cas du redressement optique, figurent en deuxième partie.

### 1.1.1 Réponse à une excitation non résonante

On étudie ici le cas où  $\hbar\omega$  est petit devant  $E_{gap}$ . Tel que mentionné plus haut, les photons incidents ont alors une énergie insuffisante pour faire passer des électrons de la bande de valence à la bande de conduction, et le semiconducteur se comporte comme un isolant. L'effet du champ électrique appliqué est donc de déformer les orbitales électroniques de la couche extérieure des atomes, ce qui induit des moments multipolaires électriques. Dans un cristal atomique, le moment dipolaire électrique est dominant, et on peut faire l'approximation que la polarisation électrique moyenne par élément de volume  $\mathbf{P}$  au point  $\mathbf{r}$  est égale au moment dipolaire moyen par unité de volume [7] :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \sum_i N_i \langle \mathbf{p}_i \rangle \quad (1)$$

où  $N_i$  est le nombre d'atomes de type  $i$  dans un élément de volume centré au point  $\mathbf{r}$  et  $\mathbf{p}_i$  est le moment dipolaire d'un atome de ce type. La moyenne sur  $\mathbf{p}_i$  est prise sur l'élément de volume. Or, on montre [8] que le champ électrique émis par un dipôle oscillant peut être approximé par l'équation suivante, dans la *zone radiative* :

$$\mathbf{E}_{\text{émis}}^{\text{dip}} \propto (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2)$$

où  $\mathbf{p}$  est le moment dipolaire,  $\mathbf{n}$  est un vecteur unitaire orienté selon la droite reliant le dipôle au point d'observation et  $r$  est la distance entre le dipôle et le point d'observation. La zone radiative est la région de l'espace dans laquelle la condition suivante est satisfaite [9]:

$$d \ll \lambda_{\text{émis}} \ll r \quad (3)$$

où  $d$  est de l'ordre de la dimension du dipôle et  $\lambda_{\text{émis}}$  est la longueur d'onde émise. Les dimensions caractéristiques des dipôles induits sont de l'ordre du rayon atomique, soit l'Angstrom, tandis que les longueurs d'onde auxquelles nous nous intéressons ici sont dans le domaine terahertz ( $\sim 100\mu\text{m}$ ). Par ailleurs, les distances typiques entre les cristaux non-linéaires et les détecteurs sont de l'ordre de quelques centimètres dans les montages de mélange d'ondes. La condition (3) est donc bel et bien respectée.

On a par ailleurs l'égalité vectorielle suivante :

$$(\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} = \mathbf{p}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{n}) - \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) = \mathbf{p} - \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p})$$

Le deuxième terme s'annule dans le cas où  $\mathbf{n}$  et  $\mathbf{p}$  sont perpendiculaires. On obtient alors, à partir des équations (1) et (2), la relation suivante pour un point d'observation  $\mathbf{r}$  fixe :

$$\mathbf{E}_{emis}^{dip} \propto \mathbf{P} \quad (\mathbf{n} \perp \mathbf{p}) \quad (4)$$

### 1.1.2 Développement de la polarisation en série de Taylor et effets non-linéaires

Il est utile de développer la polarisation en série de Taylor en fonction des composantes cartésiennes du champ électrique appliqué  $\mathbf{E}$ . On obtient alors, pour la composante cartésienne  $P_\alpha$  de  $\mathbf{P}$  :

$$P_\alpha(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \left( \sum_{\beta} \chi_{\alpha\beta}^{(1)} E_\beta(\mathbf{r}, t) + \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} E_\beta(\mathbf{r}, t) E_\gamma(\mathbf{r}, t) + \sum_{\beta\gamma\delta} \chi_{\alpha\beta\gamma\delta}^{(3)} E_\beta(\mathbf{r}, t) E_\gamma(\mathbf{r}, t) E_\delta(\mathbf{r}, t) + \dots \right) \quad (5)$$

Dans la dernière équation  $\varepsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ C}^2\text{N}^{-1}\text{m}^{-2}$  est la permittivité du vide. L'équation présente un modèle très simplifié dans lequel la polarisation au point  $\mathbf{r}$  et au temps  $t$  dépend seulement du champ électrique en ce point et en cet instant. En réalité, la réponse du matériau est non locale dans l'espace : la déformation du nuage électronique d'un atome induit des déformations des nuages électroniques des atomes premiers voisins, et ces déformations en causent à leur tour dans les nuages électroniques des deuxièmes voisins, et ainsi de suite. De plus, l'interaction se déplace à vitesse finie. Tous les termes composant le membre de droite de (5) doivent donc être modifiés pour tenir compte de ces considérations. Le terme d'ordre 2 s'écrit notamment:

$$P_\alpha^{(2)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \int dt_1 dt_2 \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2) E_\beta(\mathbf{r}_1, t_1) E_\gamma(\mathbf{r}_2, t_2) \quad (6)$$

Attardons-nous ici à la dépendance spatiale des éléments du tenseur d'ordre 3  $\chi^{(2)}$ . Comme la polarisation est reliée au mouvement des électrons, le rayon d'action de la polarisation générée en un point quelconque devrait être de l'ordre, d'un point de vue classique, de la longueur caractéristique  $l$  sur laquelle un électron est libre de se déplacer dans le solide. Dans un isolant ou dans le cas des électrons de la bande de valence d'un semiconducteur,  $l$  est de l'ordre du paramètre de maille, soit environ 5 Å. Dans le cas des porteurs libres dans un semiconducteur,  $l$  est plutôt de l'ordre du libre parcours moyen, soit quelques dizaines de nanomètres pour les électrons et les trous légers, et encore moins pour les trous lourds [10]. Or, la longueur d'onde  $\lambda$  associée à un faisceau d'excitation dans le domaine visible est de plusieurs centaines de nanomètres. Dans un semiconducteur, la condition suivante est donc satisfaite, que l'excitation soit résonante ou non :

$$l \ll \lambda \quad \Rightarrow \quad kl \ll 1 \quad (7)$$

Lorsque la valeur des éléments du tenseur  $\chi(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i, t-t_i)$  est appréciable uniquement dans le domaine  $|\mathbf{r}-\mathbf{r}_i| \leq l$  et que la condition (7) est satisfaite, les éléments de la transformée de Fourier  $\chi(\mathbf{k}, \omega)$  sont indépendants de  $\mathbf{k}$ . On peut donc négliger la dépendance en  $\mathbf{k}$  de  $\chi(\mathbf{k}, \omega)$ , ce qui revient à négliger l'influence de la polarisation au point  $\mathbf{r}_i$  sur celle au point  $\mathbf{r}$  dans l'espace réel  $\forall \mathbf{r}_i \neq \mathbf{r}$ . La non-localité de la polarisation est donc entièrement contenue dans la dépendance de  $\chi$  en  $t-t_i$ . En exprimant les composantes du champ électrique en fonction de leurs transformées de Fourier inverses, l'équation (5) devient donc

$$P_\alpha^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \int \frac{d\omega_1 d\omega_2 dt_1 dt_2}{2\pi} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(t-t_1, t-t_2) E_\beta(\omega_1) e^{-i\omega_1 t_1} E_\gamma(\omega_2) e^{-i\omega_2 t_2}$$

Dans la dernière équation et dans les équations suivantes, il est sous-entendu que les composantes de la polarisation et du champ électrique sont évaluées en un même point  $\mathbf{r}$ .

On effectue ensuite le changement de variable  $t-t_i \rightarrow t_i$  ( $i=1,2$ ) :

$$P_\alpha^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \int \frac{d\omega_1 d\omega_2 dt_1 dt_2}{2\pi} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(t_1, t_2) E_\beta(\omega_1) E_\gamma(\omega_2) e^{-i\omega_1(t-t_1)} e^{-i\omega_2(t-t_2)}$$

En définissant

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) \equiv \int \frac{dt_1 dt_2}{2\pi} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(t_1, t_2) e^{i\omega_1 t_1} e^{i\omega_2 t_2}, \quad (8)$$

on obtient finalement

$$P_\alpha^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \int d\omega_1 d\omega_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_\beta(\omega_1) E_\gamma(\omega_2). \quad (9)$$

L'équation (9) permet de constater que le spectre de la polarisation non-linéaire d'ordre 2 contient un terme en  $\omega_1 + \omega_2$ . Il ne faut toutefois pas oublier que le champ électrique est en fait donné par la partie réelle de la représentation exponentielle complexe. Ainsi l'enveloppe temporelle d'une onde plane monochromatique devrait plutôt s'écrire

$$E_\beta(t) = \frac{E_\beta}{2} [e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}]. \quad (10)$$

En tenant compte des termes de phase positifs et négatifs dans le développement menant à (9), on arrive au résultat que la polarisation non-linéaire d'ordre 2 comprend également des termes en  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$  et  $\omega_1 - \omega_2$ . Lorsque les termes en  $\omega_1 \pm \omega_2$  proviennent de l'interaction de composantes de champ électrique associées à deux faisceaux différents, on parle de *mélange à trois ondes*, la troisième étant l'onde générée à la somme ou à la différence des fréquences. La génération de termes en  $\omega_1 - \omega_2$  à partir de composantes d'un même faisceau porte le nom de *redressement optique*.

Il est par ailleurs utile d'exprimer la polarisation dans le domaine des fréquences. La transformée de Fourier de (9) donne, en considérant cette fois les termes en  $\pm(\omega_1 - \omega_2)$  et en tenant compte des facteurs  $1/2$  de (10):

$$P_{\alpha}^{(2)}(\omega) = \frac{\epsilon_0}{4} \int d\omega_1 d\omega_2 \sum_{\beta\gamma} E_{\beta}(\omega_1) E_{\gamma}(\omega_2) \times \left\{ \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) \delta[\omega - (\omega_1 - \omega_2)] + \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1; -\omega_1, \omega_2) \delta[\omega - (\omega_2 - \omega_1)] \right\} \quad (11)$$

On obtient finalement, après intégration :

$$P_{\alpha}^{(2)}(\omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{(\omega_1', \omega_2')} \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega; \omega_1', -\omega_2') E_{\beta}(\omega_1') E_{\gamma}(\omega_2') \quad (12)$$

Dans l'équation (12), la première somme est faite sur les paires  $(\omega_1', \omega_2')$  du spectre du champ électrique qui remplissent la condition  $\omega_1' - \omega_2' = \omega$ . Pour en arriver à ce résultat, nous avons aussi utilisé la propriété de *symétrie intrinsèque* du tenseur  $\chi^{(2)}$  [11] :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega; \omega_1', \omega_2') = \chi_{\alpha\gamma\beta}^{(2)}(\omega; \omega_2', \omega_1') \quad (13)$$

La permutation qu'on effectue sur le membre de gauche de (13) pour obtenir le membre de droite donne en effet le même résultat pour  $\mathbf{P}^{(2)}$ , comme on peut le constater dans (9). La symétrie intrinsèque est donc présente dans tous les systèmes cristallins et dans tous les processus non-linéaires d'ordre 2 (on peut en fait montrer que les tenseurs d'ordre supérieur sont eux aussi invariants sous inversion de paires fréquence-indice). Un examen plus détaillé des propriétés de symétrie du tenseur de susceptibilité sera fait à la section suivante.

## 1.2 Caractéristiques de la réponse non-linéaire

### 1.2.1 Ordre de la réponse non-linéaire vs symétrie du cristal

La mécanique quantique permet, via un développement perturbatif au deuxième ordre de la polarisation diélectrique  $\mathbf{P}$ , d'en arriver au résultat suivant, où  $r$  est la norme du vecteur position [12] :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) \propto r^3 \quad (14)$$

Les différents éléments du tenseur  $\chi^{(2)}$  changent donc de signe sous inversion des coordonnées. Dans les matériaux avec centre d'inversion, cette condition peut uniquement être satisfaite si tous les éléments de  $\chi^{(2)}$  sont nuls :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) = 0 \quad \forall \alpha, \beta, \gamma$$

Ainsi, les effets non-linéaires d'ordre 2 ne peuvent avoir lieu que dans les matériaux ne possédant pas de centre d'inversion.

### 1.2.2 Symétrie de Kleinman et notation 3x6

Pour un couple de fréquences donné de l'équation (12), on peut écrire la relation entre la polarisation diélectrique d'ordre 2 et le champ électrique sous forme tensorielle :

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \varepsilon_0 \mathbf{d}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2), \quad (15)$$

où

$$\mathbf{d}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) = \frac{1}{2} \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2). \quad (16)$$

Le tenseur  $\mathbf{d}$ , d'ordre et de rang 3, possède des propriétés de symétrie qui permettent de simplifier la notation. Notons d'abord que tout comme  $\chi^{(2)}$ ,  $\mathbf{d}$  possède la propriété de symétrie intrinsèque (13). Par ailleurs, lorsque les fréquences des ondes excitatrice et générée sont petites devant les fréquences de transition du cristal (c'est-à-dire lorsque le solide est transparent à toutes les longueurs d'onde impliquées), tous les arguments en fréquence et tous les indices cartésiens sont interchangeable [13]. Cette condition est appelée *symétrie de Kleinman* [14].

$$\mathbf{d}_{\alpha\beta\gamma}(\omega; \omega_1, \omega_2) = \mathbf{d}_{\alpha\beta\gamma}(\omega; \omega_2, \omega_1) = \mathbf{d}_{\alpha\beta\gamma}(\omega_1; \omega, \omega_2) = \dots \quad (17)$$

$$\mathbf{d}_{\alpha\beta\gamma}(\omega; \omega_1, \omega_2) = \mathbf{d}_{\alpha\gamma\beta}(\omega; \omega_1, \omega_2) = \mathbf{d}_{\beta\alpha\gamma}(\omega; \omega_1, \omega_2) = \dots$$

On peut alors représenter  $\mathbf{d}$  par une matrice 3x6 en omettant les arguments en fréquence, devenus inutiles:

$$\begin{bmatrix} P_x^{(2)}(\omega) \\ P_y^{(2)}(\omega) \\ P_z^{(2)}(\omega) \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_y(\omega_2)E_z(\omega_1) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_x(\omega_2)E_z(\omega_1) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_x(\omega_2)E_y(\omega_1) \end{bmatrix} \quad (18)$$

Dans le cas du redressement optique, on peut généralement faire une autre approximation. En effet, la largeur de bande en fréquence d'une impulsion laser femtoseconde dont le spectre est centré à 800 nm est typiquement de l'ordre de quelques dizaines de THz, tandis que la fréquence de l'onde générée est de l'ordre du THz. La dispersion et l'absorption du rayonnement dans l'échantillon imposent en effet une limite supérieure à la plage de

fréquences THz pouvant être détectées à la sortie du cristal. En fait, plus l'échantillon est épais, plus la fréquence maximale générée est faible [1]. Dans ces conditions, le signal généré à la différence des fréquences est appréciable seulement dans le cas des paires de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  voisines de la fréquence centrale  $\omega_0$  du spectre de l'impulsion excitatrice. Si on se limite à ces fréquences proches de  $\omega_0$ , on peut réécrire (18) sous la forme approximative suivante, où les composantes du champ sont évaluées à  $\omega_0$  :

$$\begin{bmatrix} P_x^{(2)}(\omega) \\ P_y^{(2)}(\omega) \\ P_z^{(2)}(\omega) \end{bmatrix} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{bmatrix} \quad (19)$$

Rappelons que l'expression (19) s'applique loin des résonances et uniquement dans le cas du redressement optique.

Comme nous le verrons au chapitre suivant, la symétrie du cristal permet de simplifier davantage le tenseur  $\mathbf{d}$ .

## **CHAPITRE 2**

### **APPLICATION AUX CRISTAUX UTILISÉS POUR LE PROJET**

Le présent chapitre traite de l'application des équations obtenues au chapitre 1 au cas des cristaux utilisés pour le projet. Après une présentation des cristaux en première partie, l'application des équations aux groupes cristallographiques concernés est effectuée en deuxième partie. Un survol du problème de la réponse du GaAs à une excitation résonante est fait en troisième partie, puisque, comme nous le verrons plus loin, l'énergie des photons du faisceau excitateur du montage expérimental était supérieure à l'énergie de gap du GaAs.

#### ***2.1 Cristaux utilisés pour le projet***

Rappelons que trois types de cristaux ont été utilisés dans le cadre du projet: ZnTe, GaAs et GaSe. Leurs principales caractéristiques sont résumées au tableau 1. Les trois cristaux, des semiconducteurs à gap direct, ont entre autres été choisis pour leur indice de non-linéarité d'ordre 2 élevé. De plus, le GaSe présente deux autres avantages importants : une plage de transparence s'étendant de 3 à 20  $\mu\text{m}$ , et une biréfringence non négligeable rendant possible la génération de rayonnement à la différence des fréquences en condition d'accord de phase [15]. Par ailleurs, des matériaux comme le GaAs et le ZnTe sont fréquemment utilisés pour la détection électro-optique de faisceaux THz [16]. L'intérêt d'une étude des caractéristiques du redressement optique dans ces cristaux est élevé, le redressement optique étant en quelque sorte le processus inverse de l'effet électro-optique. On peut en effet considérer le redressement optique comme la génération d'un champ «statique» (à la différence des fréquences) à partir d'une impulsion ultra-brève, tandis que dans l'effet électro-optique, c'est le champ statique appliqué à un matériau qui modifie les propriétés de ce dernier (en changeant l'orientation des axes principaux) et altère l'impulsion incidente.

La surface de l'échantillon de GaSe est orientée dans le seul plan cristallographique selon lequel l'échantillon peut être coupé, soit le plan (001). Si cette absence de choix quant à la direction de la surface peut limiter la plage des longueurs d'onde pouvant être amplifiées en condition d'accord de phase, l'orientation (001) est idéale en l'absence d'accord de phase. En effet, comme nous le verrons plus loin, la composante en  $z$  du champ électrique exciteur  $E$  ne génère pas de polarisation d'ordre 2 dans les cristaux du groupe  $\bar{6}2m$ . Comme  $E_z = 0$  lorsque le faisceau exciteur frappe le cristal de GaSe à incidence normale,  $P^{(2)}$  est maximisée dans cette configuration.

**Tableau 1.** Échantillons utilisés pour le projet. L'orientation des surfaces est exprimée dans le système d'axes du cristal à l'aide des indices de Miller [17].

Matériau	Groupe cristallographique	Orientation de la surface	Coefficient de non-linéarité d'ordre 2 (pm/V)	Épaisseur (mm)
GaAs	$43m$	(110)	$d_{14}(10,6 \mu\text{m}) = 90$ [18]	0,4
GaSe	$\bar{6}2m$	(001)	$d_{22}(10,6 \mu\text{m}) = 54$ [15]	1
ZnTe	$43m$	(110)	$d_{14}(1,32 \mu\text{m}) = 52$ [19]	1

Dans le cas des cristaux du groupe  $43m$ , l'utilisation d'échantillons dont la surface serait orientée perpendiculairement à un axe cristallographique minimiserait la polarisation d'ordre 2 générée à incidence normale, comme nous le verrons à la section suivante. L'utilisation de cristaux coupés selon les plans cristallographiques (110) ou (111) est donc préférable.

## 2.2 Réponse non-linéaire d'ordre 2 des cristaux des groupes $\bar{6}2m$ et $43m$

La symétrie du tenseur de susceptibilité dans les différents groupes cristallographiques a déjà été étudiée et est bien répertoriée dans la littérature scientifique [20, 21]. Nous nous contenterons ici de donner les propriétés de symétrie de  $\mathbf{d}$  pour les deux types de cristaux utilisés dans le cadre de ce projet, soit les cristaux des groupes  $43m$  (cristaux à structure de blende) et  $\bar{6}2m$ . Ces propriétés de symétrie permettront ensuite d'obtenir la dépendance du champ THz généré par redressement optique en fonction de l'orientation du champ électrique du faisceau incident relativement à l'échantillon.

### Précision sur la notation utilisée pour la polarisation d'ordre 2

Afin d'alléger la notation, l'argument en fréquence et l'indice du terme d'ordre 2 de  $\mathbf{P}$  seront omis à partir d'ici. Lorsque  $\mathbf{P}$  apparaîtra dans les équations, il sera sous-entendu qu'il sera question de  $\mathbf{P}^{(2)}(\omega)$ , où  $\omega$  est la différence entre deux fréquences du spectre du faisceau excitateur.

#### 2.2.1 Cristaux du groupe $43m$ coupés dans le plan (110)

Dans des cristaux  $43m$  comme le ZnTe et le GaAs, les seuls éléments non nuls du tenseur de susceptibilité sont  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$  [22]. On peut donc écrire, à partir de (19) :

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = 2\varepsilon_0 d_{14} \begin{bmatrix} E_y E_z \\ E_x E_z \\ E_x E_y \end{bmatrix} \quad (20)$$

La dernière équation confirme ce qui était avancé à la section précédente : dans le cas où le champ excitateur frappe à incidence normale un cristal du groupe  $43m$  coupé selon les plans

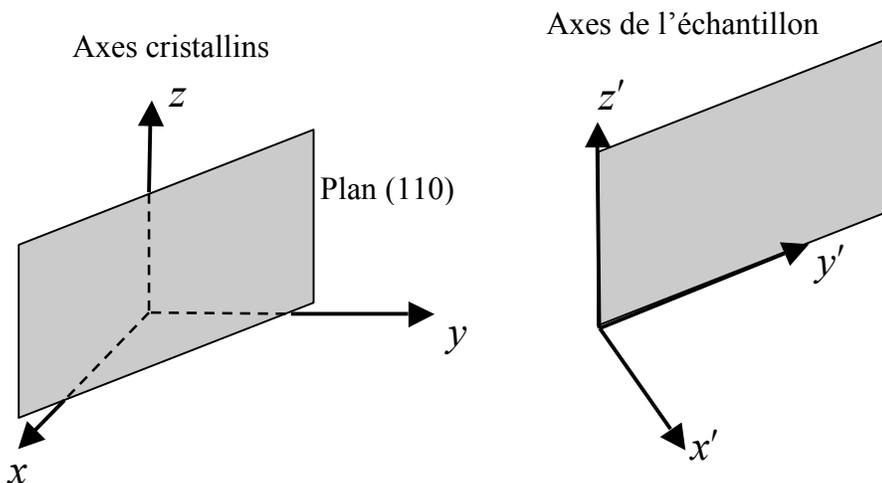
(100), (010) ou (001), l'une de ses composantes dans le système d'axes du cristal est nulle, ce qui implique que 2 des 3 composantes de  $\mathbf{P}$  sont nulles. La polarisation générée est alors plus faible que dans le cas d'échantillons coupés dans les plans (110) ou (111).

Dans le cas d'un échantillon coupé dans le plan (110) excité à incidence normale, le champ  $\mathbf{E}$  est orienté dans ce plan, et l'amplitude de  $\mathbf{E}$  est la même selon  $x$  que selon  $y$ . En fonction de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z$ , on écrit :

$$\mathbf{E} = E_0(\sin\theta/\sqrt{2}, -\sin\theta/\sqrt{2}, \cos\theta) \quad (21)$$

Il est commode de définir un nouveau système d'axes, dans lequel 2 des axes sont situés dans le plan de la surface de l'échantillon (cf. figure 1):

$$\begin{bmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ y \\ z \end{bmatrix} \quad (22)$$



**Figure 1.** Changement de coordonnées dans le cas des cristaux du groupe  $43m$ .

En substituant dans (20) les composantes de  $\mathbf{E}$  telles que définies dans (21) pour obtenir  $\mathbf{P}$ , puis en exprimant  $\mathbf{P}$  dans la base des axes de l'échantillon à l'aide de (22), on obtient la relation suivante [22] :

$$\begin{bmatrix} P_{x'} \\ P_{y'} \\ P_{z'} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ \sin(2\theta) \\ -\sin^2 \theta \end{bmatrix} \quad (23)$$

Comme on peut le voir dans l'équation (23), la polarisation diélectrique est parallèle à la surface de l'échantillon. Ainsi lorsqu'on place le détecteur dans la direction de propagation du faisceau et que ce dernier frappe l'échantillon à incidence normale, la condition  $\mathbf{n} \perp \mathbf{p}$  est satisfaite (cf. section 1.1.1), et la relation (4) s'applique : le champ THz généré est parallèle à la polarisation diélectrique d'ordre 2. On peut donc écrire

$$\begin{bmatrix} E_{THz}^{y'} \\ E_{THz}^{z'} \end{bmatrix} = C_1 \begin{bmatrix} \sin(2\theta) \\ -\sin^2 \theta \end{bmatrix}, \quad (24)$$

où  $C_1$  est indépendante de  $\theta$ .

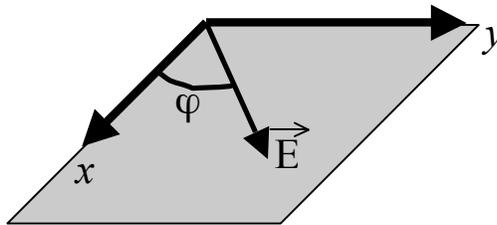
### 2.2.2 Cristal de GaSe de surface parallèle au plan xy

Le GaSe est un semiconducteur à grand gap faisant partie du groupe cristallographique  $\bar{6}2m$  [23]. Les seuls éléments non nuls du tenseur de susceptibilité des cristaux de ce groupe sont  $d_{16} = d_{21} = -d_{22}$  [20]. La polarisation d'ordre 2 induite dans un échantillon de GaSe dont la surface est orientée selon le plan (001) est donc parallèle à la surface. Si la droite reliant le

détecteur à l'échantillon est perpendiculaire à la surface de ce dernier, on a là aussi  $\mathbf{n} \perp \mathbf{p}$ , et la polarisation du champ THz généré est parallèle à  $\mathbf{P}^{(2)}$ . Dans le cas où le faisceau incident frappe l'échantillon à incidence normale,  $\mathbf{E}$  est dans le plan  $xy$  (cf. figure 2), et les composantes du champ peuvent être exprimées en fonction de l'angle azimutal  $\varphi$  entre  $\mathbf{E}$  et  $x$ . En substituant dans (19) et en tenant compte des valeurs mentionnées plus haut pour les éléments de  $\mathbf{d}$ , on obtient l'équation suivante pour le champ THz:

$$\begin{bmatrix} E_{THz}^x \\ E_{THz}^y \end{bmatrix} = C_2 \begin{bmatrix} \sin(2\varphi) \\ \cos(2\varphi) \end{bmatrix} \quad (25)$$

Dans la dernière équation,  $C_2$  est une constante indépendante de  $\varphi$ .



**Figure 2.** Champ électrique associé à un faisceau frappant perpendiculairement la surface d'un échantillon coupé dans le plan (001).

### 2.2.3 Cas du GaAs : excitation résonante

Le traitement effectué jusqu'à maintenant s'applique dans les cas où les énergies associées aux photons du faisceau excitateur et du faisceau THz se trouvent loin des résonances du matériau. La condition de symétrie de Kleinman est alors remplie, et  $\chi^{(2)}$  est effectivement indépendant de ses arguments en fréquence. Le tableau 2 fait toutefois ressortir le fait que l'énergie des photons du faisceau d'excitation utilisé pour le présent projet est supérieure à l'énergie de gap du GaAs.

**Tableau 2.** Énergie de gap à 300 K des semiconducteurs utilisés vs énergie des photons associés à la longueur d'onde centrale du spectre du faisceau d'excitation.

Semiconducteur	Énergie (eV)
GaAs	1,43 [24]
GaSe	1,97 [25]
ZnTe	2,26 [24]
<b>Photons de l'impulsion excitatrice</b>	1,55 ± 0,04 <sup>1</sup>

La symétrie de Kleinman n'est donc pas valide dans le cas d'un échantillon de GaAs excité à l'aide d'impulsions présentant les caractéristiques spectrales du faisceau émis par l'oscillateur utilisé pour le projet. De plus, le traitement classique expliquant le redressement optique à l'aide de la polarisation **P** pose problème, les électrons de la bande de conduction n'étant pas rattachés à un atome en particulier. La réponse des semiconducteurs à une excitation résonante, et surtout le lien de cette réponse avec l'optique non-linéaire, sont encore mal compris.

J.B. Khurgin [26] a néanmoins avancé un modèle reposant sur la polarisation pour traiter le problème de la réponse du GaAs à une excitation résonante. Selon ce modèle, qui s'appuie sur des calculs numériques de la structure de bande du GaAs, les électrons n'interviennent pas dans l'émission de rayonnement THz, chacun des états électroniques au voisinage du gap possédant un moment dipolaire nul. La durée de l'émission THz serait plutôt entièrement déterminée par le temps de relaxation des trous dans la bande de valence. Le principal

---

<sup>1</sup> La largeur  $\Delta E$  du spectre en énergie des photons du faisceau d'excitation a été estimée à partir de la relation  $\Delta E \approx (hc/\lambda^2) \cdot \Delta\lambda$ , où  $\lambda = 800$  nm et  $\Delta\lambda = 35$  nm, qui représentent respectivement la longueur d'onde centrale de l'impulsion et sa largeur à mi-hauteur, ont été mesurés au laboratoire.

problème de ce modèle est qu'il pose que les états électroniques de la bande de conduction sont formés de combinaisons linéaires d'orbitales liées.

Plus récemment, D. Côté *et al* [5] ont présenté une explication des effets non-linéaires dans le GaAs qui repose sur la densité de courant. Les auteurs tiennent compte de la contribution des paires de porteurs à la réponse d'ordre 2, ce qui mène à l'équation suivante (en utilisant la notation des auteurs) :

$$\chi_2(\Omega; \omega, -\omega + \Omega) = \chi_2'(\Omega; \omega, -\omega + \Omega) + \frac{\sigma_2(\Omega; \omega, -\omega + \Omega)}{-i\Omega} + \frac{\eta_2(\Omega; \omega, -\omega + \Omega)}{(-i\Omega)^2} \quad (26)$$

Dans la dernière équation,  $\chi_2'$  est associé au *courant de redressement*, c'est-à-dire à la contribution non-résonante provenant des paires de bandes séparées par une énergie plus grande que  $\hbar\omega$ . Le *courant de déplacement*, causé comme son nom l'indique par le déplacement du centre de charge des électrons passant de la bande de valence à la bande de conduction, est représenté par  $\sigma_2$ . Finalement,  $\eta_2$  est associé au courant d'injection, qui provient de l'interférence quantique entre des photons du faisceau exciteur de polarisations différentes. Notons que dans les cristaux du groupe  $43m$  comme le GaAs, le courant d'injection est identiquement nul [5].

Les relations entre les susceptibilités de (26) et les enveloppes temporelles du champ exciteur  $\mathbf{E}$  et des courants de redressement  $\mathbf{J}_{redr}$  et de déplacement  $\mathbf{J}_{dép}$  sont données par [5] :

$$J_{redr}(t) = 2\varepsilon_0 \chi_2'(0; \omega, -\omega) \frac{\partial}{\partial t} E(t) E^*(t) \quad (27)$$

$$J_{dép}(t) = 2\varepsilon_0 \sigma_2(0; \omega, -\omega) E(t) E^*(t) \quad (28)$$

Le groupe rapporte avoir obtenu une intensité THz environ 5 fois plus grande en excitant un échantillon de GaAs d'une épaisseur de  $100\ \mu\text{m}$  au-dessous du gap qu'en excitant ce même échantillon au-dessus du gap. Or, la distance d'interaction de  $\mathbf{J}_{\text{dép}}$ , égale à la longueur de pénétration du faisceau d'excitation dans le GaAs ( $< 1\ \mu\text{m}$  [5]), est nettement inférieure à la distance d'interaction de  $\mathbf{J}_{\text{redr}}$ . Cette dernière, déterminée par la longueur de cohérence du rayonnement généré par redressement optique en l'absence d'accord de phase, est en effet légèrement inférieure à  $100\ \mu\text{m}$  [5]. En comparant les signaux obtenus avec les excitations résonante et non-résonante et en tenant compte des longueurs d'interaction des deux types de courants, Côté *et al.* en arrivent à la conclusion que  $J_{\text{dép}} \approx 570 J_{\text{redr}}$ .

Il découle de tout ceci que le courant de déplacement est dominant dans le GaAs lorsque l'excitation est résonante. Il est donc tout à fait possible que la dépendance en  $\theta$  du champ THz généré en excitant l'échantillon de GaAs au-dessus du gap diffère substantiellement de la relation (24), obtenue dans le cas d'une excitation non-résonante.

## **CHAPITRE 3**

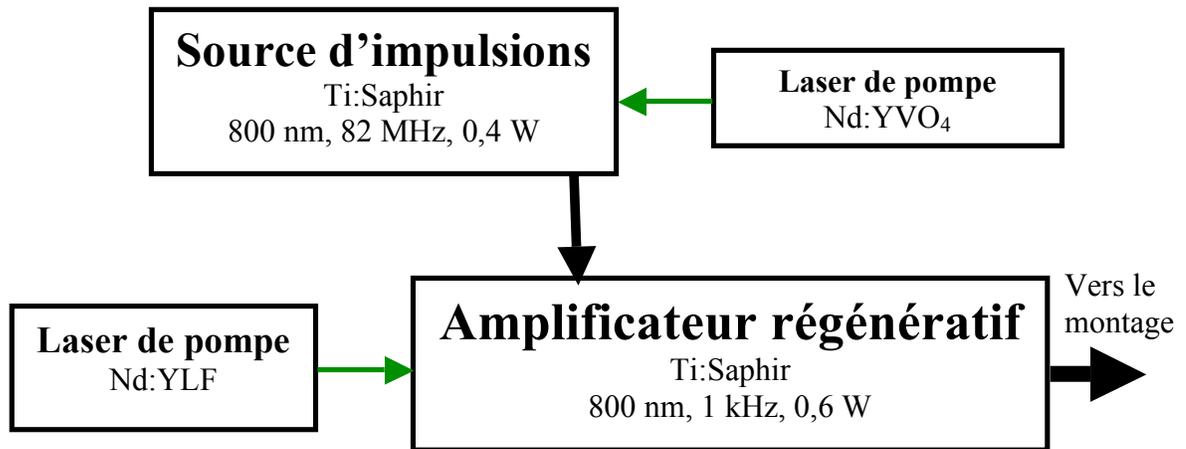
### **MONTAGE EXPÉRIMENTAL**

Le présent chapitre est consacré à la description des éléments principaux du montage expérimental utilisé dans le cadre du projet. Le système laser générant les impulsions excitatrices, dont le spectre est centré dans le proche infrarouge (800 nm), est présenté en première partie. La deuxième partie porte sur le fonctionnement du bolomètre utilisé pour la détection. Un survol du montage expérimental dans son ensemble est fait en troisième partie.

#### ***3.1 Système laser émettant dans le proche infrarouge***

Un modèle classique permet de montrer qu'en présence d'un champ électrique  $\mathbf{E}$  appliqué sur un diélectrique ou un semiconducteur, le ratio entre  $\mathbf{P}^{(2)}$  et  $\mathbf{P}^{(1)}$  est typiquement de l'ordre de  $|\mathbf{E}|/|\mathbf{E}_{at}|$ , où  $\mathbf{E}_{at}$  est le champ électrique atomique ressenti par les électrons des couches externes d'un atome. Pour que  $\mathbf{P}^{(2)}$  soit significatif,  $|\mathbf{E}|$  doit donc être comparable à  $|\mathbf{E}_{at}|$ , qui est typiquement de l'ordre de  $3 \times 10^8$  V/cm [27]. Or, seul le champ électrique associé à une impulsion laser ultra-brève est suffisamment élevé pour remplir cette condition.

Un schéma du système laser émettant des impulsions ultra-brèves dans le proche infrarouge est présenté à la figure 3. Son élément principal est un oscillateur fonctionnant en *verrouillage de modes*, c'est-à-dire que les termes de phase ne dépendent ni de la position ni du temps sont corrélés pour tous les modes longitudinaux permis par la longueur de la cavité. Il en résulte que les modes interfèrent constructivement en un seul endroit dans la cavité, ce qui donne lieu à impulsion très intense et très étroite dont l'intensité de crête est proportionnelle au carré du nombre de modes impliqués [28].



**Figure 3.** Schéma du système laser.

Le milieu actif est un barreau de saphir dopé au titane (Ti:Saphir), dans lequel l'inversion de population est créée par pompage optique à l'aide d'une source laser Nd:YVO<sub>4</sub> doublée en fréquence et émettant en continu à 532 nm. L'inversion de population dans le barreau de Nd:YVO<sub>4</sub> est elle-même produite par pompage optique à l'aide de barrettes de diodes laser émettant dans le proche infrarouge.

L'oscillateur Ti:Saphir émet un train d'impulsions d'environ 50 fs dont le spectre est centré à 800 nm. Le taux de répétition de l'oscillateur, égal à l'inverse du temps mis par une impulsion pour faire un aller-retour dans la cavité, est de 82 MHz. En combinant cette valeur avec la puissance moyenne de 400 mW, mesurée à l'aide d'un puissance-mètre, on obtient une énergie par impulsion à la sortie d'environ 5 nJ.

Afin d'atteindre une intensité suffisante pour générer une polarisation d'ordre 2 non négligeable dans les cristaux non-linéaires, les impulsions doivent cependant être amplifiées. Le train d'impulsions est donc dirigé vers l'amplificateur régénératif, qui fonctionne en trois étapes. La première permet d'étirer les impulsions en décalant leurs différentes composantes en fréquence à l'aide d'un arrangement de réseaux et de miroirs. Ceci est nécessaire pour éviter d'endommager les composants optiques de la cavité servant à l'amplification, qui

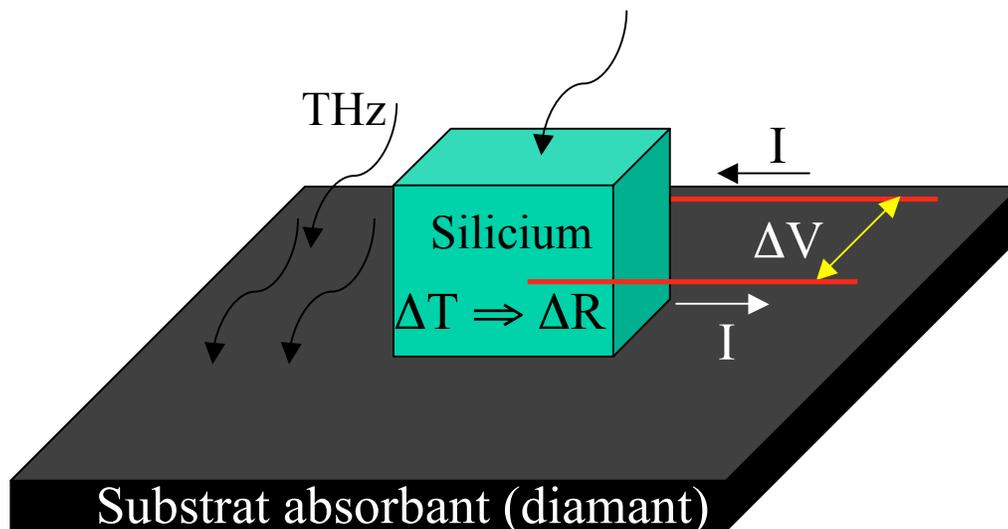
constitue la deuxième étape. Lors de cette étape, l'impulsion germe (ou *seed*, en anglais) est emprisonnée dans une cavité laser lorsqu'une cellule de Pockels située à l'intérieur de celle-ci est mise sous tension. L'impulsion effectue alors de nombreux allers-retours dans la cavité, qui comprend un barreau de Ti:Saphir, dans lequel s'effectue l'amplification. L'inversion de population dans le barreau est produite à l'aide d'une source laser pompe Nd:YLF doublée en fréquence et émettant à 526 nm. Ce laser, qui fonctionne en commutation de pertes (Q-switch), émet des impulsions d'une durée de l'ordre de la centaine de nanosecondes à un taux de répétition de 1 kHz. La mise sous tension d'une deuxième cellule de Pockels dans la cavité permet ensuite de sélectionner l'une des impulsions amplifiées et de la diriger vers la troisième partie de l'amplificateur, l'étage de compression. Cette étape est essentiellement l'inverse de la première : l'impulsion se propage dans un arrangement de réseaux et de miroirs, ce qui élimine le décalage temporel entre ses composantes spectrales.

À la sortie de l'amplificateur, la puissance moyenne est approximativement de 0,6 W à un taux de répétition de 1 kHz, ce qui donne une énergie par impulsion de 0,6 mJ. Les impulsions sont donc amplifiées d'un facteur de l'ordre de  $10^5$ . La mesure de la durée des impulsions à l'aide d'un autocorrélateur a donné une valeur d'environ 50 fs, pour une puissance instantanée de l'ordre de 10 GW. Les impulsions sont ensuite dirigées vers le montage de redressement optique proprement dit, où elles sont maintenant suffisamment intenses pour générer une polarisation d'ordre 2 significative.

### **3.2 Bolomètre**

La détection de rayonnement dans l'infrarouge lointain ne peut être réalisée à l'aide de détecteurs composés de semiconducteurs. L'énergie associée aux photons d'un faisceau THz est en effet nettement insuffisante pour générer des paires de porteurs dans les semiconducteurs conventionnels. Le type de détecteur le plus répandu pour les mesures d'intensité moyenne dans les domaines de l'infrarouge moyen et lointain est le bolomètre.

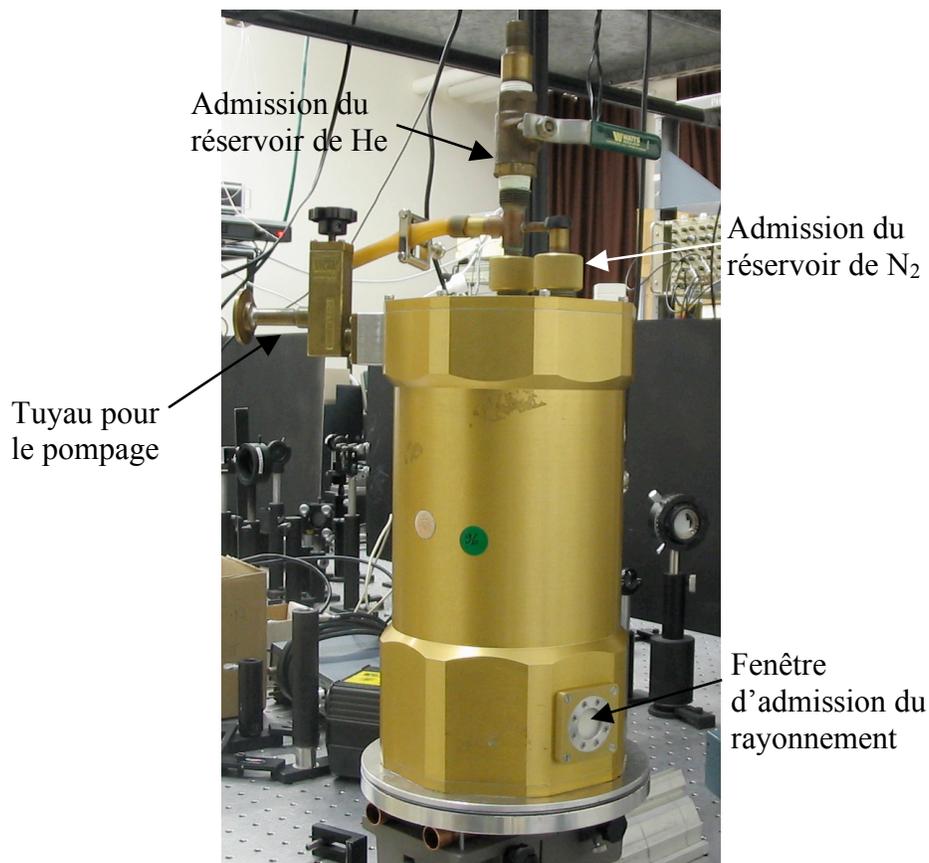
Un schéma des composants principaux du bolomètre composite utilisé pour le projet est montré à la figure 4. On fait circuler un courant constant  $I$  dans un morceau de silicium en contact thermique avec une plaque de diamant, un matériau dont la capacité calorifique est 60 fois moindre que celle du Si. La présence de la plaque, dont la dimension est de 3 mm x 3 mm, permet d'augmenter la surface de détection tout en gardant la constante de temps thermique de l'appareil à une valeur compatible avec le type de mesures effectuées en laboratoire. L'absorption de rayonnement par la plaque et par le morceau de Si augmente la température interne de ce dernier, ce qui cause une augmentation  $\Delta R$  de la résistance électrique. Le changement de tension  $\Delta V$  aux bornes de l'échantillon de Si qui en découle est ensuite dirigé vers le circuit d'amplification du bolomètre.



**Figure 4.** Principe de fonctionnement du bolomètre composite.

L'échantillon de Si et la plaque de diamant sont plongés dans l'hélium liquide afin de garder le bruit thermique au minimum. Le réservoir d'hélium est entouré d'un compartiment à vide et d'un réservoir d'azote liquide afin de minimiser les échanges radiatifs et thermiques avec l'air environnant.

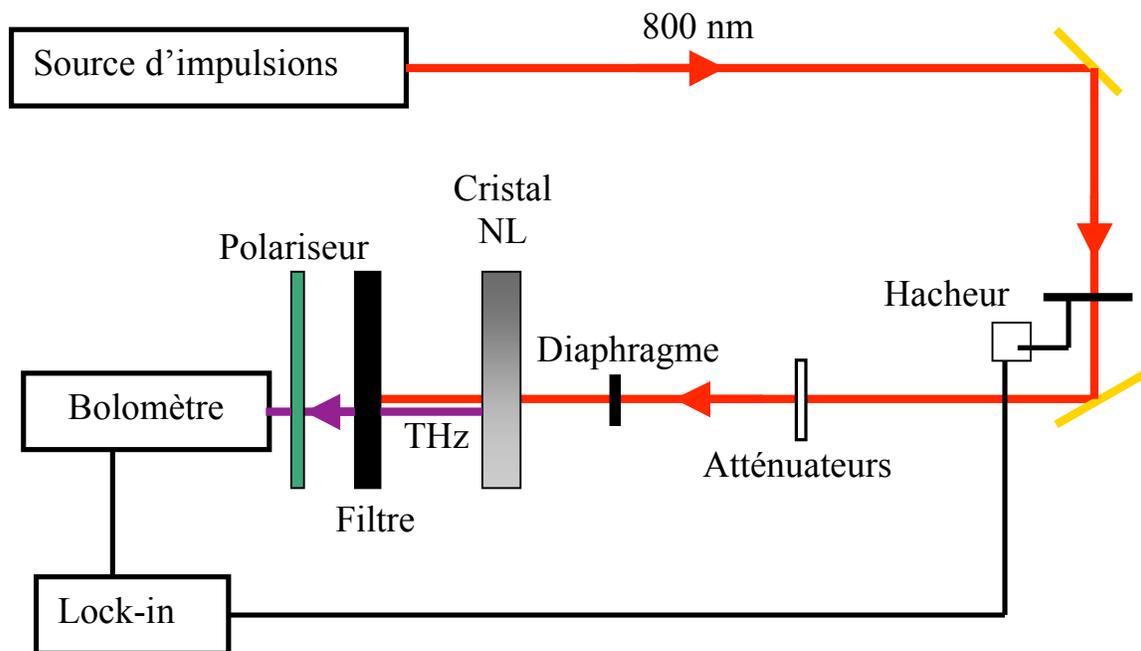
La radiation pénètre dans le bolomètre par une fenêtre de polyéthylène dont la face interne est recouverte d'une mince couche de poudre de diamant (cf figure 5). C'est la plage de transmittance de cette couche qui détermine la fréquence de coupure supérieure du détecteur : les longueurs d'onde inférieures à  $27\ \mu\text{m}$  sont coupées. La radiation entrante est recueillie par un cône parabolique recouvert d'un revêtement d'or pour ensuite être dirigée vers le morceau de Si et la plaque de diamant.



**Figure 5.** Le bolomètre utilisé pour la détection du rayonnement THz.

### 3.3 Ensemble du montage

Une vue d'ensemble d'une configuration typique de montage est présentée à la figure 6. Les impulsions amplifiées émises par l'amplificateur régénératif sont hachées à une fréquence éloignée de 60 Hz et de 120 Hz afin de minimiser le bruit provenant des lumières de la pièce et des appareils électriques alimentés par la tension de secteur.



**Figure 6.** Montage typique utilisé pour la génération et la détection de THz.

Lors des manipulations effectuées avec le ZnTe et avec le GaSe, les impulsions excitatrices étaient atténuées avec des filtres neutres afin d'éviter d'endommager les échantillons. Des filtres +2 et +3 étaient systématiquement utilisés dans les expériences nécessitant un maximum d'intensité THz. Avec le GaAs, aucun atténuateur n'était mis en place, étant donné la faiblesse

du signal THz généré avec ce matériau. De plus, la disponibilité de nombreux morceaux de GaAs rendait moins critiques les manipulations effectuées avec ceux-ci. La position du compresseur de l'amplificateur régénératif était réajustée après chaque changement de filtre, afin de compenser la dispersion chromatique (et l'étalement de l'impulsion qui en découle) survenant lors du passage des impulsions dans les atténuateurs.

Après son passage dans un diaphragme servant à contrôler son diamètre, le faisceau d'excitation est dirigé à incidence normale vers le cristal non-linéaire, où le faisceau THz généré par redressement optique est émis dans la direction de propagation du train d'impulsions excitatrices. Une pellicule de polymère découpée dans un sac d'emballage de cartouches d'imprimante fait office de filtre et permet de se débarrasser du faisceau d'excitation résiduel tout en gardant le faisceau THz. Dans les expériences nécessitant la mesure de l'amplitude du champ THz selon un axe donné, un polariseur est placé immédiatement après le filtre pour sélectionner la composante d'intérêt. Ce polariseur de plastique, conçu spécialement pour être utilisé avec des faisceaux des domaines de l'infrarouge moyen et lointain, laisse passer le rayonnement THz dont la polarisation est orientée selon son axe, contrairement aux polariseurs conventionnels, qui absorbent le THz peu importe la polarisation.

Le faisceau THz pénètre ensuite dans le bolomètre, où il génère un signal qui est amplifié par l'appareil avant d'être relayé à l'amplificateur synchrone (lock-in), dont le signal de référence provient du hacheur.

Pour chacun des points expérimentaux, la tension affichée par l'amplificateur synchrone était observée pendant une vingtaine de secondes. La valeur médiane affichée par l'appareil au cours de ce laps de temps était prise en note, et l'incertitude était déterminée comme étant égale à la moitié de l'étendue de la plage de valeurs sur laquelle le signal oscillait.

## **CHAPITRE 4**

### **RÉSULTATS ET ANALYSE**

Les résultats des diverses études effectuées sur le faisceau THz sont présentés et analysés dans le présent chapitre. Les particularités de chacune des configurations du montage sont également présentées. La première partie porte sur les mesures effectuées pour vérifier si le rayonnement généré présentait la dépendance attendue en fonction de l'orientation des échantillons par rapport à la polarisation du faisceau d'excitation. La deuxième partie regroupe l'étude de caractéristiques importantes du rayonnement généré, dans le contexte de la mise en place d'un montage de spectroscopie THz : atténuation du faisceau dans l'air, diamètre et divergence du faisceau, et variation de l'intensité THz en fonction de l'intensité du faisceau d'excitation.

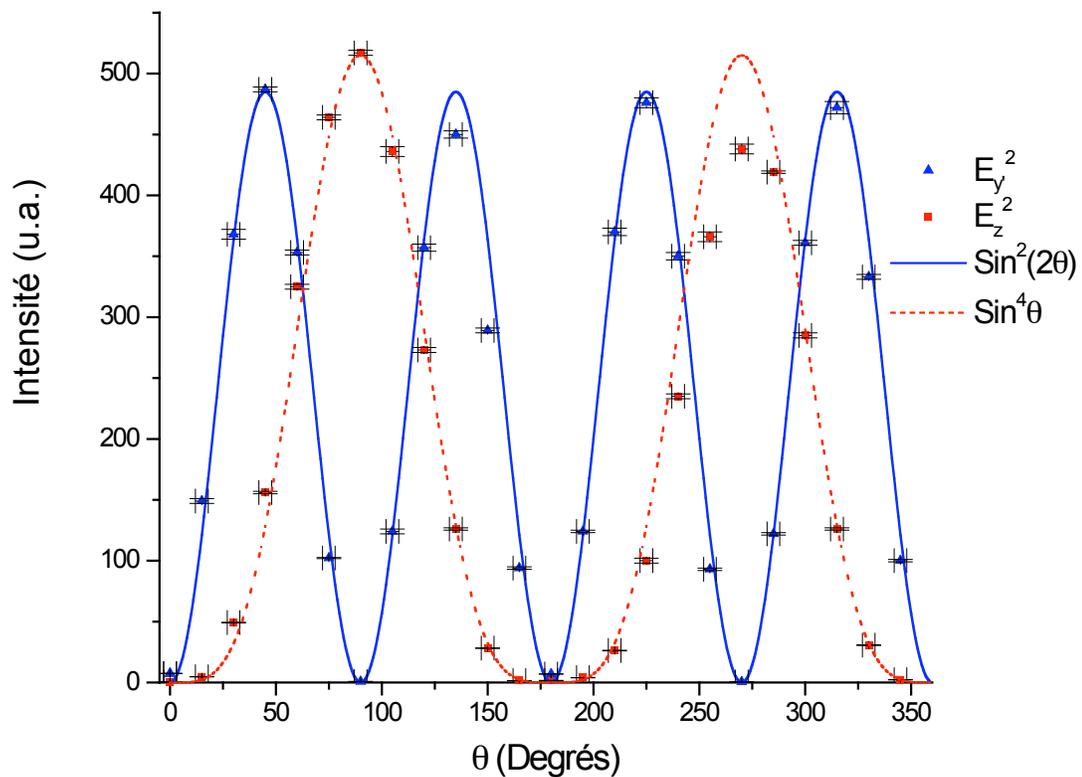
#### ***4.1 Mesures du signal en fonction de l'orientation des cristaux***

Ces mesures ont été faites, dans un premier temps, pour s'assurer que le rayonnement détecté par le bolomètre était bel et bien généré par redressement optique. Leur deuxième utilité est qu'elles ont permis de déterminer l'orientation optimisant l'émission de THz pour chacun des échantillons.

##### **4.1.1 Composantes du champ THz en fonction de l'orientation des échantillons**

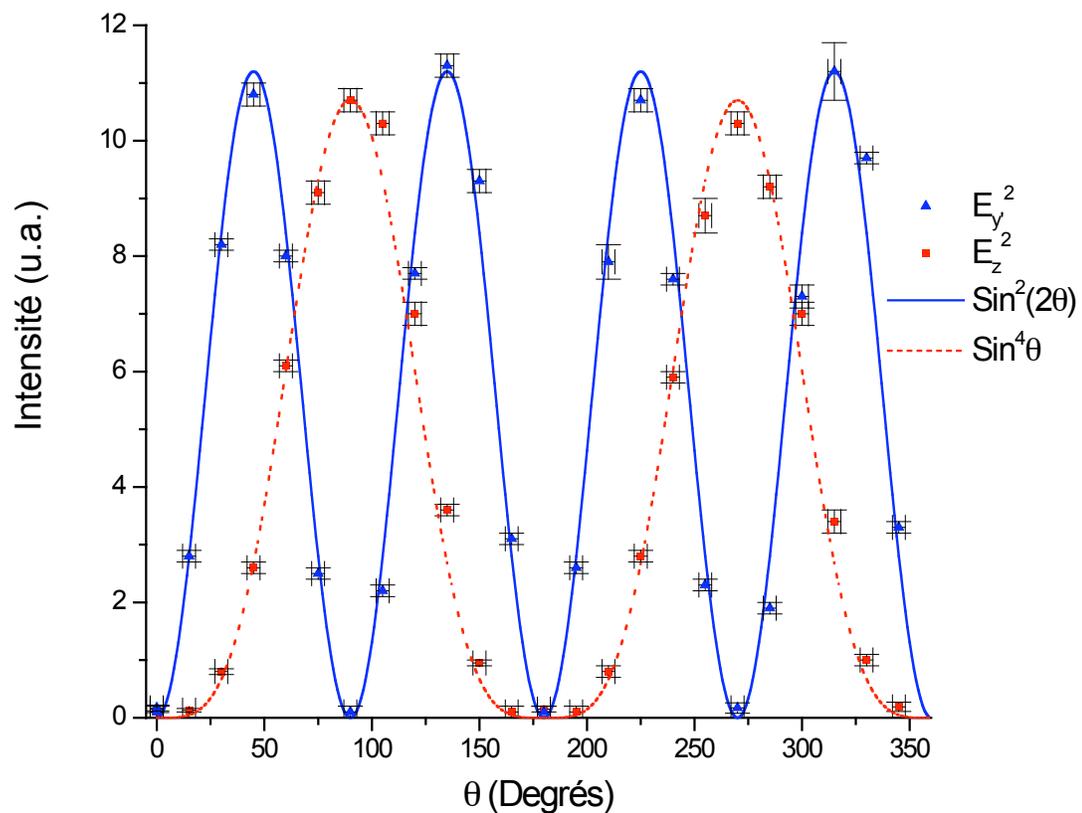
Les résultats des mesures de la dépendance des composantes du champ THz en fonction de l'orientation des échantillons de ZnTe, GaAs et GaSe, effectuées dans la configuration présentée à la figure 6, sont présentées aux figures 7 à 9. L'échantillon et le polariseur servant

à sélectionner la composante THz étudiée sont tous deux montés sur des supports à angles gradués. Comme le faisceau d'excitation frappe l'échantillon à incidence normale,  $\mathbf{E}$  est toujours orienté dans le plan de la surface de l'échantillon. Dans le cas du ZnTe et du GaAs, l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z'$  (cf. §2.2.1) est modifié en faisant tourner l'échantillon autour de la normale à sa surface, la direction de  $\mathbf{E}$  demeurant la même au cours de la prise de données. De même, avec le GaSe, l'angle  $\varphi$  entre  $\mathbf{E}$  et  $x$  (cf. §2.2.2) est ajusté en faisant tourner l'échantillon autour de sa normale. Entre chacune des mesures, le polariseur est tourné d'un même angle que le cristal, de façon à ce que son axe soit toujours parallèle à l'axe cristallographique d'intérêt.



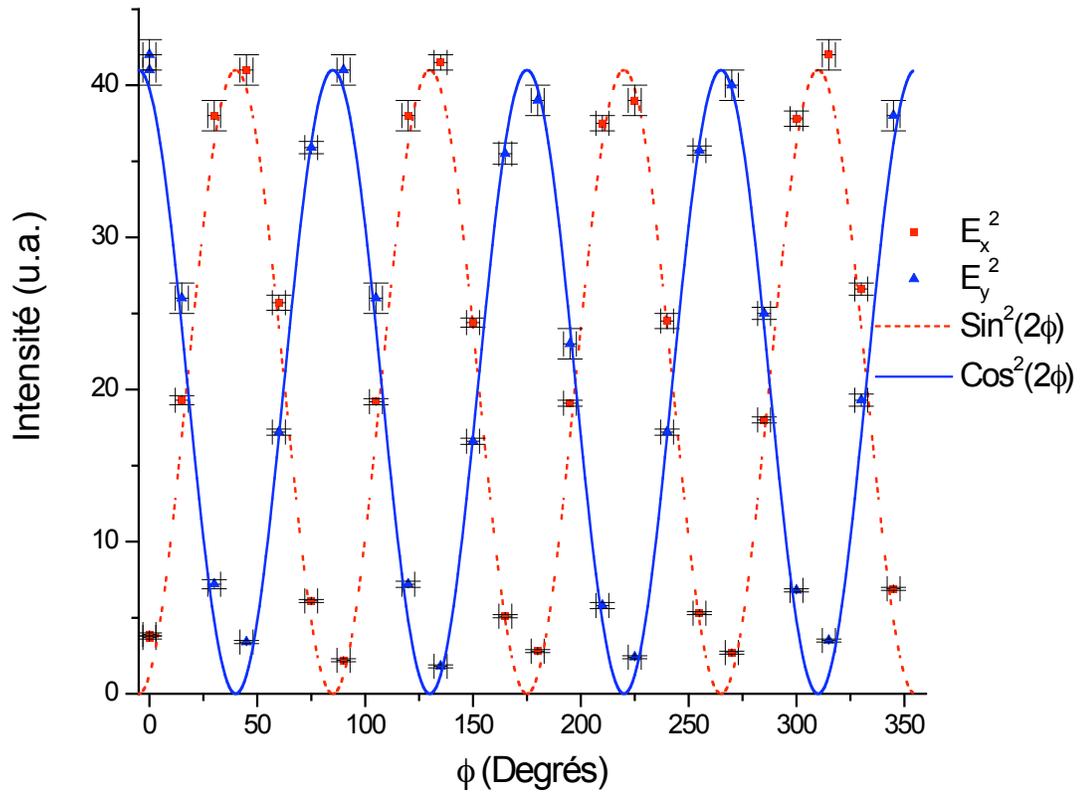
**Figure 7.** Intensité des composantes THz en fonction de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z'$  du ZnTe.

On constate aux figures 7 et 8 que l'intensité associée à chacune des composantes reproduit bien la dépendance attendue (équation 24) dans le cas des cristaux  $43m$ . Le maximum de  $E_z$  à  $270^\circ$  dans le ZnTe est légèrement plus faible que prévu, mais ceci s'explique fort probablement par le fait que le faisceau d'excitation ne frappait pas le cristal exactement sur l'axe de rotation de celui-ci. Dans ce cas, lorsque l'on fait tourner le cristal, la partie dans laquelle le faisceau se propage change. Lorsque les faisceaux excitateur et THz se propagent dans une partie du cristal où il y a des défauts (impuretés, dommages ou poussière), le signal recueilli est plus faible. Le fait que le signal mesuré ne soit pas le même à  $90^\circ$  qu'à  $270^\circ$  vient appuyer cette hypothèse, que l'on peut également avancer pour expliquer les légers décalages de  $E_y$  dans le ZnTe à  $135^\circ$  et dans le GaAs à  $225^\circ$ .



**Figure 8.** Intensité des composantes THz en fonction de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z'$  du GaAs.

On retrouve par ailleurs la dépendance prédite par l'équation (25) pour les composantes du rayonnement généré dans le GaSe (figure 9). L'intensité élevée du point expérimental à  $\varphi \approx 315^\circ$  s'explique vraisemblablement par une fluctuation d'intensité du faisceau d'excitation.



**Figure 9.** Intensité des composantes THz en fonction de l'angle  $\phi$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $x$  du GaSe.

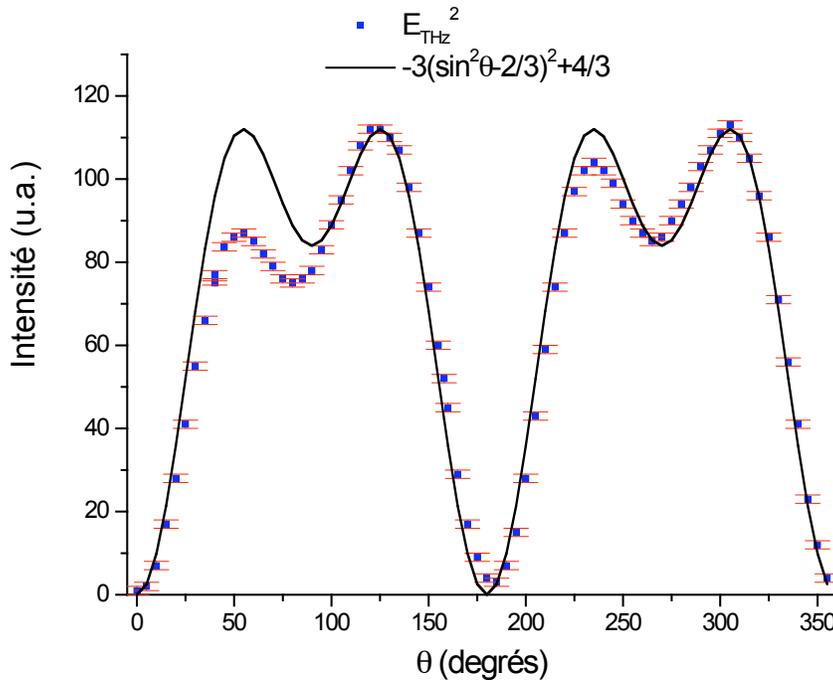
#### 4.1.2 Intensité THz en fonction de l'orientation des échantillons 43m

Des mesures de l'intensité du faisceau généré en fonction de l'orientation du champ électrique relativement aux axes cristallographiques ont été effectuées avec le ZnTe et le GaAs. Le

montage est essentiellement le même qu'à la figure 6, à ceci près que le polariseur placé devant le bolomètre a été enlevé. À partir de l'équation (24) du chapitre 2 donnant le champ THz en fonction de  $\theta$ , on obtient la dépendance angulaire suivante pour l'intensité THz [22] :

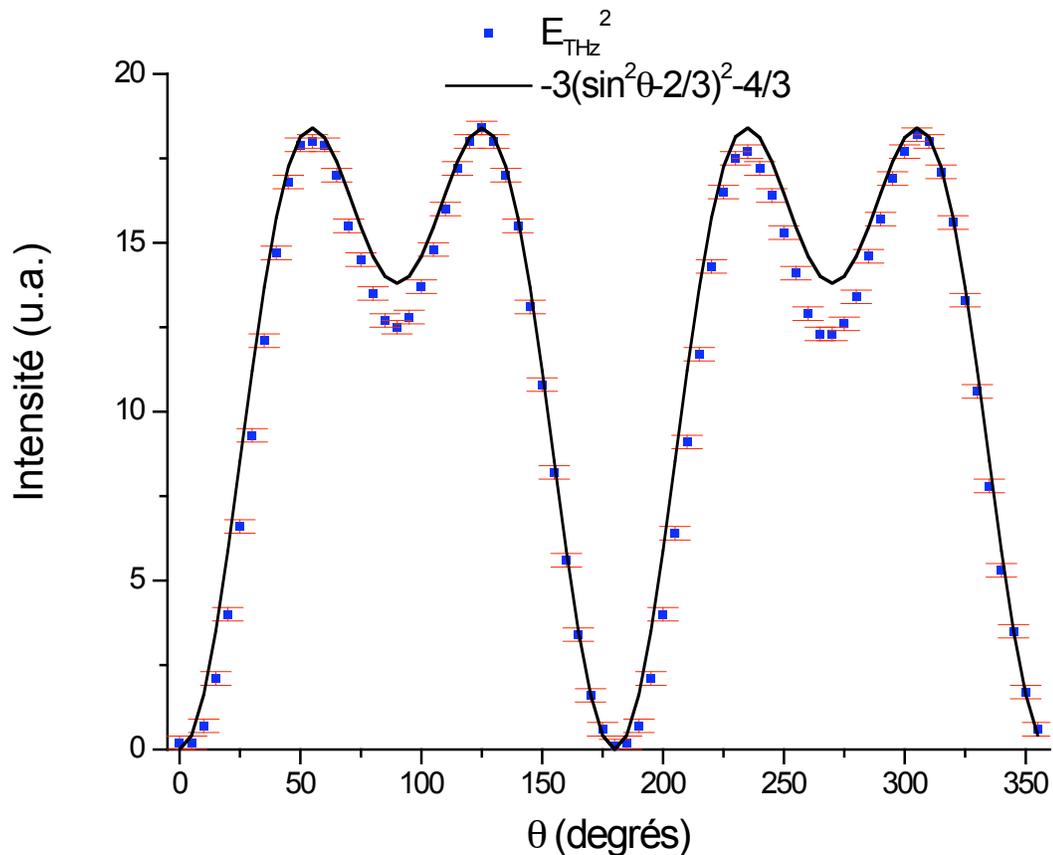
$$|E_{THz}|^2 \propto -3\left(\sin^2 \theta - \frac{2}{3}\right)^2 + \frac{4}{3} \quad (29)$$

Les résultats obtenus avec le ZnTe et le GaAs sont respectivement présentés aux figures 10 et 11, en plus de courbes générées à partir de la relation (29). Dans les deux cas, les séries de points reproduisent l'allure générale des courbes. La faiblesse du minimum à  $\theta = 55^\circ$  dans le ZnTe est certainement causée ici encore par le fait que le faisceau d'excitation ne frappait pas l'échantillon exactement au niveau du point correspondant à son axe de rotation. Le maximum à  $\theta = 235^\circ$  est d'ailleurs nettement plus rapproché de la valeur prédite par (29).



**Figure 10.** Signal recueilli en fonction de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z'$  du ZnTe sans polariseur.

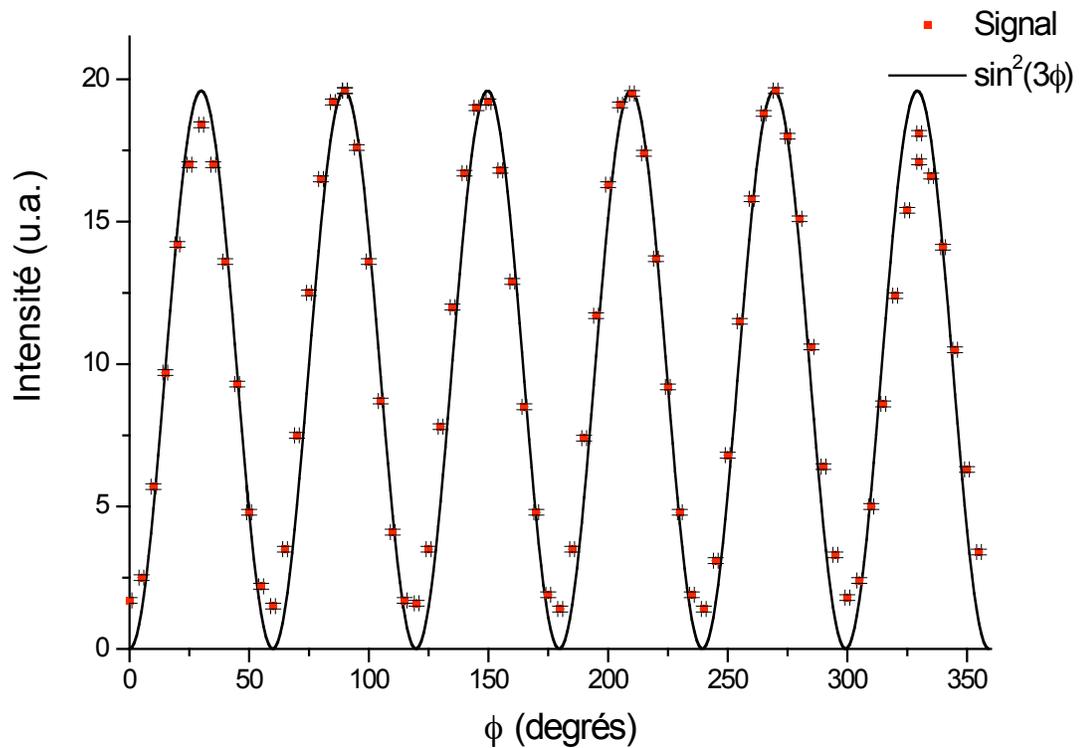
La figure 11 fait ressortir la faiblesse des minima locaux à  $\theta = 90^\circ$  et  $\theta = 270^\circ$  pour le rayonnement généré dans le GaAs. Ces différences par rapport à la valeur attendue, présentes pour les deux orientations du cristal, ne peuvent s'expliquer comme précédemment par le fait que le faisceau d'excitation ne frappait pas le cristal exactement sur l'axe de rotation. Or en se reportant à la figure 8, on constate que la composante en  $z$  du champ généré est dominante aux minima locaux de la figure 11. La déviation de la courbe expérimentale par rapport à (29) pourrait donc s'expliquer par des mobilités de porteurs différentes selon  $z$  et  $y'$  [29] ou par des règles de sélection différentes pour les transitions inter-bandes selon les deux axes.



**Figure 11.** Signal recueilli en fonction de l'angle  $\theta$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $z'$  du GaAs sans polariseur.

### 4.1.3 Mesures à polariseur fixe avec le GaSe

Il ressort de l'équation (25) que l'intensité THz générée dans le GaSe est indépendante de l'angle  $\varphi$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $x$  du cristal. Ceci a d'ailleurs été vérifié au laboratoire en faisant quelques mesures sans polariseur comme celles décrites à la sous-section précédente. Il a donc été décidé de faire des tests supplémentaires avec le GaSe en présence du polariseur. Contrairement à la façon de procéder décrite §4.1.1, l'axe du polariseur a cette fois été gardé parallèle à  $\mathbf{E}$  alors que l'orientation du cristal était modifiée d'une mesure à l'autre. Les résultats obtenus sont présentés à la figure 12.



**Figure 12.** Signal recueilli en fonction de l'angle  $\phi$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $x$  du GaSe avec l'axe du polariseur orienté parallèlement à  $\mathbf{E}$ .

Le développement mathématique menant à l'expression du signal recueilli  $I_{\text{signal}}$  en fonction de  $\varphi$ , dans le cas où l'axe du polariseur est parallèle à  $\mathbf{E}$ , est présenté à l'annexe A. Nous donnons ici le résultat :

$$I_{\text{signal}} \propto \sin^2(3\varphi) \quad (30)$$

La membre de droite de (30) a été tracé à la figure 12 avec les points expérimentaux. On constate que la dépendance en  $\varphi$  du signal recueilli correspond à ce qui est attendu pour le rayonnement THz.

On obtient donc, pour toutes les mesures du signal effectuées en fonction de l'orientation du champ exciteur par rapport aux axes des cristaux, la dépendance attendue pour une impulsion générée par redressement optique.

## **4.2 Mesures d'intérêt pour la mise en place de montages de spectroscopie THz**

La génération de rayonnement THz par redressement optique dans des cristaux non-linéaires représente le premier pas d'un processus devant éventuellement mener à la mise en place de montages de spectroscopie THz résolue en temps. La présente section regroupe les résultats relatifs à des caractéristiques du faisceau émis dont il faut tenir compte pour en arriver à l'étape des mesures spectroscopiques. L'atténuation du faisceau THz dans l'air, la divergence du faisceau et son profil transverse d'intensité, ainsi que la dépendance de l'intensité THz en fonction de l'intensité du faisceau d'excitation sont étudiés.

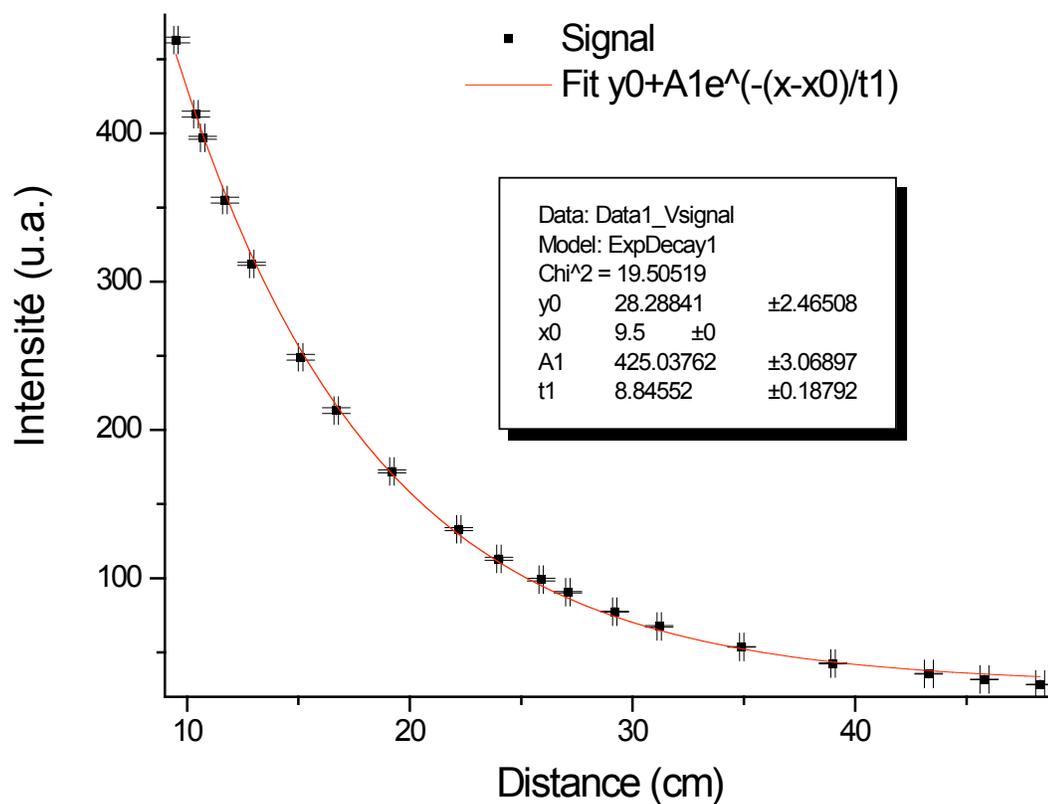
### 4.2.1 Atténuation du faisceau dans l'air

La distance parcourue par le faisceau THz dans un montage spectroscopique typique est de plusieurs dizaines de centimètres. Or, il est bien connu que la radiation THz est absorbée par la vapeur d'eau présente dans l'air [30]. Il est donc important de mesurer sur quelle distance le faisceau est atténué dans les conditions d'humidité et de température prévalant au laboratoire. Des mesures du signal généré en fonction de la distance cristal-bolomètre ont donc été effectuées.

La configuration de montage adoptée pour ces mesures est encore une fois essentiellement la même que celle qui est présentée à la figure 6, les deux seules modifications étant le retrait du polariseur et la mise en place d'un rail sur lequel on fait glisser un plateau servant de support au bolomètre. Le rail a été soigneusement aligné dans la direction de propagation du faisceau d'excitation, afin de s'assurer que le centre du faisceau THz frappe le centre de la fenêtre de détection du bolomètre peu importe la position de l'appareil sur le rail.

Les échantillons de ZnTe et de GaAs ont été orientés à  $\theta = 55^\circ$ , de façon à disposer d'une intensité THz maximale. Tel que mentionné §4.1.3, l'orientation de l'échantillon de GaSe n'avait aucun effet sur l'intensité du rayonnement généré.

Les résultats obtenus avec le ZnTe sont présentés à la figure 13. On constate que le lissage de la forme  $\exp(-z/a)$ ,  $z$  étant la distance entre l'échantillon et le bolomètre, reproduit très bien l'allure de la courbe expérimentale. C'est également le cas avec les échantillons de GaSe et GaAs. Les valeurs de la distance d'atténuation  $a$  obtenues avec les 3 échantillons sont présentées au tableau 3. On constate que les valeurs obtenues avec le ZnTe et le GaSe se recoupent, tandis que celle ayant été obtenue avec le GaAs est légèrement plus élevée. La faiblesse de l'intensité du rayonnement généré dans le GaAs rend cependant les mesures à grande distance peu fiables, le signal THz étant noyé dans le bruit.



**Figure 13.** Intensité THz en fonction de la distance entre le cristal de ZnTe et le bolomètre.

**Tableau 3.** Distances d'atténuation  $a$  du faisceau THz obtenues avec les 3 échantillons.

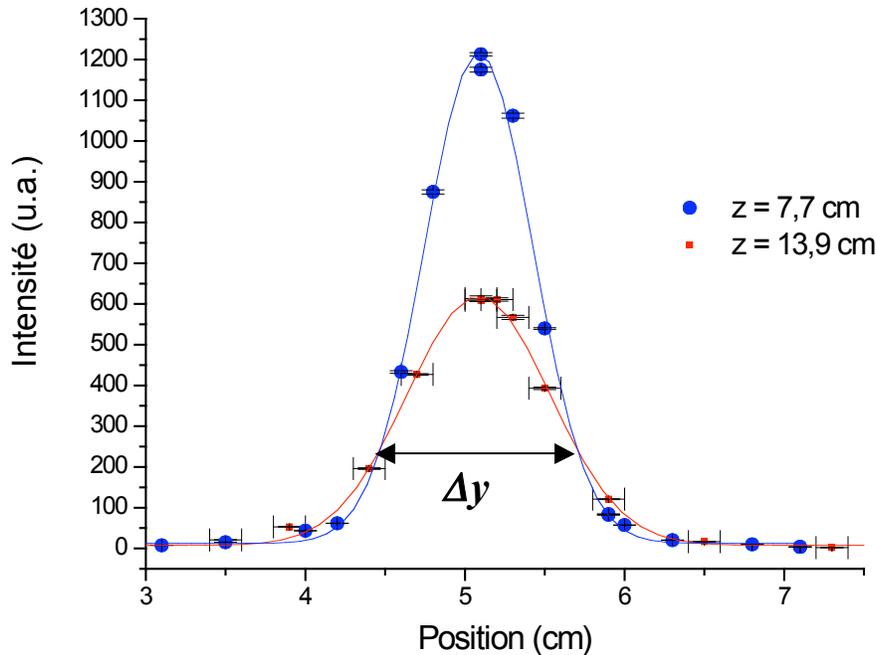
Cristal	$a$ (cm)
GaAs	$12 \pm 2$
GaSe	$8,4 \pm 0,3$
ZnTe	$8,8 \pm 0,2$

Le point important à retenir est que le faisceau THz parcourt plusieurs fois la distance d'atténuation dans un montage de spectroscopie THz typique. Pour maximiser la sensibilité d'un tel montage, il est donc primordial que celui-ci soit situé dans un milieu exempt d'humidité. Ceci est généralement accompli en recouvrant le montage d'une cage hermétique dans laquelle on injecte de l'azote embouteillé ne contenant pas de vapeur d'eau.

### 4.2.2 Divergence du faisceau terahertz

Un faisceau THz divergent, en plus de fausser les mesures présentées à la sous-section précédente, rendrait nécessaire l'utilisation d'un miroir parabolique pour éviter des pertes d'intensité, ce qui augmenterait la taille du montage et en compliquerait l'alignement. C'est pourquoi des mesures du signal en fonction de la position transversale du bolomètre ont été effectuées avec le ZnTe et avec le GaSe à deux distances échantillon-bolomètre différentes pour chacun des cristaux. Les résultats nous ont permis d'estimer l'ouverture du cône d'émission du faisceau généré dans les deux cristaux.

La seule différence avec la configuration de la section précédente est que le rail est cette fois-ci fixé perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau THz. Les résultats des deux séries de mesures effectuées avec le ZnTe sont présentés à la figure 14. Des lissages de la forme  $\exp[-y^2/(\Delta y/2)^2]$ , où  $y$  est parallèle au rail, reproduisent très bien l'allure des séries de points. On constate que l'aire sous la courbe est beaucoup plus faible pour la série de mesures effectuée à une distance ZnTe-bolomètre de 13,9 cm que pour celle effectuée à 7,7 cm, ce qui est cohérent avec les mesures d'atténuation du faisceau présentées à la sous-section précédente.



**Figure 14.** Intensité THz en fonction de la position transversale du bolomètre pour deux distances cristal-bolomètre différentes avec l'échantillon de ZnTe.

Les valeurs de  $\Delta y$  obtenues avec les 4 séries de mesures sont présentées au tableau 4. En faisant l'approximation que la largeur du faisceau augmente linéairement entre les distances considérées, on obtient des ouvertures de  $1,4^\circ$  et  $1^\circ$  pour les faisceaux générés dans le ZnTe et dans le GaSe, respectivement. Cette faible valeur du cône d'émission concorde avec les mesures d'atténuation : si le faisceau avait été très divergent, le ratio de l'intensité reçue par le bolomètre sur l'intensité totale aurait beaucoup varié en fonction de la distance cristal-bolomètre, et la courbe d'«atténuation» se serait éloignée de l'exponentielle décroissante.

**Tableau 4.** Valeurs de  $\Delta y$  obtenues à différentes distances échantillon-bolomètre avec les échantillons de ZnTe et de GaSe.

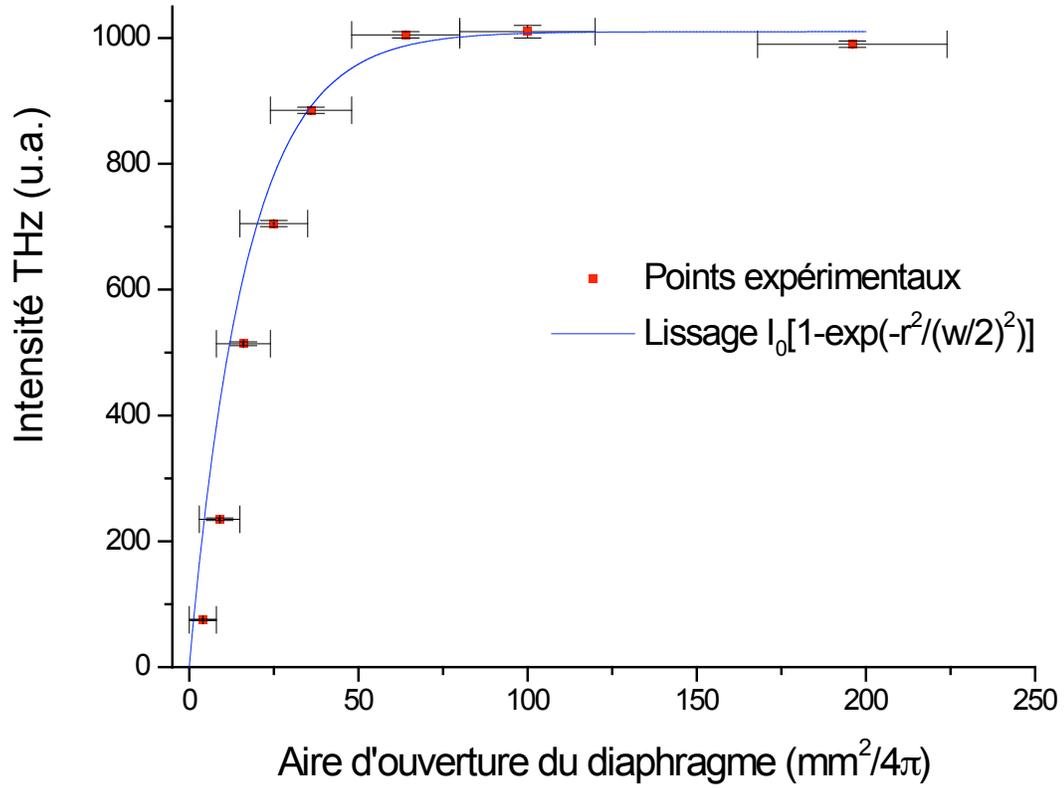
<b>ZnTe</b>		<b>GaSe</b>	
$z$ (cm)	$\Delta y$ (cm)	$z$ (cm)	$\Delta y$ (cm)
$7,7 \pm 0,5$	0,96	$6,3 \pm 0,5$	1,13
$13,9 \pm 0,5$	1,26	$12,0 \pm 0,5$	1,33

### 4.2.3 Profil transversal d'intensité du faisceau terahertz

Les valeurs de  $\Delta y$  figurant au tableau 4 ne représentent pas la largeur à mi-hauteur de la courbe d'intensité du faisceau THz. Les courbes ayant servi à les obtenir sont en fait la convolution de la distribution transversale d'intensité du faisceau avec la fonction de réponse de la fenêtre de détection du bolomètre (une fonction porte circulaire). Une mesure plus directe de la largeur du faisceau THz a cependant été effectuée avec le ZnTe.

Pour cette mesure, le polariseur a été retiré de la configuration de la figure 6, et un diaphragme d'ouverture variable a été placé tout juste devant la fenêtre de détection du bolomètre. L'échantillon de ZnTe, placé à une distance de  $(11,2 \pm 0,5)$  cm du bolomètre, était orienté de façon à générer le maximum d'intensité THz, comme précédemment. Les résultats des mesures d'intensité THz en fonction du carré de l'ouverture  $r$  du diaphragme sont présentés à la figure 15.

L'incertitude sur les mesures de  $r$ , qui étaient faites avec une règle, a été évaluée à 1 mm. L'incertitude sur  $r^2$ , proportionnelle à  $r$ , augmente donc linéairement avec l'ouverture. Nous sommes partis de l'hypothèse que la distribution transversale d'intensité est une gaussienne.



**Figure 15.** Intensité THz en fonction du carré de l'ouverture  $r$  d'un diaphragme placé devant la fenêtre de détection du bolomètre.

Le signal mesuré avec le bolomètre, proportionnel à l'intégrale de la gaussienne sur un cercle de rayon  $r$ , devrait donc avoir la dépendance suivante en  $r^2$  :

$$I(r^2) = I_0 \left\{ 1 - \exp \left[ -\frac{r^2}{(w/2)^2} \right] \right\} \quad (31)$$

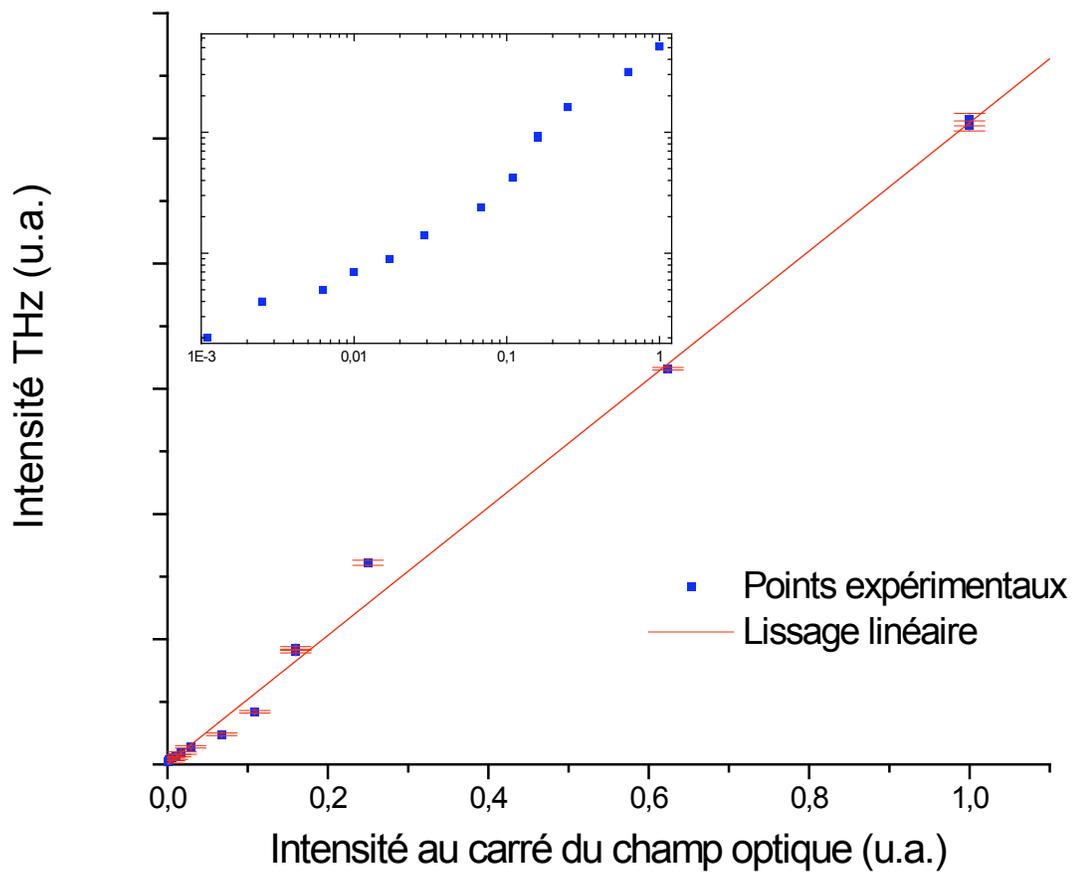
Dans la dernière équation,  $w$  est la largeur en  $1/e$  de la courbe d'intensité. Un lissage de la forme de (31) a été superposé aux points expérimentaux de la figure 15. Le paramètre  $I_0$  a été déterminé à partir de la valeur expérimentale maximale, et  $w$  a été ajusté de façon à reproduire la montée de la série de points. L'incertitude sur  $w$  a été déterminée en considérant la plage de valeurs permettant à la courbe de se situer dans les barres d'incertitude des points expérimentaux, et la valeur centrale de cette plage a été retenue pour  $w$ . Le résultat de  $(8,0 \pm 0,4)$  mm ainsi obtenu, récolté à partir de mesures effectuées rappelons-le à une distance ZnTe-bolomètre de  $(11,2 \pm 0,5)$  cm, se rapproche des valeurs de  $\Delta y$  pour le faisceau généré dans le ZnTe (cf. tableau 4). Il serait intéressant de refaire des mesures d'intensité du signal en fonction de l'ouverture du diaphragme à d'autres distances échantillon-bolomètre, afin d'évaluer la divergence du faisceau encore plus directement qu'à la sous-section précédente.

#### 4.2.4 Intensité THz vs intensité du faisceau d'excitation

Le redressement optique étant un processus d'ordre 2, on s'attend à ce que l'intensité terahertz récoltée au détecteur soit proportionnelle au carré de l'intensité associée au champ d'excitation. Des mesures du signal ont été effectuées avec plusieurs combinaisons d'atténuateurs pour vérifier cette dépendance.

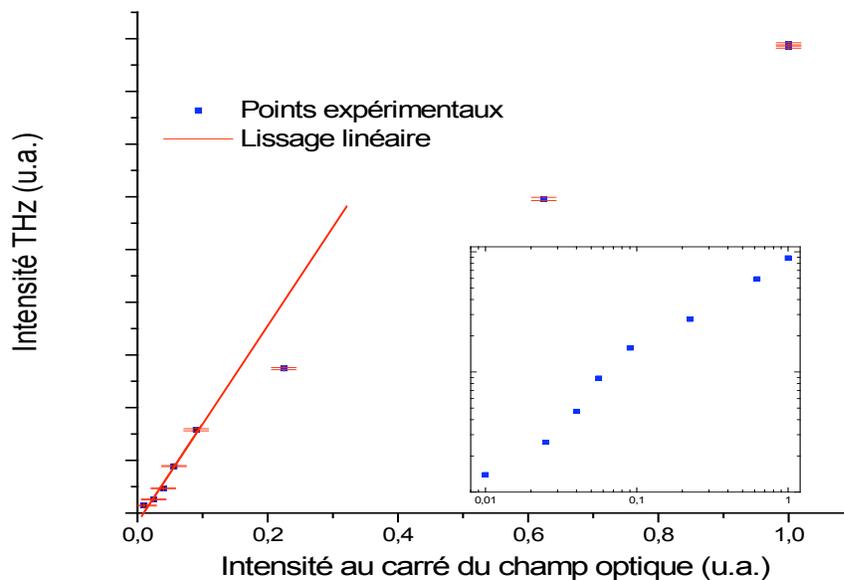
Encore une fois, le montage était dans la configuration de la figure 6, polariseur en moins. Tel que mentionné §3.3, le compresseur de l'amplificateur régénératif est réajusté après tous les changements de filtres, afin de compenser la dispersion chromatique dans les filtres et d'obtenir l'impulsion la plus courte possible avec chacune des combinaisons d'atténuateurs. Les échantillons 43m sont orientés à  $\theta = 55^\circ$ , de façon à obtenir une intensité THz maximale. À l'aide de différentes combinaisons d'atténuateurs, l'intensité du faisceau d'excitation a été variée d'un facteur 50 dans le ZnTe, 30 dans le GaAs et 10 dans le GaSe. Cette dernière valeur peut sembler faible, mais l'intensité excitatrice maximale appliquée au GaSe a été gardée plus basse que celle qui était appliquée au GaAs. Les atténuateurs 2 et 3 étaient en effet placés en

permanence devant le GaSe pour d'éviter d'endommager l'échantillon, le GaSe étant un matériau plus rare et plus coûteux que le GaAs. À l'opposé, nous disposons de nombreux morceaux de GaAs (110), et la plupart des mesures avec ce matériau ont été prises sans atténuateurs. Les résultats obtenus avec le GaAs, le GaSe et le ZnTe sont présentés aux figures 16 à 18.

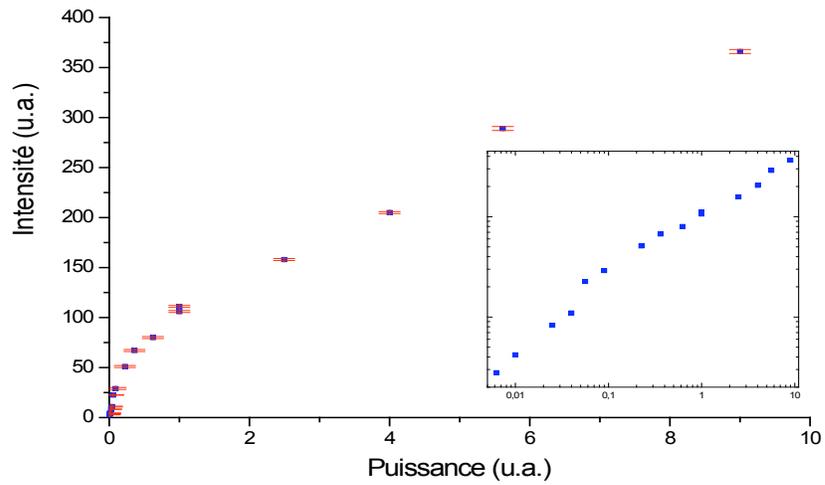


**Figure 16.** Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau excitateur avec l'échantillon de GaAs. Médaille : échelle logarithmique.

On remarque une saturation importante à intensité d'excitation  $I_{opt}$  élevée dans le GaSe. Cette saturation, encore plus notable avec le ZnTe, est absente dans le cas du GaAs. Comme le signal généré était typiquement plus intense avec le ZnTe qu'avec le GaSe, et avec le GaSe qu'avec le GaAs, il est possible que cet effet soit causé par un transfert d'énergie du faisceau d'excitation au faisceau THz. En d'autres termes, l'appauvrissement du champ exciteur, qui est contenu dans les termes d'ordre supérieur à 2 de la susceptibilité [31], n'est plus négligeable à intensité élevée. Le fait que la densité de courant de déplacement soit plusieurs centaines de fois plus grande que la densité de courant de redressement, dans le GaAs (cf. §2.3), vient toutefois mettre en doute cette hypothèse. En effet, même si le signal THz généré dans le GaAs est faible, la région de l'échantillon où il est émis est très mince, et l'appauvrissement du faisceau d'excitation à cet endroit devrait être aussi important que dans les deux autres cristaux. L'explication de ces comportements de l'intensité THz émise en fonction de l'intensité d'excitation pour les trois cristaux reste donc à déterminer. La répétition des mesures avec le GaAs, sous atmosphère d'azote sec cette fois, permettrait d'obtenir un signal plus élevé et des résultats plus fiables dans le cas de ce cristal.



**Figure 17.** Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau exciteur avec l'échantillon de GaSe. Médaille : échelle logarithmique.



**Figure 18.** Intensité THz en fonction du carré de l'intensité du faisceau excitateur avec l'échantillon de GaSe. Médaille : échelle logarithmique.

## CONCLUSION

Deux types de mesures du rayonnement généré dans des échantillons de ZnTe, GaAs et GaSe à l'aide d'impulsions ultra-brèves dans le domaine du proche infrarouge ont été effectuées dans le cadre du présent projet. Dans un premier temps, des mesures de la variation de la puissance moyenne générée en fonction de l'orientation du champ excitateur  $\mathbf{E}$  relativement aux axes cristallographiques ont montré hors de tout doute que le rayonnement généré était bel et bien le résultat d'un processus de redressement optique. Même les résultats obtenus avec le GaAs, pour lequel l'excitation est résonante, se rapprochent de la dépendance attendue du signal en fonction de l'orientation de l'échantillon pour un processus de redressement optique non résonant. Dans un deuxième temps, des mesures d'autres caractéristiques du faisceau généré, importantes dans le contexte de la mise en place d'un montage de spectroscopie THz résolue en temps, ont permis de déterminer les conditions optimales pour la génération d'impulsions THz et pour leur propagation.

Parmi la seconde catégorie de mesures, celles de l'atténuation du faisceau THz dans l'air ont fait ressortir la nécessité de remettre sur les rails le projet de cage à azote sec, mis sur la touche il y a quelque temps. Le faisceau THz parcourt en effet plusieurs fois la distance d'atténuation du faisceau dans l'air humide dans un montage de spectroscopie THz typique. Les mesures du signal en fonction de la position transversale du bolomètre ont par ailleurs montré que le faisceau THz est pratiquement parallèle : son angle d'ouverture est de l'ordre de  $1^\circ$ . Finalement, il serait indiqué de refaire des mesures de l'intensité THz générée dans le GaAs en fonction de l'intensité excitatrice sous atmosphère d'azote sec. Le signal THz détecté serait alors plus élevé, et les conclusions au sujet de la saturation dans ce matériau plus fiables.

Une fois la cage à azote complétée et les pertes par absorption dans l'air éliminées, l'étape suivante consistera à obtenir le profil temporel de l'impulsion THz. Ceci mènera à la

connaissance du spectre de l'impulsion via l'analyse de Fourier et pavera la voie à la mise en place d'un montage de spectroscopie THz résolue en temps. Au moment d'écrire ces lignes, des premières mesures résolues en temps ont été réalisées avec succès au laboratoire de spectroscopie femtoseconde, avec des antennes photoconductrices à l'émission et à la détection. Il sera très simple de diriger l'impulsion de sortie du système laser amplifié vers le montage de détection résolue en temps et de remplacer l'antenne émettrice par un cristal non-linéaire, afin obtenir le profil temporel des impulsions générées par redressement optique. Il serait tout indiqué d'utiliser le cristal de ZnTe pour les essais de détection résolue en temps. Parmi les cristaux disponibles au laboratoire de spectroscopie femtoseconde, c'est en effet celui qui génère la plus grande intensité THz moyenne. De plus, lorsqu'un autre échantillon de ZnTe aura été acheté, le montage de détection résolue en temps pourra être remis temporairement dans la configuration «détection électro-optique» afin de faire ce type de mesures avec des échantillons de ZnTe à l'émission et à la détection. De simples mesures de la puissance moyenne générée en fonction de l'orientation du futur nouvel échantillon de ZnTe devraient permettre de bien identifier les axes de celui-ci, ce qui permettra ensuite de le placer dans l'orientation maximisant la génération ou la détection de THz.

Une autre piste intéressante à suivre est celle du redressement optique avec accord de phase dans le GaSe. Les essais effectués jusqu'à maintenant n'ont pas été couronnés de succès, bien que les conditions expérimentales ayant permis à d'autres groupes de réaliser l'accord de phase dans le GaSe aient été recréées au laboratoire. Il est possible que le spectre de l'impulsion de sortie de l'amplificateur régénératif soit trop étroit pour permettre la génération de fréquences pouvant être observées avec le détecteur de HgCdTe utilisé pour ces essais. La compression des impulsions de sortie de l'amplificateur régénératif serait donc nécessaire, et le projet d'utiliser de la fibre optique et des prismes pour élargir le spectre de l'impulsion et ensuite la comprimer pourrait être remis en branle. Dans ce cas, il faudrait s'assurer de travailler à l'angle de Brewster pour s'affranchir du problème de la réflexion du faisceau à l'entrée et à la sortie des prismes.

Si les résultats présentés ici sont plus modestes que ce qui avait été escompté au début du projet, ils n'en représentent pas moins une base essentielle à la mise en place de montages de spectroscopie THz. La complexité du processus de détection résolue en temps, qui nécessite l'alignement précis d'un faisceau optique avec un faisceau invisible à l'œil nu, ne saurait être surestimée. Il est donc extrêmement important de connaître les conditions expérimentales (types et orientation des cristaux, taille, composition et environnement des montages, etc.) qui maximisent le rayonnement THz dans la région du détecteur et optimisent par le fait même les chances de détection du signal. Mentionnons également que les essais infructueux effectués dans le cadre du projet (utilisation du faisceau émis par le système non amplifié comme faisceau d'excitation, tentatives de génération avec accord de phase dans le GaSe, etc.) ont été laissés de côté pour éviter d'alourdir inutilement le mémoire et pour maximiser son utilité pour les utilisateurs qui suivront.

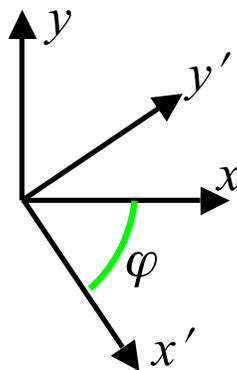
Quoi qu'il en soit, il est certain que les connaissances acquises dans le cadre du présent projet, jumelées à l'expertise développée grâce aux mesures de détection résolue en temps effectuées avec les antennes photoconductrices, paveront la voie dans un avenir rapproché à la réalisation de mesures d'importance significative dans le domaine très actif de la spectroscopie THz.

**ANNEXE A :**  
**Calcul de la dépendance du signal en fonction de**  
**l'orientation de l'échantillon de GaSe en présence d'un**  
**polariseur fixe**

Nous allons ici démontrer l'équation (30) de la section 4.1.3. Cette équation donne la dépendance du signal THz à la sortie d'un polariseur dont l'axe est parallèle au champ excitateur  $\mathbf{E}$ , en fonction de l'angle  $\varphi$  entre  $\mathbf{E}$  et l'axe  $x$  du cristal de GaSe.

On doit d'abord définir deux systèmes d'axes (cf. figure A.1). Le système d'axes primé est celui du laboratoire, tandis que le système non primé représente les axes cristallographiques. L'axe  $x'$  est défini par la direction de  $\mathbf{E}$ , et l'axe  $z'$  est parallèle à  $z$ , c'est-à-dire à la normale à la surface de l'échantillon, qui est coupé dans le plan (001). On a donc

$$\mathbf{E} = E\hat{x}' = E(\hat{x}\cos\varphi - \hat{y}\sin\varphi) \quad (\text{A.1})$$



**Figure A.1.** Systèmes d'axes du laboratoire (primé) et du cristal (non primé).

Puisque l'axe du polariseur est orienté dans la direction de  $\mathbf{E}$ , on peut écrire

$$\hat{p} = \hat{x}' = \hat{x} \cos \varphi - \hat{y} \sin \varphi \quad (\text{A.2})$$

Tel que vu §2.2.2, les seuls éléments non nuls du tenseur  $\mathbf{d}$  des cristaux du groupe  $\bar{6}2m$ , dont fait partie le GaSe, sont  $d_{16} = d_{21} = -d_{22}$ . En substituant ces valeurs dans l'équation (19) de la section 1.2.2, on obtient l'équation suivante pour le champ THz  $\mathbf{E}_{THz}$ :

$$\mathbf{E}_{THz} = Cd_{21} \left[ 2E_x E_y \hat{x} + (E_x^2 - E_y^2) \hat{y} \right] \quad (\text{A.3})$$

Dans la dernière équation,  $C$  est une constante réelle. On substitue ensuite (A.1) dans (A.3) et on utilise l'identité trigonométrique  $\cos(2A) = \cos^2 A - \sin^2 A$  :

$$\mathbf{E}_{THz} = C' \left[ -2 \cos \varphi \sin \varphi \hat{x} + (\cos^2 \varphi - \sin^2 \varphi) \hat{y} \right] = C' \left[ -2 \cos \varphi \sin \varphi \hat{x} + \cos(2\varphi) \hat{y} \right] \quad (\text{A.4})$$

Dans le dernier développement,  $C'$  est une constante réelle. Le champ  $\mathbf{E}'_{THz}$  à la sortie du polariseur est donné par la projection du champ à l'entrée sur l'axe du polariseur. On a donc (cf. équations (A.4) et (A.2)):

$$\mathbf{E}'_{THz} = \mathbf{E}_{THz} \cdot \hat{p} = C'' \sin \varphi \left[ 2 \cos^2 \varphi + \cos(2\varphi) \right], \quad (\text{A.5})$$

où  $C''$  est une constante réelle. En utilisant les identités trigonométriques  $\cos(2A) = 2\cos^2 A - 1$  et  $2\sin A \cos B = \sin(A+B) + \sin(A-B)$ , on obtient successivement

$$\mathbf{E}'_{THz} = C'' \sin \varphi \left[ 1 + 2 \cos(2\varphi) \right] = C'' \left[ \sin \varphi + 2 \sin \varphi \cos(2\varphi) \right] = C'' \left[ \sin \varphi + \sin(3\varphi) + \sin(-\varphi) \right]$$

Le signal détecté  $I_{\text{signal}}$  est proportionnel à  $|\mathbf{E}'_{THz}|^2$ . On a donc finalement, en tenant compte du fait que la fonction sinus est impaire :

$$I_{\text{signal}} \propto \sin^2(3\varphi) \quad (\text{A.6})$$

## **BIBLIOGRAPHIE**

- [1] P. Y. Han et X.-C. Zhang, «Coherent, broadband midinfrared terahertz beam sensors», *Applied Physics Letters* **73**, 3049 (1998).
- [2] E. Budiarto, J. Margolies, S. Jeong, J. Som et J. Bokor, «High-intensity terahertz pulses at 1-kHz repetition rate», *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 1839 (1996).
- [3] R. A. Kaindl, D. C. Smith, M. Joschko, M. P. Hasselbeck, M. Woerner et T. Elsaesser, «Femtosecond infrared pulses tunable from 9 to 18  $\mu\text{m}$  at an 88-MHz repetition rate», *Optics Letters* **23**, 861 (1998).
- [4] L. Xu, X.-C. Zhang et D. H. Auston, «Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials», *Applied Physics Letters* **61**, 1784 (1992).
- [5] D. Côté, N. Laman et H. M. van Driel, «Rectification and shift current in GaAs», *Applied Physics Letters* **80**, 905 (2002).
- [6] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser et A. Leitenstorfer, «Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz», *Applied Physics Letters* **76**, 3191, (2000).
- [7] J. D. Jackson, *Électrodynamique Classique*, Dunod, Paris, 2001, p.162.
- [8] J. D. Jackson, *ibid.*, p.431.
- [9] J. D. Jackson, *ibid.*, p.428.

- [10] B. Van Zeghbroeck, *Principles of Semiconductor Devices*, site internet, chap. 2, 2004.  
<http://ece-www.colorado.edu/~bart/book/book/title.htm>
- [11] P. N. Butcher et D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge University Press, Cambridge, 1990, pp.15-16.
- [12] F. Sanchez, *Optique Non-Linéaire*, Ellipses, Paris, 1999, pp.57-63.
- [13] P. N. Butcher et D. Cotter, op. cit., section 5.1.
- [14] D. A. Kleinman, «Nonlinear dielectric polarization in optical media», *Physical Review* **126**, 1977 (1962).
- [15] R. A. Kaindl, M. Wurm, K. Reimann, P. Hamm, A. M. Weiner et M. Woerner, «Generation, shaping and characterization of intense femtosecond pulses tunable from 3 to 20  $\mu\text{m}$ », *Journal of the Optical Society of America B* **17**, 2086 (2000).
- [16] G. Gallot et D. Grischkowsky, «Electro-optic detection of terahertz radiation», *Journal of the Optical Society of America B* **16**, 1204 (1999).
- [17] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, 7<sup>e</sup> éd., Dunod, Paris, 1998, chap.1.
- [18] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan et D. N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, Springer-Verlag, Berlin, 1991, p.80.
- [19] M. Kühnelt et H. P. Wagner, «Absolute Measurements of the Second Order Susceptibilities of ZnSe, ZnTe and ZnS», *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials* **7**, 553 (1998).

- [20] J. E. Midwinter, «The effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on the polar distribution of second-order non-linear optical polarization», *British Journal Applied Physics* **16**, 1135 (1965).
- [21] P. N. Butcher et D. Cotter, op. cit., annexe 4.
- [22] Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang et X.-C. Zhang, «Electro-optic transceivers for terahertz-wave applications», *Journal of the Optical Society of America B* **18**, 823 (2001).
- [23] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan et D. N. Nikogosyan, op. cit., p.87.
- [24] H. Mathieu, *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques*, 5<sup>e</sup> éd., Dunod, Paris, 2001, p.30.
- [25] R. H. Bube et E. L. Lind, «Photoconductivity of gallium selenide crystals», *Physical Review* **115**, 1159 (1959).
- [26] J. B. Khurgin, «Second Order Nonlinearities and Optical Rectification», dans *Semiconductors and Semimetals*, vol. 59, Academic Press, San Diego, 1999, section V.2.
- [27] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley-Interscience, New York, 1984, p.7.
- [28] G. Grynberg, A. Aspect et C. Fabre, *Introduction aux Lasers et à l'Optique Quantique*, Ellipses, Paris, 1997, p.199.
- [29] J. S. Blakemore, «Semiconducting and other major properties of gallium arsenide», *Journal of Applied Physics* **53**, 123 (1982).

[30] M. van Exter, Ch. Fattinger et D. Grischkowsky, «Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor», *Optics Letters* **14**, 1128 (1989).

[31] P. N. Butcher et D. Cotter, op. cit., p.150.