



**HAL**  
open science

# Microscopie optique de champ proche dans le domaine terahertz

Romain Lecaque

► **To cite this version:**

Romain Lecaque. Microscopie optique de champ proche dans le domaine terahertz. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT: . tel-00087889

**HAL Id: tel-00087889**

**<https://theses.hal.science/tel-00087889>**

Submitted on 27 Jul 2006

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

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

Laboratoire d'Optique Physique

Université Pierre et Marie Curie

Thèse de doctorat de l'Université Paris VI

Spécialité : Optique Physique

*présentée par*

**Romain LECAQUE**

*Pour obtenir le grade de  
DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6*

**Microscopie Optique de champ proche  
dans le domaine Terahertz**

*Soutenance prévue le 29 Juin 2006 devant le jury composé de :*

M. Claude BOCCARA ..... *Directeur de thèse*  
M. Rémi CARMINATI ..... *Rapporteur*  
M. Jérôme TIGNON .....  
M. Patrick MOUNAIX ..... *Rapporteur*  
M. Jean-Michel COURTY ..... *Président*  
M. Samuel GRESILLON .....





## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Rémi Carminati et Patrick Mounaix d'avoir consacré un peu de leur temps à rapporter mon travail de thèse, Jérôme Tignon d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse sans avoir à rapporté mon travail, et enfin Jean-Michel Courty, d'avoir présidé mon jury de thèse.

Pour changer de la classique page de remerciements, je préfère écrire ici quelques mots de remerciements sous la forme de la métaphore suivante : une thèse c'est un peu comme une pièce de théâtre, et voici les personnages que j'aimerais remercier :

- Le metteur en scène et scénariste, Claude Boccara. Merci d'avoir écrit un très beau scénario pour moi, en étant en permanence ouvert à la discussion et à la modification de ce dit scénario. Ta mise en scène fut bonne, permettant l'épanouissement des acteurs, et en particulier celle du thésard.
- Le dialoguiste, Samuel Grésillon. Merci Sam. Que de discussions parfois scientifiques, parfois légères, parfois désespérées, parfois enthousiasmantes mais toujours agréables grâce à ton oreille attentive. Je te remercie aussi des semaines de répétitions de texte dans la salle de manip chercher du signal THz, il en fallait de la patience, et tu as su m'en donner.
- Mon coach artistique, Jean-Claude Rivoal. Jean-Claude, merci pour ton soutien inconditionnel, ton enthousiasme débordant et ton optimisme indéfectible et admirable. Cet optimisme de tous les instants m'a beaucoup aidé, remis sur les rails quand cela n'allait pas, bref un optimisme que j'espère pouvoir transmettre aux autres dans ma future carrière.
- Les gens de la technique, Patrick, Francis, Fabien, Valérie, Edouardo, et surtout Marie-Claude. Ils ont été essentiels au bon déroulement de la pièce de théâtre, sans accroc majeur ; que ce soit au niveau de la réalisation du plateau, aux jeux de lumière et de son, ou au financement de la pièce de théâtre, rien n'aurait été possible sans eux.
- Les acteurs principaux Alexandra, Julien, Fred, les deux Pedro, Guillaume, Mickael, Claudine, Kate, Arik, Nicolas et Romain, Nicolas du nord, et surtout Laurent et Gael. Merci à vous tous que vous m'ayez donné la réplique ou non !
- Les acteurs secondaires, Lionel, Arnaud, Jean-Paul, Christine, Vincent, Emmanuel, Ricardo, Gilles, et surtout Yannick. Même si vous ne veniez pas à toutes les répétitions, la réussite d'une pièce de théâtre tient à tous ses acteurs et intervenants. Je vous remercie donc aussi.
- La direction du théâtre, Danièle Fournier et Jérôme Lesueur. Merci à vous de m'avoir permis de réaliser cette pièce dans votre théâtre parisien.
- Il me reste à remercier d'un point de vue plus personnel, les gens qui comptent dans ma vie autre que professionnelle ; mes parents, mes soeurs, mes amis, et ma femme. Je n'ai pas besoin de tous les citer pour qu'ils sachent tout ce que je leur dois ; avoir réalisé et réussi cette difficile mais enrichissante expérience sans eux n'aurait jamais été possible.

---

# Table des matières

---

<b>Introduction</b>	<b>v</b>
<b>1 Introduction au domaine terahertz</b>	<b>1</b>
A Le domaine terahertz . . . . .	2
A.1 Définition . . . . .	2
A.2 Ordres de grandeur . . . . .	3
B Génération d'impulsions THz . . . . .	4
B.1 Motivations . . . . .	4
B.2 Génération par rectification optique . . . . .	4
B.3 Génération par photoconduction . . . . .	12
C Exemples de sources THz continues . . . . .	15
C.1 Carcinotron . . . . .	15
C.2 Laser à cascade quantique . . . . .	15
C.3 Photomélanges . . . . .	18
D Détection d'ondes THz . . . . .	20
D.1 Détection incohérente adaptée au rayonnement continu ou impulsionnel . . . . .	20
D.2 Détection du champ électrique THz d'une IMPULSION . . . . .	25
E Applications et motivations dans le domaine THz . . . . .	30
E.1 Spectroscopie THz . . . . .	30
E.2 Imagerie et microscopie THz . . . . .	34
E.3 Motivations de ce travail de thèse . . . . .	38
F Conclusion du chapitre . . . . .	39
<b>2 Génération et détection THz : nos choix expérimentaux</b>	<b>41</b>
A Montage expérimental . . . . .	41
A.1 Laser titane saphir Ti :Sa . . . . .	41
A.2 Cristaux non linéaires . . . . .	48
A.3 Détecteurs . . . . .	49
B Caractérisation du rayonnement émis . . . . .	52

B.1	Puissance rayonnée . . . . .	52
B.2	Diagramme angulaire de rayonnement . . . . .	56
B.3	Rayonnement non linéaire . . . . .	58
B.4	Etude de la polarisation . . . . .	58
B.5	Etude azimutale . . . . .	60
B.6	Spectre du rayonnement détecté . . . . .	64
<b>3</b>	<b>Microscopie THz de champ proche</b>	<b>71</b>
A	Introduction à la microscopie optique de champ proche . . . . .	71
A.1	Diffraction et résolution en optique . . . . .	71
A.2	Les idées de l'optique de champ proche . . . . .	74
B	Mode à ouverture . . . . .	75
B.1	Présentation . . . . .	75
B.2	Montage expérimental . . . . .	76
B.3	Images-résultats expérimentaux . . . . .	77
B.4	Conclusions . . . . .	85
C	Mode collection . . . . .	86
C.1	Présentation . . . . .	86
C.2	Description du montage . . . . .	87
C.3	Résultats et difficultés . . . . .	89
D	Conclusion de ce chapitre . . . . .	93
<b>4</b>	<b>Caractérisation et modélisation</b>	<b>95</b>
A	Introduction . . . . .	95
B	Caractérisation de la taille de la source . . . . .	96
C	Point Spread Function . . . . .	98
C.1	Définition . . . . .	98
C.2	Résultats et commentaires . . . . .	99
D	Etude du bruit . . . . .	102
E	Influence de la diffraction . . . . .	103
E.1	Sur les images de tiges de tungstène . . . . .	103
E.2	Sur les images de billes de silice . . . . .	109
F	Conclusion du chapitre . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>117</b>
<b>6</b>	<b>Annexes</b>	<b>119</b>
A	Procédures de réglages des lasers . . . . .	119
B	Détecteurs . . . . .	120
B.1	Caractéristiques techniques du bolomètre et du détecteur HgCdTe . . . . .	121
B.2	Procédure de pompage du bolomètre . . . . .	130

B.3	Procédure de refroidissement du bolomètre . . . . .	130
C	Procédures de réglages optiques pour microscope en mode collection . . . . .	131



---

# Introduction

---

L'imagerie et la microscopie optique occupe aujourd'hui une place importante dans nos laboratoires de recherche comme outil de diagnostic, d'identification ou tout simplement de visualisation. La recherche permanente d'amélioration en terme de contraste et de résolution porte encore des fruits. Le microscope a beau être un instrument très ancien, inventé par Hooke en 1667, il connaît encore aujourd'hui de réelles améliorations, à savoir le microscope interférentiel, le microscope confocal, le microscope 4-pi, le microscope de champ proche.

Récemment, et dans l'optique de trouver un contraste novateur, un nouveau type de microscopie a vu le jour : la microscopie terahertz. terahertz fait référence au domaine du spectre électromagnétique compris entre le domaine infrarouge et le domaine des micro-ondes ; en fréquence, cela correspond à un intervalle compris entre 0,1 et 10 THz. Cette partie du spectre ayant été peu explorée jusqu'à ces vingt dernières années, la microscopie terahertz est une matière encore jeune. Elle apporte un contraste optique novateur, sensible aux niveaux vibrationnels et rotationnels des matériaux. L'aspect spectroscopique dans ce domaine de fréquence peut dès lors mener à une caractérisation et à une identification unique des matériaux ou échantillons. De plus, ce contraste permet d'envisager une visualisation d'objets invisibles ou opaques dans le visible !

Toutefois, la microscopie terahertz s'accompagne d'une résolution médiocre. En absence de toute aberration optique, celle-ci est limitée par la diffraction et la longueur d'onde moyenne d'illumination, à savoir 300  $\mu m$  pour une fréquence de 1 THz. Cette faible résolution limite énormément les applications possibles futures de la microscopie terahertz.

Cependant, les techniques nouvellement développées dans le visible de microscopie optique de champ proche sont parfaitement transposables dans le domaine terahertz, permettant d'espérer des gains de résolution d'au moins un facteur 100. C'est dans ce contexte hésitant mais prometteur que s'inscrit ce travail de thèse. Ce dernier a consisté en la conception et la réalisation de deux microscopes optiques terahertz originaux de champ proche. Ces derniers reposent sur deux idées complémentaires permettant d'avoir accès à l'information optique de champ proche.

Dans ce manuscrit de thèse, nous faisons dans un premier temps une introduction du domaine terahertz. Les différentes sources et détecteurs des ondes terahertz sont décrits dans cette partie. La présentation de l'état de l'art du domaine terahertz est aussi l'occasion de rappeler les motivations de ce travail de recherche.

Pour construire un microscope optique terahertz, il est nécessaire de se procurer une source terahertz, un détecteur sensible à ce domaine de fréquences électromagnétiques et un jeu d'optiques de focalisation et de collection, spécifiques du domaine. Le second chapitre est l'occasion de préciser tous nos choix expérimentaux concernant la conception des microscopes.

Le troisième chapitre est, quant à lui, consacré aux résultats expérimentaux obtenus avec nos instruments nouvellement conçus de microscopie optique de champ proche. Les difficultés et incompréhensions liées aux résultats originaux obtenus sont mises en valeur à la fin de chaque section.

Le dernier chapitre apporte de nombreuses pistes, études et simulations visant à caractériser les instruments et à comprendre la formation des images obtenues par ces derniers.

---

# Introduction au domaine terahertz

---

## Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Le domaine terahertz</b> . . . . .	<b>2</b>
A.1	Définition . . . . .	2
A.2	Ordres de grandeur . . . . .	3
<b>B</b>	<b>Génération d'impulsions THz</b> . . . . .	<b>4</b>
B.1	Motivations . . . . .	4
B.2	Génération par rectification optique . . . . .	4
B.3	Génération par photoconduction . . . . .	12
<b>C</b>	<b>Exemples de sources THz continues</b> . . . . .	<b>15</b>
C.1	Carcinotron . . . . .	15
C.2	Laser à cascade quantique . . . . .	15
C.3	Photomélanges . . . . .	18
<b>D</b>	<b>Détection d'ondes THz</b> . . . . .	<b>20</b>
D.1	Détection incohérente adaptée au rayonnement continu ou impulsionnel . . . . .	20
D.2	Détection du champ électrique THz d'une IMPULSION . . . . .	25
<b>E</b>	<b>Applications et motivations dans le domaine THz</b> . . . . .	<b>30</b>
E.1	Spectroscopie THz . . . . .	30
E.2	Imagerie et microscopie THz . . . . .	34
E.3	Motivations de ce travail de thèse . . . . .	38
<b>F</b>	<b>Conclusion du chapitre</b> . . . . .	<b>39</b>

---

## A Le domaine terahertz

### A.1 Définition

On appelle le domaine terahertz (THz) ou lointain infrarouge, la partie du spectre électromagnétique située entre l'infrarouge et les micro-ondes, d'un point de vue fréquentiel, il s'étend de 0,1 THz à une dizaine de THz. En longueur d'onde, le domaine THz va de  $30 \mu\text{m}$  à 3 mm. La figure 1.1 dresse une vue générale du spectre électromagnétique en insistant sur la zone THz, que l'on caractérise parfois par le "gap THz", du fait du faible développement applicatif de cette zone. On peut d'ores et déjà remarquer que la zone THz se situe à la frontière entre deux domaines de recherche distincts l'un concernant l'électronique (partie ondes hertziennes) et l'autre concernant l'optique. Nous verrons par la suite que ce croisement de chemins se répercute dans les techniques de génération et de détection des ondes THz.

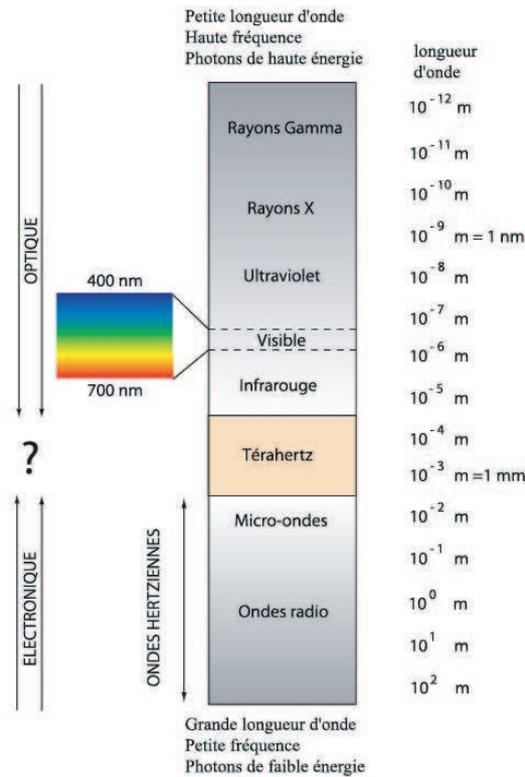


FIG. 1.1: Le spectre électromagnétique.

Le spectre électromagnétique est séparé en zones de manière assez artificielle, avec souvent comme référence le domaine visible. Chaque zone, une fois le principe de génération et de détection des photons d'intérêt maîtrisé, connaît un fort développement surtout axé sur la réalisation d'applications grand public. Pour le domaine des rayons X, on peut citer la radiographie médicale X ; le domaine UV a donné lieu au développement de la photochimie, de la lithographie et de matériaux filtrant les UV, utilisés dans les lunettes de soleil ou crèmes solaires ; le domaine IR a vu l'explosion de systèmes de commandes sans fil et de la spectroscopie des vibrations moléculaires ; le domaine micro-ondes peut s'enorgueillir du four micro-ondes ou du téléphone portable ; les ondes radio sont à la base des télécommunications ; mais le domaine THz lui ne connaît pas à l'heure actuelle de telles applications essentiellement parce qu'il constitue un domaine de recherche jeune, en plein développement.

## A.2 Ordres de grandeur

Avant d'aller plus loin dans la description de ces ondes THz, il semble pertinent de donner quelques ordres de grandeur afin de mieux percevoir les mécanismes d'interaction lumière matière (voir tableau 1.1).

Fréquence (THz)	Nombre d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ )	Longueur d'onde ( $\mu\text{m}$ )	Énergie (meV)	Température (K)
0,1	3.33	3000	0,41	5
1	33.3	300	4,1	50
10	333	30	41	500
29,7	990	10,1 ( $\text{CO}_2$ )	123	1490
375	12500	800 (Ti :Sa)	1556	18850

TAB. 1.1: Grandeurs physiques caractéristiques du domaine THz

Dans la suite du document, il faudra garder à l'esprit qu'une onde de 1 THz a une longueur d'onde de 300  $\mu\text{m}$  et une énergie de 4 meV. Ces faibles énergies de photons expliquent pourquoi les ondes THz sont souvent considérées comme non invasives ; en effet l'excitation de la matière se fait essentiellement sur des niveaux rotationnels et plus rarement vibrationnels. Les chercheurs ont alors envisagé trois pôles d'applications du domaine THz ; le premier concerne l'imagerie et le deuxième, la spectroscopie et le dernier entre en relation avec les télécommunications. Mais avant d'en dire plus, intéressons-nous aux moyens de génération et de détection d'ondes THz.

## B Génération d'impulsions THz

### B.1 Motivations

La première exploration quantitative du domaine THz a été menée par Rubens <sup>[1]</sup> lors de l'étude du rayonnement du corps noir. Toutefois, le domaine THz est resté pendant près d'un siècle privé de sources puissantes. Seuls les corps noirs étaient capables de générer de telles ondes, et la détection se faisait essentiellement avec les détecteurs pyroélectriques ou avec des bolomètres. On peut citer aussi mais de manière plutôt marginale, l'utilisation de lasers moléculaires dans l'infrarouge lointain. Il a fallu attendre l'arrivée des lasers impulsions (lasers produisant des impulsions de lumière dont le champ électrique est confiné dans le temps à des échelles proches de la dizaine de femtosecondes dans le domaine visible par exemple) pour voir un engouement certain de la communauté scientifique pour ce domaine de recherche. En effet la majorité des sources THz impulsions actuelles repose sur l'excitation de différents matériaux par des impulsions laser ultracourtes. Rectification (ou redressement) optique <sup>[2]</sup> et photoconduction <sup>[3]</sup> sont les deux approches les plus performantes pour générer des impulsions THz large bande spectrale (allant jusqu'à plusieurs dizaines de THz). Par la suite, nous allons commenter la nature et l'évolution de ces deux approches.

### B.2 Génération par rectification optique

#### B.2.1 Bref rappel historique

La rectification optique, qui est un effet non linéaire du second ordre, cas particulier de la différence de fréquences, a été découverte par Franken en 1962 <sup>[2]</sup>. Cet effet fut utilisé en 1970 par Yajima et Takeuchi <sup>[4]</sup> et en 1971 par Morris <sup>[5]</sup> et Shen <sup>[5,6]</sup> pour générer des ondes THz, dénommées à l'époque lointain infrarouge. C'est la première démonstration expérimentale. Elle sera aussi observée deux ans plus tard par D. H. Auston <sup>[7]</sup> à la différence près que l'effet non linéaire utilisé fut la différence de fréquences entre deux lasers continus accordables. Cette avancée majeure n'aura pourtant que

- 
- [1] H. Rubens and B.W. Snow. On the refraction of rays of great wavelength in rock salt, and fluorite. *Phil. Mag.*, 35 :35–45, 1894.
  - [2] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich. Optical rectification. *Phys. Rev. Lett.*, 9(11) :446–448, december 1962.
  - [3] D. H. Auston. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon. *Appl. Phys. Lett.*, 26(3) :101–103, 1975.
  - [4] T. Yajima and N. Takeuchi. Far-infrared difference frequency generation by picosecond laser pulses. *Jap. Journ. Appl. Phys.*, 9 :1361–1371, 1970.
  - [5] J. R. Morris and Y. R. Shen. Far-infrared generation by picosecond pulses in electro-optical materials. *Opt. Comm.*, 3(2) :81–84, 1971.
  - [6] K. H. Yang, P. L. Richards, and Shen Y. R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in linbo3. *Appl. Phys. Lett.*, 19 :320, 1971.
  - [7] D. H. Auston, A. M. Glass, and P. LeFur. Tunable far-infrared generation by difference frequency mixing of dye lasers in reduced (black) lithium niobate. *Appl. Phys. Lett.*, 23(1) :47, 1973.

peu d'impact dans la communauté scientifique, essentiellement parce que la détection des ondes THz reste difficile. Il faut alors attendre plus de 10 ans pour voir ce phénomène à nouveau exploité par Auston lui-même [8,9]. Ce dernier applique cette approche aux nouveaux lasers impulsionsnels à colorants (dont la durée d'impulsions est inférieure à la picoseconde) et développe une technique de détection cohérente basée sur l'effet Pockels sur lequel nous reviendrons plus tard. A ce moment, Auston vient de mettre au point l'idée de base de génération et de détection d'impulsions THz à partir d'effets d'optique non linéaire. Les développements suivants d'impulsions THz reposent tous sur cette combinaison génération-détection de champ électrique impulsionsnel THz. Toutefois, il est possible de dégager plusieurs axes de développements.

- Le premier point de développement a été la recherche de nouveaux matériaux non linéaires très efficaces pour la rectification optique. Historiquement les premiers essais ont été réalisés sur du niobate de lithium  $\text{LiNbO}_3$  [6]. Dans la catégorie semi-conducteurs présentant un coefficient diélectrique non linéaire d'ordre 2, on peut citer aussi l'arsénure de gallium  $\text{GaAs}$  [10], le phosphate de gallium  $\text{GaP}$ ,  $\text{InP}$  [11], le tantate de lithium  $\text{LiTaO}_3$  [12], le tellure de cadmium  $\text{CdTe}$  [11], le tellure de zinc  $\text{ZnTe}$  [4], le sélénure de zinc  $\text{ZnSe}$  [4], et le sulfure de cadmium  $\text{CdS}$  [4]. Tous ces cristaux se regroupent dans une même famille cristallographique, à savoir les cristaux de type blende. Actuellement le cristal le plus utilisé est le tellure de zinc ( $\text{ZnTe}$ ) aussi bien pour générer des impulsions THz que pour les détecter, car il possède des coefficients électro-optique importants, est facilement cristallisable et possède un seuil de dommage assez haut. Il permet aussi de réaliser facilement l'accord de phase pour générer des ondes monochromatiques THz. Il faut citer par ailleurs les efforts de plusieurs équipes pour développer des matériaux non linéaires organiques comme le DAST (Dimethyl Amino 4-N-methylStilbazolium Tosylate) [13,14]. Le DAST possède un coefficient électro-optique beaucoup plus élevé que celui du  $\text{ZnTe}$  d'un facteur 10 [13]. Mais c'est un cristal organique, il possède un seuil de dommage plus bas qu'un semi-conducteur comme le  $\text{ZnTe}$ . Enfin, de récents progrès ont été faits pour fabriquer des polymères dopés avec

- 
- [8] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith. Picosecond photoconducting hertzian dipoles. *Appl. Phys. Lett.*, 45 :284, 1984.
- [9] D. H. Auston and M. C. Nuss. Electro-optic generation and detection of femtosecond electrical transients. *IEEE J. Quan. Elec.*, 24 :184–197, 1988.
- [10] X.-C. Zhang, Y. Jin, K. Yang, and L. J. Schowalter. Resonant nonlinear susceptibility near the gas band gap. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :2303–2306, 1992.
- [11] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander. Terahertz optical rectification from (110) zincblende crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 64(11) :1324–1326, 1994.
- [12] B. B. Hu, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith. Free-space radiation from electro-optic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 56 :506–508, 1990.
- [13] X. C. Zhang, X. F. Ma, Y. Jin, T. M. Lu, E. P. Boden, P. D. Phelps, K. R. Stewart, and C. P. Yakymyshyn. Terahertz optical rectification from a nonlinear organic-crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 61 :3080–3082, October 1992.
- [14] A. Schneider, I. Biaggio, and P. Gunter. Optimized generation of thz pulses via optical rectification in the organic salt dast. *Opt. Comm.*, 224(4-6) :337–341, 2003.

des chromophores non linéaires <sup>[15]</sup>, mais ces matériaux restent à l'étape de recherche.

- Le second point a consisté à chercher les conditions expérimentales permettant un élargissement du spectre THz émis. La technique de rectification optique est attractive pour la possibilité de générer des ondes de fréquence supérieure à 10THz <sup>[16,17,18]</sup>. La largeur du spectre émis dépend essentiellement des conditions d'accord de phase réalisées ou non dans le cristal non linéaire. Nous reviendrons sur ce point dans les paragraphes suivants.
- Enfin le dernier point a été le passage de la rectification optique à la différence de fréquences entre deux lasers continus accordables. Cette technique permet notamment d'améliorer notablement le rendement de conversion en utilisant des cristaux taillés à l'accord de phase. La contrepartie évidente de ce processus est la perte de la nature impulsionnelle des ondes THz générées.

### B.2.2 Notions d'optique non linéaire

La rectification (ou redressement) optique est un cas particulier de la différence de fréquences optiques, qui a lieu dans un matériau non centrosymétrique. L'origine de cet effet non linéaire réside dans la réponse non linéaire d'un matériau à une excitation électromagnétique, qui est caractérisée par une grandeur vectorielle nommée polarisation. L'expression de la polarisation  $\mathbf{P}$  du milieu peut être développée en série entière du champ électrique exciteur. Les effets non linéaires d'ordre  $n$  sont caractérisés par des termes impliquant un produit de  $n$  composantes du champ électrique. En ne gardant que les deux premiers termes du développement de Taylor,  $\mathbf{P}$  s'écrit :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(\mathbf{t}) + \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\mathbf{t})^2 \quad (1.1)$$

La rectification optique fait donc intervenir le terme en  $\chi^{(2)}$  spécifique du matériau utilisé et qui nous permet d'identifier les effets non linéaires du second ordre dont fait partie la rectification optique. La grandeur  $\chi$  s'appelle le tenseur diélectrique du matériau. Il tient compte de l'aspect vectoriel de la lumière et de l'interaction linéaire et non linéaire lumière matière. Pour caractériser les différents effets d'optique non linéaire, il est usuel de prendre la transformée de Fourier de l'équation précédente 1.1. En passant dans le domaine des fréquences, il est plus aisé d'identifier les processus non linéaires et de les caractériser, comme le fait le tableau 1.2 pour les processus optiques non linéaires d'ordre 2 :

- 
- [15] A. Nahata, D. H. Auston, C. J. Wu, and J. T. Yardley. Generation of terahertz radiation from a poled polymer. *Appl. Phys. Lett.*, 67(10) :1358–1360, 1995.
- [16] A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin, and A. Migus. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the midinfrared by optical rectification of 15 fs light-pulses at 100 mhz repetition rate. *Appl. Phys. Lett.*, 67(20) :2907–2909, 1995.
- [17] P. Y. Han, G. C. Cho, and X. C. Zhang. Broad band mid-infrared thz pulse : Measurement technique and applications. *J. Non. Opt. Phys.*, 8(1) :89–105, 1999.
- [18] P. Y. Han and X. C. Zhang. Coherent, broadband midinfrared terahertz beam sensors. *Appl. Phys. Lett.*, 73(21) :3049–3051, 1998.

Processus non linéaires	description	$\chi^{(2)}$
Génération de Seconde Harmonique (Acronyme anglais SHG)	entrée : faisceau à $\omega$ sortie : faisceau à $2\omega$	$\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$
Génération par somme ou différence de fréquences	entrée : faisceaux à $\omega_1, \omega_2$ sortie : faisceau à $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$	$\chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \pm\omega_2)$
Effet électro-optique linéaire	entrée : champ statique et faisceau à $\omega$ sortie : faisceau à $\omega$ modulé en phase	$\chi^{(2)}(\omega; 0, \omega)$
Rectification optique	entrée : faisceau à $\omega$ sortie : polarisation statique	$\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$

TAB. 1.2: Différents effets non linéaires du second ordre.

### B.2.3 Impulsions gaussiennes

L'équation 1.1 permet la détermination de la réponse du milieu à condition de connaître le champ électrique exciteur. Or pour créer une impulsion THz (i.e. champ électrique confiné dans le temps à l'échelle de la picoseconde) par rectification optique, il ne suffit pas d'envoyer deux ondes monochromatiques dans un milieu non linéaire, mais il faut aussi exciter le matériau avec une multitude d'ondes monochromatiques, i.e. une impulsion laser ultracourte. En supposant pour simplifier que la direction de polarisation du champ électrique est linéaire, le champ électrique exciteur d'une impulsion gaussienne se propageant suivant la direction  $z$  se résume à une seule composante qui s'écrit sans approximation sous la forme d'une intégrale de Fourier :

$$E(z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(z, \omega) \cdot e^{i\omega t} d\omega = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0 e^{-(\omega - \omega_0)^2 \tau_p^2} \cdot e^{i(\omega t - k(\omega)z)} d\omega \quad (1.2)$$

$\tau_p$  définit la largeur temporelle de l'impulsion lumineuse de la manière suivante :

$$\tau_p = \frac{FWHM}{\sqrt{8 \ln 2}} \quad (1.3)$$

avec FWHM Full Width at Half Maximum soit en français la largeur totale à mi-hauteur. Si l'on suppose que le matériau est dispersif, on peut développer en série de Taylor  $k(\omega)$  au voisinage de  $\omega_0$  en puissance de  $(\omega - \omega_0)$ . Généralement on s'arrête à l'ordre 2 pour des impulsions de durée voisine de 100fs et de fréquence porteuse autour de 375THz ( $\lambda = 800\text{nm}$ ), car  $\Delta\omega \ll \omega_0$  :

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left( \frac{d^2k}{d\omega^2} \right)_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 \quad (1.4)$$

où

$$\left( \frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_0} = \frac{1}{v_g} = \frac{n_g(\lambda)}{c} \quad (1.5)$$

et  $v_g$  est la vitesse de groupe de l'impulsion et  $n_g(\lambda)$  l'indice de groupe du milieu à la longueur d'onde  $\lambda$ . La composante spectrale  $E(x, \omega)$  du champ électrique s'écrit alors :

$$E(z, \omega) = E_0 e^{-ik(\omega_0)z - i \frac{dk}{d\omega} z (\omega - \omega_0) - (\tau_p^2 + \frac{i}{2} z \frac{d^2k}{d\omega^2}) (\omega - \omega_0)^2} \quad (1.6)$$

En intégrant l'équation 1.6, il est possible de trouver l'expression en fonction du temps du champ électrique de cette impulsion gaussienne :

$$E(z, t) = A(z, t) \cdot e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} \quad (1.7)$$

avec

$$A(z, t) = A_0 \cdot e^{-\frac{(t - \frac{z}{v_g})^2}{4\tau_p^2}} \quad (1.8)$$

où  $A(t)$  est l'enveloppe gaussienne de l'impulsion ultracourte et  $\omega_0$  est la fréquence de la porteuse.

#### B.2.4 Equation d'onde

Nous connaissons désormais la réponse temporelle non linéaire liée à la rectification optique d'un matériau soumis à une excitation électromagnétique intense, mais nous ignorons encore l'émission électromagnétique induite par cette réponse non linéaire. Pour lever la difficulté, il suffit de faire appel aux équations de Maxwell, qui vont nous permettre de comprendre comment un matériau non linéaire arrive à générer des ondes THz. Les équations de Maxwell s'écrivent suivant le système d'unités MKSA et en considérant un espace à trois dimensions spatiales référencées par la variable vectorielle  $\mathbf{r}$  :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (1.9)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) + \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (1.10)$$

En supposant que le milieu ne possède pas de charges libres ( $\rho_{libres} = 0$ ) et que  $div(\mathbf{P}) = 0$ , la relation entre le champ électrique  $\mathbf{E}$  et le déplacement  $\mathbf{D}$  s'écrit à partir des équations 1.9 et 1.10 :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \quad (1.11)$$

Comme nous travaillons avec des impulsions lumineuses, il paraît plus judicieux d'écrire cette équation d'onde dans l'espace des fréquences. Concrètement, il suffit d'écrire le vecteur champ électrique  $\mathbf{E}$  et le vecteur déplacement  $\mathbf{D}$  à partir de leur transformée de Fourier :

$$\Delta \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \cdot e^{i\omega t} d\omega = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) \cdot e^{i\omega t} d\omega \quad (1.12)$$

Les opérateurs dérivée spatiale ou temporelle et l'opérateur intégrale commutent, ce qui nous permet de simplifier l'équation précédente 1.12 :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\omega^2 \mu_0 \mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) \quad (1.13)$$

où  $\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega)$  s'écrit comme :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 [1 + \chi^{(1)}(\omega)] \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) \quad (1.14)$$

L'expression précédente introduite dans l'équation 1.14 donne l'expression finale de l'équation d'onde explicitant l'émission d'ondes électromagnétiques à partir des polarisations linéaire et non linéaire du matériau :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega) \quad (1.15)$$

où  $\epsilon(\omega) = \epsilon_0(1 + \chi^{(1)}(\omega))$ . Le terme  $\mathbf{P}_{NL}$  dans la partie droite de l'égalité agit comme un terme source.

### B.2.5 Polarisation continue induite par rectification optique

A ce stade, il est intéressant de regarder plus en détail l'équation 1.15 de manière à comprendre précisément comment une impulsion gaussienne laser dans le visible peut être la source de rayonnement dans le domaine THz. Il nous faut donc détailler un peu plus le terme source  $\mathbf{P}_{NL}$  dans le cadre restreint de la rectification optique, effet non linéaire du second ordre. Nous nous placerons aussi dans un cas où toutes les grandeurs sont considérées scalaires pour plus de simplicité dans les expressions mathématiques.

Ainsi, si le mélange de fréquences optiques a lieu dans un matériau non centrosymétrique et dont le  $\chi^{(2)}$  n'est pas nul, le terme d'ordre deux de la polarisation non linéaire se met alors sous la forme suivante :

$$P^{(2)}(z, t) = \epsilon_0 \frac{\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega) A(z, t)^2}{2} + \epsilon_0 \frac{\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) A(z, t)^2}{2} e^{(2i\omega_0 t)} \quad (1.16)$$

Le premier terme de la partie de droite de l'égalité 1.9 est le terme de rectification optique (notée OR dans la suite pour Optical Rectification). Le second terme est le terme de génération de seconde harmonique. Dès lors pour un pulse gaussien tel que défini comme précédemment (voir équations 1.7 et 1.8), i.e. se propageant suivant la direction  $z$ , la polarisation continue générée par rectification optique est donnée par :

$$P_{OR}^{(2)}(z, t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)}(0; \omega, -\omega) A_0^2 \cdot e^{-\frac{(t - \frac{z}{v_g})^2}{2\tau_p^2}} = P_0 \cdot e^{-\frac{(t - \frac{z}{v_g})^2}{2\tau_p^2}} \quad (1.17)$$

expression pour laquelle nous avons négligé la dispersion du terme  $\chi^2$  pour les différentes composantes spectrales de l'impulsion incidente. En passant dans le domaine de fréquences, l'équation 1.17 devient :

$$P_{OR}^{(2)}(z, \omega) = \frac{P_0}{\sqrt{2\pi}} \tau_p \cdot e^{-\frac{\omega^2 \tau_p^2}{2}} e^{-i\omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.18)$$

En revenant à l'équation 1.15, le terme de droite de cette équation s'écrit :

$$-\mu_0 \omega^2 P_{NL}(z, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \frac{P_0}{\sqrt{2\pi}} \tau_p \cdot e^{-\frac{\omega^2 \tau_p^2}{2}} e^{-i\omega \frac{z}{v_g}} = a_0 \omega^2 \tau_p e^{-\frac{\omega^2 \tau_p^2}{2}} e^{-i\omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.19)$$

C'est ce terme source qui est responsable de la génération de la radiation THz, nous allons donc l'analyser plus en détail. Son amplitude est donnée par :

$$a(\omega) = a_0 \omega^2 \tau_p e^{-\frac{\omega^2 \tau_p^2}{2}} \quad (1.20)$$

On peut résumer les points importants liés aux équations 1.19 et 1.20 :

- Le terme source du rayonnement THz est proportionnel à  $\omega^2$ , cela signifie que la rectification optique n'est pas une méthode efficace pour générer des fréquences basses (<100 GHz).
- Le terme source est proportionnel au carré du champ électrique incident, i.e. la puissance optique moyenne incidente, ce qui traduit un processus non linéaire d'ordre 2.
- L'influence de la durée de l'impulsion incidente est résumée sur la figure 1.2. Elle représente l'évolution de  $a(\omega)$  pour différentes durées d'impulsions. Pour des impulsions dans le régime femtoseconde, on constate qu'il existe des termes différents de 0 dans le régime THz. C'est ce qui explique pourquoi des impulsions ultracourtes sont utilisées pour générer des ondes THz. Pour une impulsion de 100fs, il y a des termes non nuls pour des fréquences supérieures à 20 THz,

ce qui constitue déjà le début du domaine infra-rouge. La durée de l'impulsion joue un double rôle. D'une part, une courte durée d'impulsion correspond à un spectre large et donc un spectre THz généré large. D'autre part, une courte durée d'impulsion s'accompagne d'une puissance crête incidente plus grande et donc un terme source pour la génération THz beaucoup plus intense, comme le montre l'évolution du maximum du terme source en fonction de  $\tau$  que nous avons calculé et représenté sur la figure 1.2.

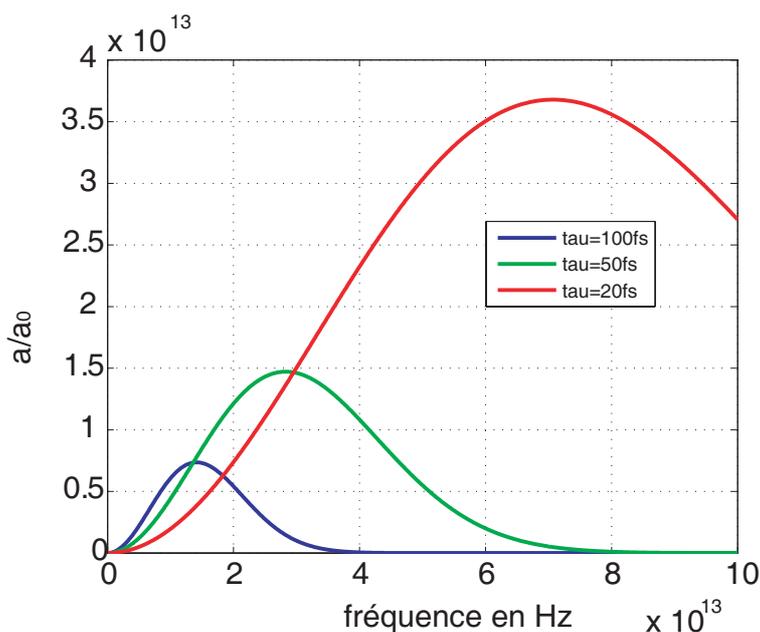


FIG. 1.2: Evolution du terme  $a(\omega)$  pour différentes durées d'impulsions 100fs (bleu), 50fs (vert) et 20fs (rouge).

### B.2.6 Émission THz et accord de phase

De la même manière que pour la génération de seconde harmonique (Second Harmonic Generation, SHG), la génération par rectification optique n'est efficace que si la condition d'accord de phase est réalisée. Dans le cas de l'effet de SHG, cette condition consiste à équilibrer la vitesse de propagation de l'onde pompe à  $\omega$  et la vitesse de propagation de l'onde générée à  $2\omega$  dans le matériau. Ainsi les différentes portions d'ondes générées à  $2\omega$  à différentes positions dans le cristal, interfèrent constructivement et il en résulte une émission efficace d'ondes à  $2\omega$ . Pour la rectification optique, la condition est très voisine à une différence près ; ce sont les vitesses des impulsions pompe et THz qu'il faut équilibrer. Pour s'en convaincre, cherchons à résoudre l'équation d'onde 1.15 en se plaçant à une dimension  $z$  (direction de propagation des impulsions) :

$$\Delta E(z, \omega) + \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2} E(z, \omega) = a(\omega) e^{-i\omega \frac{z}{v_g}} \quad (1.21)$$

Le champ électrique  $E(z, \omega)$  se propageant suivant l'axe des  $z$  peut s'écrire ainsi :

$$E(z, \omega) = E_{THz}(z, \omega)e^{-i\omega \frac{z \cdot n(\omega)}{c}} \quad (1.22)$$

En insérant cette expression dans l'équation 1.21, et en appliquant l'approximation de l'enveloppe lentement variable ( $\frac{d^2 E_{THz}}{dz^2} \ll k(\omega) \frac{dE_{THz}}{dz}$ ), on obtient :

$$-2ik(\omega) \frac{\partial E_{THz}(z, \omega)}{\partial z} = a(\omega)e^{i\omega z \left( \frac{n(\omega)}{c} - \frac{1}{v_g} \right)} \quad (1.23)$$

Ce résultat est connu sous le nom d'équation d'onde paraxiale, parce que l'approximation consistant à négliger le terme  $\frac{d^2 E_{THz}}{dz^2}$  dans le membre de gauche de l'équation 1.23 se justifie dans la mesure où l'onde se propage suivant  $z$ .

Si l'on suppose que l'amplitude de l'onde pompe ne diminue pas au cours de sa propagation dans le milieu non linéaire, l'émission totale THz à la fréquence  $\Omega$  à la sortie du milieu de longueur  $L$  se déduit par intégration de l'équation 1.23 :

$$E_{THz}(L, \omega) = \frac{ia(\omega)}{2k} L \cdot \text{sinc}\left(\frac{\omega}{2c}[n(\omega) - n_g]L\right) \quad (1.24)$$

Le champ électrique THz à la fréquence  $\Omega$  est maximisé quand la vitesse de phase de l'impulsion THz est égale à la vitesse de groupe de l'impulsion pompe <sup>[14]</sup> ( $n(\Omega) = n_g$ ). Cette condition d'accord de phase ne peut être remplie que pour quelques composantes spectrales à cause de la dispersion de la lumière THz dans le milieu non linéaire. Dès lors, il est nécessaire d'opérer un compromis entre l'efficacité de génération de THz et la largeur de bande spectrale associée à l'impulsion THz. Toutefois, selon les matériaux, la dispersion de la lumière THz peut être très faible, et permettre un même accord de phase pour plusieurs composantes spectrales.

## B.3 Génération par photoconduction

### B.3.1 Principe de fonctionnement

La seconde approche pour générer des impulsions THz, repose sur la photoconduction, phénomène qui permet la création de charges libres dans un semi-conducteur après illumination. Et c'est encore D. H. Auston qui est le pionnier de cette technique. En 1975 <sup>[3]</sup>, il démontre que si on éclaire, avec une impulsion laser ultracourte (durée de l'ordre de 100fs), un semi-conducteur (silicium haute résistivité ou arsénure de gallium GaAs) polarisé par une tension électrique extérieure, alors il y a création d'un transitoire de courant (voir figure 1.3 <sup>[19]</sup>) dont la durée est voisine de la picoseconde.

[14] A. Schneider, I. Biaggio, and P. Gunter. Optimized generation of thz pulses via optical rectification in the organic salt dast. *Opt. Comm.*, 224(4-6) :337–341, 2003.

[3] D. H. Auston. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon. *Appl. Phys. Lett.*, 26(3) :101–103, 1975.

[19] T. Armand, V. Blanchet, A. Bonvalet, E. Constant, B. Couillaud, A. Ducasse, B. Girard, C. Hirlimann, M. Joffre, X. Marie, E. Mével, J. Oberlé, C. Rullière, F. Salin, and L. Sarger. *Femtosecond Laser Pulses*. Springer, 2003.

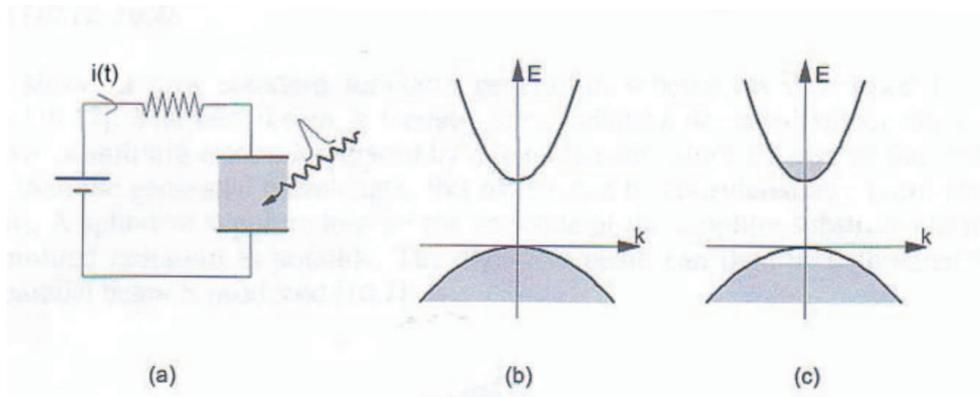


FIG. 1.3: (a) Une tension constante est appliquée au semi-conducteur, qui est illuminé par une impulsion visible ultra-courte. (b) Avant irradiation, le diagramme des bandes montre que les électrons sont tous liés au réseau dans la bande de valence. (c) Après illumination, une fraction d'électrons est passée dans la bande de conduction du semi-conducteur, qui devient alors conducteur.

Quand l'impulsion ultracourte est absorbée (l'énergie du photon étant plus grande que l'énergie du gap du semi-conducteur), des charges libres sont créées et sont accélérées par la tension constante appliquée au semi-conducteur. Or d'après les équations de Maxwell, une charge accélérée rayonne. Ainsi ce transitoire de courant se traduit par une émission électromagnétique transitoire qui contient des composantes fréquentielles du domaine THz. Cette source d'impulsion THz se nomme "Auston switch" [20] et elle a joué un rôle aussi important dans le développement de la recherche et des applications THz que les sources lasers à impulsions ultra-courtes. Le champ électrique émis provient donc du transitoire de photocourant  $J$  ( $J = env$ ,  $e$  charge de l'électron,  $n$  densité de charges, et  $v$  la vitesse des porteurs),  $E_{THz} \propto \frac{\partial J}{\partial t}$ . Ce terme provient des deux processus suivants :

- l'accélération des porteurs générés sous l'effet du champ électrique,  $en \frac{\partial v}{\partial t}$
- Le changement brusque de densité de porteurs libres,  $ev \frac{\partial n}{\partial t}$

d'où

$$E_{THz} \propto en \frac{\partial v}{\partial t} + ev \frac{\partial n}{\partial t} \quad (1.25)$$

Pour aller plus loin dans la compréhension physique des deux processus évoqués précédemment, il est nécessaire de donner quelques ordres de grandeur et donc de fixer le type d'antenne utilisée, à savoir une antenne en GaAs, déposée à basse température (Low Temperature GaAs=LT-GaAs). Dans ce matériau seulement, le temps de vie des porteurs libres ( $\tau_t = \frac{\tau_e + \tau_h}{2}$ , où  $\tau_e=0.1$  ps et  $\tau_h=0.4$  ps, des valeurs aussi basses sont atteintes grâce à la technique de fabrication du GaAs - épitaxie à basse température -) est approximativement égal au temps de piégeage des porteurs dans le semi-

[20] P. Lefur and D. H. Auston. Kilovolt picosecond optoelectronic switch and pockels cell. *Appl. Phys. Lett.*, 28(1) :21–23, 1976.

conducteur ; car le temps de piégeage des porteurs libres dans les états en milieu de gap est plus court que le temps de recombinaison des paires électrons-trous <sup>[21,22]</sup>.

Dans ces conditions, le comportement temporel de la densité des porteurs libres est donné par :

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau_t} + G(t) \quad (1.26)$$

où  $n$  est la densité de porteurs,  $G(t) = n_0 \cdot \exp(-(\frac{t}{\Delta t})^2)$  est le taux de génération des porteurs dû à l'impulsion laser, avec  $\Delta t$  la durée de l'impulsion qui peut être choisie entre 20 et 200fs, et  $n_0$  la densité de porteurs libres générés à  $t=0$ . Le temps  $\tau_t$  peut être contrôlé expérimentalement à la fabrication de l'antenne, en modifiant la température de recuit pour des antennes en LT-GaAs contenant des concentrations différentes d'excès d'arsenic. Ainsi la partie du photocourant et donc du champ électrique rayonné provenant du brusque changement de la densité de porteurs, est contrôlable à la fois par la fabrication de l'antenne et par la durée de l'impulsion.

Le second terme en  $\frac{\partial v}{\partial t}$  peut lui aussi se séparer en deux termes,

$$\frac{dv_{e,h}}{dt} = -\frac{v_{e,h}}{\tau_{rel}} + \frac{q_{e,h}E}{m_{eff,e,h}} \quad (1.27)$$

où  $v_{e,h}$  est la vitesse moyenne des porteurs,  $q_{e,h}$  la charge des porteurs,  $\tau_{rel}$  le temps de relaxation du moment (égal à 30fs dans LT-GaAs), et  $E$  le champ électrique local, qui diffère légèrement du champ électrique imposé aux électrodes de l'antenne. En effet, l'écrantage des charges va rendre le champ électrique local plus petit que le champ électrique appliqué.

En somme le champ électrique rayonné peut s'écrire de la manière suivante :

$$E_{THz} \propto -en(t)\frac{v(t)_{e,h}}{\tau_{rel}} + \frac{en(t)q_{e,h}E}{m_{eff,e,h}} - ev(t)\frac{n}{\tau_t} + ev(t)n_0 \cdot \exp(-(\frac{t}{\Delta t})^2) \quad (1.28)$$

A partir de ce modèle de Drude, plusieurs simulations ont été menées par Piao et al. <sup>[21]</sup>, et nous pouvons résumer les points importants :

- $E_{THz}$  est proportionnel à l'inverse de la masse effective des porteurs. Comme la masse effective des trous dans LT-GaAs est 5 fois plus grande que celle des électrons, l'effet des trous dans la radiation THz est très limité comparé à celui engendré par les électrons. Toutefois, l'effet des trous ne peut être ignoré dans le calcul du champ électrique local.
- Dans l'équation 1.28, les deux derniers termes de droite, dûs au changement de la densité des porteurs, sont bien plus grands que ceux issus de l'accélération des porteurs.
- La largeur temporelle de l'impulsion THz augmente avec la durée de l'impulsion ultracourte incidente.

En conclusion, nous pouvons dire que les performances d'une antenne Auston dépendent :

- de la durée de l'impulsion optique ultracourte incidente,

---

[21] Z. Piao, M. Tani, and K. Sakai. Carrier dynamics and terahertz radiation in photoconductive antennas. *J. J. Appl. Phys.*, 39 :96–100, 2000.

[22] D. Dragoman and M. Dragoman. Terahertz fields and applications. *Prog. Quan. Elec.*, 28(1) :1–66, 2004.

- du semi-conducteur substrat dont les porteurs libres doivent avoir un très faible temps de vie de porteurs libres ( 1ps) et une grande mobilité ( $10^3 \text{ cm}^2/\text{V s}$ ),
- de la géométrie de l'antenne.

## C Exemples de sources THz continues

### C.1 Carcinotron

Les premières sources de rayonnement cohérent sont les tubes micro-ondes, inventés au début du vingtième siècle. Ces tubes, supplantés depuis par les composants à semi-conducteur dans de nombreux domaines de l'électronique, restent aujourd'hui encore indispensables dans le domaine submillimétrique, ainsi que dans les applications nécessitant de fortes puissances (telles que les émetteurs de télévision ou les radars). Ainsi, la seule source commerciale accordable oscillant au dessus de 1 THz est le carcinotron (ou Back Wave Oscillator BWO), qui a été développé dans les années 1970 en France et en Russie. Le carcinotron est donc un générateur d'ondes continues qui repose sur le principe suivant : un faisceau monocinétique d'électrons circule parallèlement à une grille. La modulation du potentiel de la grille crée un champ électrique variable, dont la fréquence est liée au pas de la grille. Cette modulation spatiale du champ de la grille module alors l'accélération des électrons qui se mettent alors à rayonner. Le niveau de puissance est compris entre 1 W aux basses fréquences et quelques milliwatts au delà de 1 THz. Ce type de source est surtout un instrument de laboratoire dont le coût élevé ( 40000 euros) et la durée de vie limitée (quelques centaines d'heures) sont rédhibitoires pour son développement. Sa fabrication repose en effet sur de la mécanique de précision devenant micrométrique aux fréquences THz. Le développement de la microtechnologie a toutefois relancé l'intérêt pour les tubes à vide avec des propositions intéressantes visant par exemple la microfabrication de klystrons (tube électronique amplificateur).

### C.2 Laser à cascade quantique

Le laser à cascade quantique (QCL) est une source laser fonctionnant dans l'infrarouge (IR) ou le lointain infrarouge (FIR ou domaine THz), source basée sur la technologie des jonctions semi-conductrices mais qui diffère notablement des diodes laser. Plus précisément, le développement de l'ingénierie de couches semi-conductrices ultrafines (0,5 – 100 nm) a permis de mettre en évidence et d'observer des phénomènes quantiques dans ces structures, phénomènes observés habituellement à des échelles atomiques. Précisément, le laser à cascade quantique est basé sur le confinement quantique et l'effet tunnel.

Le laser à cascade quantique est un excellent exemple de l'utilisation de l'ingénierie quantique pour concevoir des sources électromagnétiques efficaces dans l'IR. Depuis sa première réalisation [23], le laser à cascade quantique s'est développé pour fonctionner à plusieurs fréquences, en exploitant

---

[23] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and Y. Cho. Quantum cascade lasers. *Science*, 264 :553–556, 1994.

des "design" différents [24,25], mais utilisant toujours le même matériau : (InP/GaInAs/AlInAs). Ce n'est que récemment que des hétérostructures à base de GaAs/AlGaAs ont été implémentées pour en faire des lasers à cascade quantique [26].

Comme il est dit plus haut, le principe de fonctionnement du QCL repose sur le **confinement quantique** et **l'effet tunnel**.

Le confinement quantique signifie que le semi-conducteur est placé en "sandwich" entre deux autres semi-conducteurs n'ayant pas la même structure de bande. Les bandes de valence et de conduction présentent alors des discontinuités à leurs jonctions, comme le montre la figure 1.4.

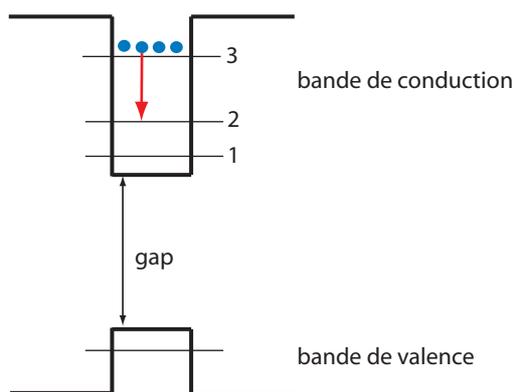


FIG. 1.4: Représentation schématique d'une transition radiative inter sous-bande dans une hétérostructure semiconductrice représentative du fonctionnement d'un laser à cascade quantique.

Ce confinement a pour effet de créer un spectre d'énergie discontinu, qui n'est pas sans rappeler celui de l'atome d'hydrogène par exemple. Suivant la dimension spatiale de ces structures, on parlera de puits quantiques (2D), fils quantiques (1D) et boîtes quantiques (0D). La grandeur physique pertinente ici est l'épaisseur  $e$  de l'hétérostructure ou "sandwich". En effet, l'éclatement des niveaux est directement relié à l'épaisseur de la couche interne ; plus l'épaisseur est faible, plus les niveaux sont éclatés. L'énergie du niveau  $E_n$  varie en fait comme  $\frac{n^2}{L^2}$ , où  $L$  est la largeur du puits quantique. Le laser à cascade quantique est quant à lui un empilement de "super-réseaux", dont on contrôle l'épaisseur et la constitution. Ainsi, il est possible de positionner à façon les niveaux d'énergie et donc de modifier la fréquence du photon émis par la transition du niveau 3 vers le niveau 2.

Le deuxième phénomène quantique mis en avant dans le fonctionnement du QCL est l'effet tunnel. En fait le fonctionnement du QCL diffère de celui d'un laser classique en le sens que la cavité résonante optique est remplacée par un effet de cascade quantique représenté par la figure 1.5 et assuré par une succession de transitions tunnel entre puits quantiques.

[24] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D.L. Sivco, J. N. Bailargeon, A.L.Hutchinson, and A.Y. Cho. High power mid infrared qcl operating above room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 68 :3680–3682, 1996.

[25] J. Faist, F. Capasso, D.L. Sivco, A.L.Hutchinson, and A.Y. Cho. Short wavelength ( $\lambda = 3.4$  microns) quantum cascade laser based on strained compensated ingaas-alinas. *Appl. Phys. Lett.*, 72 :680–682, 1998.

[26] C. Sirtori, P. Kruck, S. Barbieri, P. Collot, J. Nagle, M. Beck, J. Faist, and U. Oesterle. Gaas/alxga(1-x)as quantum cascade lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 73 :3486–3488, 1998.

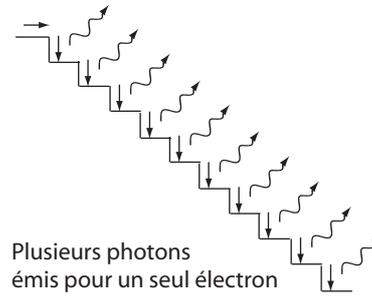


FIG. 1.5: Représentation schématique du phénomène de cascade dans un laser à cascade quantique.

Ce phénomène est amplifié par l'application d'un champ électrique extérieur qui vient courber le diagramme de bande par effet Stark. Généralement, un électron va générer entre 50 et 100 photons, ce qui signifie que le laser à cascade quantique est constitué d'une cinquantaine de zones actives, i.e. zones pour lesquelles il y a inversion de population et émission d'un photon.

On peut résumer le principe de fonctionnement d'un QCL par la figure 1.6, qui représente la succession d'une zone active et d'une zone d'injection. Un électron est injecté dans le niveau 3 de la zone active et passe par effet tunnel dans le niveau 2 tout en émettant un photon. La durée de vie du niveau 2 est inférieure à la picoseconde ce qui assure le passage quasi immédiat de l'électron vers le niveau 1, et par la même occasion cela assure l'inversion de population alors réalisée entre les niveaux 2 et 3. L'ensemble des trois niveaux 1, 2 et 3 est à rapprocher du fonctionnement d'un laser à 3 niveaux. L'électron sort ensuite du niveau 1, transite dans une nouvelle zone d'injection et le cycle recommence.

Le laser à cascade quantique peut fonctionner en régime continu ou impulsionnel suivant le mode d'injection des électrons, et la puissance optique émise peut atteindre plusieurs dizaines de mW en mode continu pour des longueurs d'onde supérieures à  $50 \mu m$  [27]. Il s'est avéré plus difficile de réaliser des QCL dans le domaine THz que dans le domaine IR pour la raison suivante : pour fonctionner dans le domaine THz, il est nécessaire de travailler à basse température (aux alentours de 10K) afin de maintenir une inversion de population entre les niveaux 1 et 2. En effet, l'énergie d'un photon THz étant de l'ordre de quelques meV, si la température extérieure est trop grande, il y a thermalisation des niveaux (facteur de Boltzmann en  $\exp(-\frac{\Delta E}{k_b T})$ ) qui se retrouvent peuplés de manière quasi identique, ce qui détruit l'inversion de population. Pourtant, à basse température, il n'y a plus d'émission de phonons optiques (l'énergie thermique n'est plus assez grande pour exciter ces phonons), qui est le mécanisme de base de thermalisation des électrons : on s'attend alors à ce que ce soit plus facile de fabriquer un laser à cascade quantique et que le courant d'injection nécessaire pour réaliser l'inversion de population soit plus petit. Mais des expériences d'électroluminescence

[27] J. Faist, L. Ajili, G. Scalari, M. Giovannini, M. Beck, M. Rochat, H. Beere, G. Davies, E. H. Linfield, and D. Ritchie. Terahertz quantum cascade lasers. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 362 :215–231, 2004.

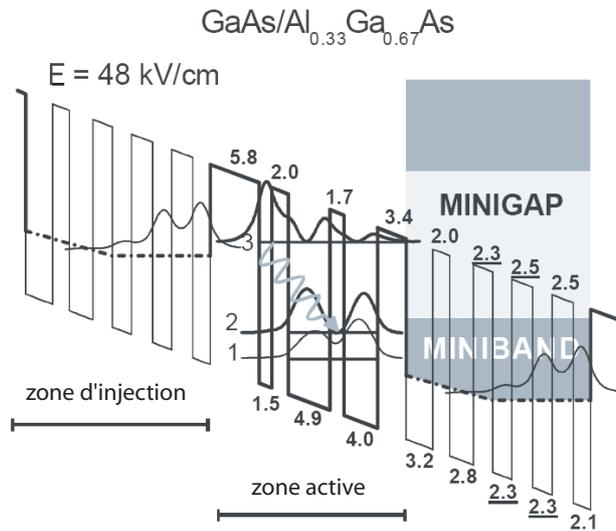


FIG. 1.6: Représentation schématique de principe de fonctionnement d'un laser à cascade quantique [23].

inter-sousbande [28] ont montré clairement que la diffusion électron-électron devenait le processus diffusif dominant dans un laser à cascade quantique à basses températures. Or la diffusion électron-électron n'a pas tendance à réduire l'énergie de l'ensemble des électrons mais plutôt à équilibrer la population entre les niveaux sousbandes ; ce qui rend alors plus difficile la réalisation d'un QCL dans le domaine THz.

### C.3 Photomélangement

Le principe de base du photomélangement (ou conversion optique hétérodyne) consiste à convertir le battement de deux signaux optiques en un rayonnement électromagnétique basse fréquence (de quelques GHz à plusieurs THz). L'existence du battement de deux signaux optiques est assuré par la superposition spatiale de deux faisceaux laser proche en fréquence, et la conversion en un rayonnement électromagnétique est rendue possible en utilisant un matériau photoconducteur couplé à une antenne métallique (on parle alors de photomixer). Le processus de conversion s'appuie sur l'effet photoconducteur déjà rencontré précédemment dans le cadre des antennes d'Auston.

Le photomélangement fut proposé en 1964 par R. H. Pantell et al. [29] comme technique pour générer des ondes cohérentes dans les micro-ondes et dans la région millimétrique. Mais le manque de

[28] M. Rochat, J. Faist, M. Beck, U. Oesterle, and M. Illegems. Far-infrared electroluminescence in a quantum cascade structure. *Appl. Phys. Lett.*, 73 :3724–3726, 1998.

[29] P. Grivet and N. Bloembergen, editors. *Proceedings of the 3rd International Conference on Quantum Electronics*, volume 2. Columbia Univ. Press. New York, 1964.

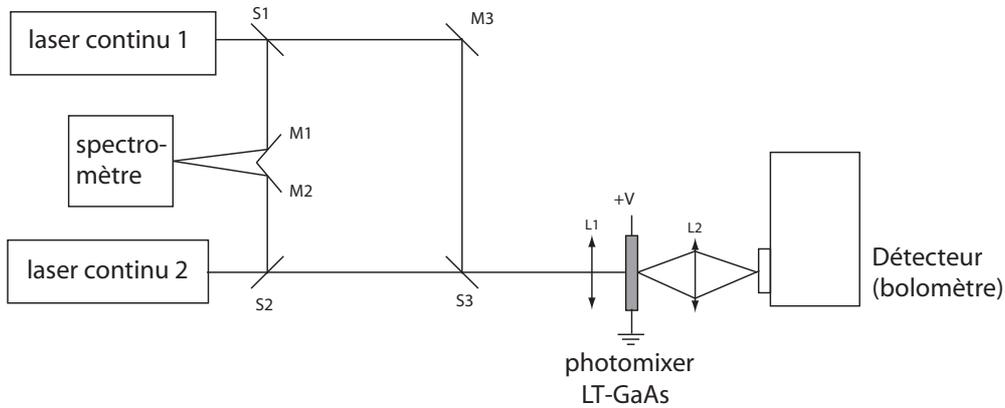


FIG. 1.7: Schéma de principe d'une génération d'ondes THz cohérentes par photomélangement. M1, M2 et M3 sont des miroirs, S1, S2 et S3 sont des lames séparatrices, L1 et L2 sont des lentilles convergentes, L1 pour le domaine visible et L2 pour le domaine THz.

photomixer approprié a longtemps ralenti l'application de cette idée. En effet, des fréquences accessibles inférieures à quelques dizaines de GHz (bande passante réduite), un faible couplage avec la puissance optique, une mauvaise adaptation d'impédance entre le matériau et l'antenne, une dégradation du photomixer pour des puissances optiques incidentes élevées, et enfin une faible tension de claquage dans le matériau, sont autant de facteurs responsables des difficultés de développement des photomixers comme source de rayonnement. Toutefois dans les années 90, l'avancée technologique des matériaux semi-conducteurs III-V a relancé le sujet [30]. La maîtrise de fabrication de l'arsénure de gallium à basse température LT-GaAs (entre 200°C et 600°C suivant la phase de fabrication) a permis de faire un bond considérable. Le matériau LT-GaAs possède un temps de vie de porteurs libres très court permettant d'augmenter la bande passante du photomixer, et une grande valeur de tension de claquage ( $E \sim 10^5 V cm^{-1}$ ) [31] permettant une meilleure résistance à l'éclairage incident. Les premières réalisations de photomixer générant des ondes cohérentes THz datent du milieu des années 1990 [32,33]. La figure 1.7 montre un schéma expérimental de principe pour une expérience de photomélangement.

- 
- [30] E. R. Brown, F.W. Smith, and K. A. McIntosh. Coherent millimeter wave generation by heterodyne conversion on lt gaas photoconductors. *J. Appl. Phys.*, 73 :1480–1484, 1993.
- [31] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis. Photomixing up to 3.8thz in lt gaas. *Appl. Phys. Lett.*, 66 :285–287, 1995.
- [32] K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahon, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz. Terahertz photomixing with diode lasers in low-temperature-grown gaas. *Appl. Phys. Lett.*, 67(26) :3844–3846, 1995.
- [33] S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai. Generation of coherent terahertz radiation by photomixing in dipole photoconductive antennas. *Appl. Phys. Lett.*, 70(5) :559–561, 1997.

## D Détection d'ondes THz

En optique, on distingue deux grands types de détecteurs : les détecteurs quantiques ou optiques et les détecteurs thermiques. Les premiers sont basés sur l'effet photoélectrique et nécessitent une énergie de photon capable d'engendrer des transitions électroniques. Les détecteurs quantiques transforment à partir d'un seuil l'énergie du photon en énergie électrique. Les seconds transforment l'énergie du photon en chaleur, ils fonctionnent quelle que soit la longueur d'onde du photon mais sont moins sensibles notamment à cause du bruit thermique.

Dans le domaine THz, l'énergie d'un photon est trop faible pour permettre un effet photoélectrique (sauf dans le cas très particulier de semi-conducteurs dopés, on parle alors d'effet photoélectrique interne), aussi il est nécessaire d'utiliser des détecteurs thermiques ; c'est ce que nous verrons dans une première partie. Toutefois, il existe une autre technique pour détecter efficacement et sensiblement les photons THz, basée sur l'effet photoélectrique dans le visible. Il s'agit d'une méthode indirecte nommée échantillonnage électro-optique. Nous verrons dans une seconde partie en quoi consiste cette méthode et quelles en sont les réalisations expérimentales actuelles.

### D.1 Détection incohérente adaptée au rayonnement continu ou impulsionnel

#### D.1.1 Détecteurs pyroélectriques

La pyroélectricité est la capacité de certains matériaux anisotropes à générer une tension électrique quand ils sont chauffés ou refroidis ; il y a alors une variation de la polarisation rémanente avec la température. Quand on modifie la température d'un tel matériau, les charges positives et négatives migrent dans le matériau créant ainsi une tension électrique.

On peut voir la pyroélectricité comme une des arêtes d'un triangle dont les trois sommets représenteraient un type d'énergie présent dans le matériau : énergie mécanique, énergie thermique et énergie électrique. Le côté reliant les énergies thermique et électrique représente l'effet pyroélectrique. Le côté reliant les énergies électrique et mécanique représente l'effet piézoélectrique et enfin celui reliant les énergies cinétique et thermique représente les effets thermo-électriques de Peltier, Seebeck et Thomson.

L'effet pyroélectrique est connu depuis très longtemps, environ 24 siècles, le philosophe grec Theophrastus étant le premier à décrire une manifestation de cet effet dans la tourmaline <sup>[34]</sup>. 2000 ans après Theophrastus, l'effet pyroélectrique fut réintroduit en Europe mais toujours de manière très descriptive. On doit à David Brewster en 1824 une avancée majeure dans la compréhension du phénomène, et le nom actuel d'effet pyroélectrique. Jacques et Pierre Curie en étudiant cet effet dans du quartz ont aussi découvert l'effet piézoélectrique <sup>[35]</sup>. De nombreux prix nobel en physique ont étudié l'effet pyroélectrique, notamment Wilhelm Rontgen, Pierre Curie, Gabriel Lippman, Heike Kammerlingh Onnes, Erwin Schrodinger, Archer J. P. Martin, et Max Born.

---

[34] E. R. Caley and J. F. C. Richards. *Theophrastus on Stones*. The Ohio State University, 1956.

[35] S. B. Lang. Pyroelectricity : from ancient curiosity to modern imaging tool. *Phys. Today*, 58 :31–36, 2005.

En termes d'applications, comme les matériaux pyroélectriques répondent à des changements de température, ils sont utilisés pour observer des objets en mouvement dans une pièce. Les détecteurs de mouvement, bases des systèmes d'alarme, en sont l'exemple majeur. Mais ces matériaux peuvent aussi être utilisés comme monocapteurs de rayonnement IR ou capteur matriciel pour en faire des caméras IR.

### D.1.2 Détecteurs bolométriques

Le bolomètre est un détecteur thermique qui fut inventé en 1881 par S. P. Langley [36]. Il permet de mesurer la puissance d'une radiation électromagnétique incidente. Il est constitué d'un absorbeur de rayonnement électromagnétique de capacité calorifique  $C$ , qui est connecté à un dissipateur thermique à la température  $T_S$  via un lien isolant (la température  $T_S$  de fonctionnement est souvent plus basse que la température ambiante, ce qui nécessite de placer le bolomètre dans un cryostat). Quand un rayonnement est absorbé, la température de l'absorbeur augmente. La mesure de cette élévation de température se fait via un thermomètre. Le thermomètre peut très bien être l'absorbeur ou séparé de ce dernier, on parle alors de bolomètre composite. Dans le cas d'un bolomètre où absorbeur et thermomètre sont réunis en un seul matériau, généralement, un courant polarisant  $I_p$  circule dans l'absorbeur générant une tension de polarisation  $V_p$ . Quand un rayonnement est absorbé, la résistance de l'absorbeur est modifiée et cela implique un changement dans la tension  $V$ . Ce changement est amplifié puis mesuré. La figure 1.8 illustre le principe de fonctionnement.

Le bolomètre est un détecteur sensible sur une très grande plage de longueurs d'onde du rayonnement incident, et il s'agit d'un détecteur quadratique i.e. sensible à la puissance optique incidente (ou au nombre de photons). Deux autres caractéristiques importantes du bolomètre sont à mettre en avant, sa sensibilité et son faible bruit. Afin d'appréhender le fonctionnement d'un bolomètre, nous allons présenter un modèle thermique du fonctionnement du bolomètre afin de mettre en lumière les paramètres pertinents.

Le modèle thermique [37,38,39]

(i) Le signal

Pour construire ce modèle, et trouver l'expression de la sensibilité et le signal équivalent au bruit (ou Noise Equivalent Power en anglais, noté NEP par la suite), nous allons envisager une excitation électromagnétique modulée à la fréquence  $f$ . En pratique, pour détecter un rayonnement avec un bolomètre, on module le rayonnement, et la détection est assurée par une détection synchrone.

La construction de ce modèle réside dans un bilan d'énergie ou de puissance. Pour plus de simplicité nous allons raisonner sur la puissance.

---

[36] S. P. Langley. *Nature*, 25 :14, 1881.

[37] T. L. Hwang, S. E. Schwarz, and D. B. Rutledge. Microbolometers for infrared detection. *Appl. Phys. Lett.*, 34 :11, 1979.

[38] M. J. Griffin and W. S. Holland. The influence of background power on the performance of an ideal bolometer. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 9(10) :861–875, 1988.

[39] P. L. Richards. Bolometers for infrared and millimeter waves. *J. Appl. Phys.*, 76(1) :1–24, 1994.

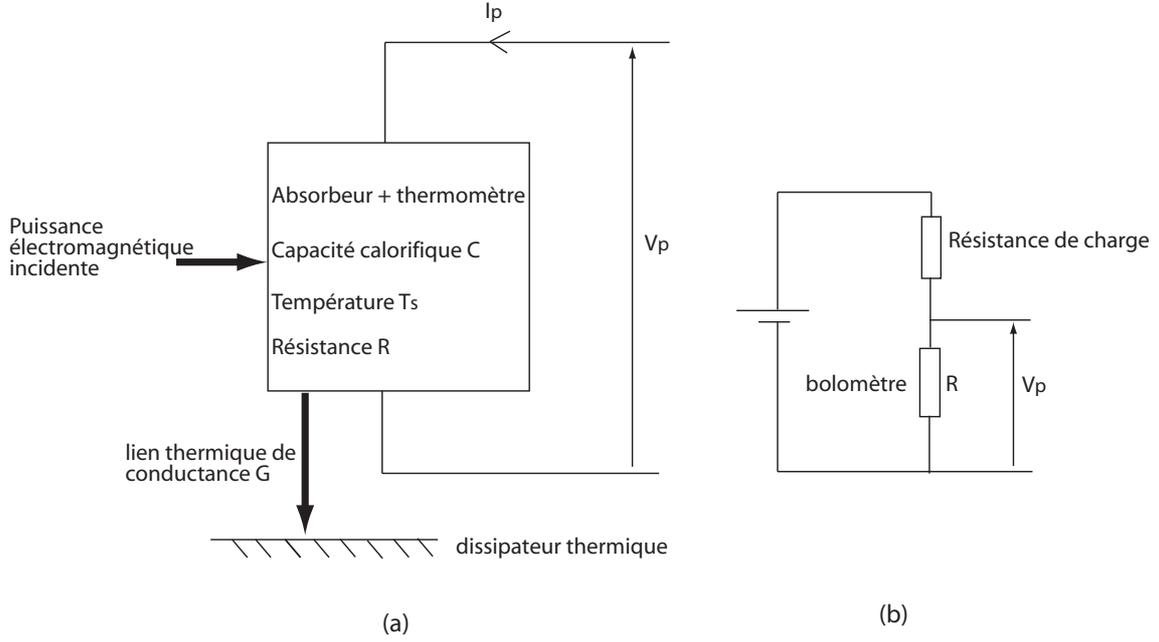


FIG. 1.8: (a) Illustration schématique du fonctionnement d'un bolomètre. (b) Schéma électronique de fonctionnement d'un bolomètre.

La puissance incidente est purement électromagnétique et en supposant que l'absorbance d'élément sensible du bolomètre est égal à 1, vaut  $P_{em} = P_0 + P_1 \exp(i\omega t)$ ,  $P_0$  étant la partie continue de la puissance électromagnétique et  $P_1$  la partie modulée.

Quand elle est absorbée par le bolomètre, la température du bolomètre change selon la relation suivante :

$$T_{bolo} = T_0 + T_1 e^{i\omega t} \quad (1.29)$$

où  $T_0$  est égale à  $T_S + P_0/G_0$  ( $G_0$  est la conductance statique du bolomètre) et  $T_1 = P_1/G(\omega)$  ( $G(\omega)$  est la conductance à la pulsation  $\omega$  du bolomètre entre l'élément sensible au rayonnement et le dissipateur).

La résistance  $R$  du bolomètre est alors modifiée, changement quantifié par le coefficient  $\alpha = \frac{1}{R} \frac{dR}{dT}$ . Comme le bolomètre est polarisé par la tension  $V_p$ , la puissance dissipée dans la résistance est modifiée, que l'on peut écrire sous la forme  $P_{lec} = R(T)I_p^2 = R_0 I_p^2 + I_p^2 \frac{dR}{dT} T_1 e^{i\omega t}$ .

Ces deux termes sont à mettre du même côté de l'équation du bilan énergétique, puisqu'ils proviennent du système extérieur (ils sont apportés par l'expérimentateur en ce qui concerne le rayonnement et la polarisation électrique).

La réponse du bolomètre face à ces excitations énergétiques est une réponse thermique qui prend deux formes :

- La première est un échange thermique avec le dissipateur thermique qui lui reste toujours à la température  $T_S$  :

$$P_{dissipateur} = G_0(T_0 - T_S) + G(\omega)T_1 e^{i\omega T} \quad (1.30)$$

- La seconde est la puissance stockée dans l'absorbeur de capacité calorifique  $C$  :

$$P_{stocke} = \frac{d}{dt}[C \cdot (T_{bolo} - T_S)] = i\omega C T_1 e^{i\omega t} \quad (1.31)$$

L'équation bilan s'écrit finalement :

$$P_0 + P_1 e^{i\omega T} + I_p^2 R_0 + I_p^2 \frac{dR}{dT} T_1 e^{i\omega T} = G_0(T_0 - T_S) + G(\omega)T_1 e^{i\omega T} + i\omega C T_1 e^{i\omega t} \quad (1.32)$$

Si on égale les termes indépendants du temps, on trouve la relation suivante :

$$P_0 + R_0 I_p^2 = G_0(T_0 - T_S) \quad (1.33)$$

Et si on égale les termes dépendants du temps, on trouve :

$$\frac{P_1}{T_1} = G(\omega) + i\omega C - I_p^2 \frac{dR}{dT} \quad (1.34)$$

La sensibilité du bolomètre est définie comme étant le changement de la tension de polarisation par watt de puissance électromagnétique absorbée, dans le cas présent la sensibilité s'écrit comme :

$$S = \frac{V}{P_1} = \frac{dR}{dT} \cdot T_1 \cdot \frac{1}{P_1} = \frac{I \frac{dR}{dT}}{[G - I_p^2 \frac{dR}{dT} + i\omega C]} \quad (1.35)$$

On constate que l'expression de la sensibilité dépend de la rétroaction thermique. En effet, l'augmentation de température  $T_1 = \frac{P_1}{G(\omega)}$  consécutive à l'absorption de la puissance électromagnétique  $P_1$  est modifiée par le fait que la variation de puissance électrique dissipée dans l'absorbeur change aussi la résistance  $R$ . Cette rétroaction peut se traduire simplement en introduisant une conductance effective  $G_{eff} = G(\omega) - I_p^2 \frac{dR}{dT}$ . Si on introduit le coefficient  $\alpha$  défini plus haut, la conductance effective s'écrit :

$$G_{eff} = G(\omega) - \alpha V_p I_p \quad (1.36)$$

La sensibilité d'un bolomètre s'écrit alors :

$$\frac{\alpha V_p}{G_{eff}(1 + \omega \frac{C}{G_{eff}})} \quad (1.37)$$

De cette expression, on peut citer les grandeurs physiques qui dictent le comportement du bolomètre :

1. la tension de polarisation est primordiale, plus elle est grande, plus la sensibilité est grande. En pratique, la polarisation du bolomètre se fait via une résistance de charge  $R_L \gg R$ .
2. La capacité calorifique s'exprimant en  $\text{J.K}^{-1}$ , et la conductance en  $\text{J.K}^{-1}.\text{s}^{-1}$ , on en déduit que le rapport  $\frac{C}{G_e}$  a la dimension d'un temps. L'expression de la sensibilité devient alors claire, puisqu'elle est tout à fait analogue à celle d'un filtre passe bas du premier ordre. Le temps caractéristique  $\tau = \frac{C}{G_{eff}}$  du matériau utilisé dans le bolomètre va fixer les conditions d'utilisation de ce détecteur thermique.
3. Le signe de la conductance effective est aussi un paramètre important. Pour un fonctionnement stable du bolomètre,  $G_{eff}$  doit toujours être positif, ce qui est assuré dans les bolomètres à base de semi-conducteurs tels que le germanium ou le silicium, car le coefficient  $\alpha$  est alors négatif.

(ii) Le bruit <sup>[39,40]</sup>

En général, en réponse à un stimuli, un détecteur fournit non seulement un signal mais aussi un bruit, qui a une action nuisible sur la mesure. La performance d'un système de détection est alors décrit par son rapport signal à bruit et son NEP (Noise Equivalent Power) qui représente le niveau de signal pour lequel le rapport signal à bruit est égal à l'unité. Il existe de nombreuses sources de bruit et ce n'est pas l'objet de cette partie que de toutes les lister. Néanmoins, il est utile d'identifier les principales sources de bruit limitant les performances du bolomètre.

- Le bruit Johnson de l'élément sensible (i.e. l'absorbeur) du bolomètre responsable de la composante  $NEP_J$  du NEP. Le bruit Johnson provient de la diffusion aléatoire des électrons dans le matériau pendant leur déplacement dans la résistance. Le théorème fluctuation-dissipation explique que cette source de bruit est sensible à la température. En effet, comme la diffusion est un évènement aléatoire, le processus est dirigé par une loi de Poisson, il s'agit d'un bruit de grenaille. Aussi à basse température, comme il y a moins de diffusion, la perte d'énergie est plus faible et par conséquent la fluctuation associée aussi. Mathématiquement, ce bruit peut être modélisé comme un générateur de bruit dont l'amplitude est égale à  $V = \sqrt{4k_B T R B}$  où B est la bande passante, R la résistance de l'absorbeur, et T la température de fonctionnement. On trouve alors que, pour un facteur de réponse S (= facteur de conversion entre le bruit du bolomètre exprimé en tension et le NEP), le bruit équivalent est égal à :

$$NEP_J = \frac{4k_B T R}{S^2} \quad (1.38)$$

- Le bruit de phonons qui correspond aux fluctuations thermiques entre l'élément sensible du bolomètre et le dissipateur thermique (le réservoir de chaleur) responsable de la composante  $NEP_{th}$  du NEP. Considérons l'élément sensible du bolomètre, son énergie peut fluctuer à cause du mouvement aléatoire des porteurs d'énergie (en majorité des phonons) se déplaçant le long du

---

[40] H. Kraus. Superconductive bolometers and calorimeters. *Supercond. Sci. Technol.*, 9 :827–842, 1996.

lien thermique entre absorbeur et dissipateur. On peut montrer à partir d'un cours de physique statistique <sup>[41]</sup> que ces fluctuations d'énergie varient selon l'équation 1.39 :

$$\langle \Delta E^2 \rangle = k_B T^2 C \quad (1.39)$$

Cette source de bruit est souvent la plus importante. On peut montrer que le bruit équivalent de cette source de bruit s'écrit sous la forme :

$$NEP_{th} = 4k_B T^2 G \quad (1.40)$$

avec G la conductance du circuit.

- Le bruit de photons provient des photons émis et reçus par l'absorbeur du bolomètre. Ces échanges radiatifs d'énergie ont lieu avec l'environnement du détecteur, i.e. les parois du bolomètre. Cette source de bruit peut souvent être négligée si les parois du détecteur (i.e. le cryostat) sont suffisamment refroidies. Le  $NEP_p$  dû au bruit de photons peut s'exprimer à partir de la loi de Planck de la manière suivante :

$$NEP_p = 8\sigma_{SB} k_B A T_{ext}^5 \quad (1.41)$$

où A est la surface du détecteur et  $\sigma_{SB}$  est la constante de Stéphan Boltzmann.

On peut remarquer que tous ces bruits ne dépendent pas de la fréquence de mesure, qui sera fixé uniquement par les considérations de sensibilité discutées plus haut. Le bruit équivalent total s'obtient en ajoutant les NEP :

$$NEP = 8\sigma_{SB} k_B A T_{ext}^5 + 4k_B T^2 G + \frac{4k_B T R}{S^2} \quad (1.42)$$

Un détecteur idéal est limité par le premier terme uniquement, mais pratiquement les bolomètres sont plus souvent limité par le second terme (fluctuations thermiques). Le bruit Johnson peut être négligé à condition d'avoir une sensibilité suffisamment grande. Dans les cas où le second terme du bruit est prédominant, il existe un moyen assez simple de réduire le bruit en réduisant la surface du détecteur. En effet, la conductance de l'absorbeur est proportionnelle à la surface de l'absorbeur, ce qui implique que le NEP est proportionnel à la racine carrée de la surface de l'absorbeur ( $NEP \propto A^{\frac{1}{2}}$ ).

## D.2 Détection du champ électrique THz d'une IMPULSION

Dans cette partie, nous abordons une originalité du domaine THz, à savoir la possibilité de mesurer le champ électrique THz, pourtant chose impossible en optique. Avant d'aller plus avant, essayons de comprendre pourquoi.

D'une part, les détecteurs de lumières à base de semi-conducteurs (photodiodes, caméras) fonctionnent par absorption d'un photon par un matériau, ce qui génère une réponse électrique mesurable avec un voltmètre, par exemple. Avec les rayons T, un tel processus de détection est peu

---

[41] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Statistical Physics*. Pergamon Press, 1980.

envisageable, car l'énergie transportée par le photon THz (environ 3 meV) est insuffisante pour provoquer des transitions électroniques (plutôt de l'ordre de l'eV). Il faut donc utiliser d'autres moyens de détection.

D'autre part, dans le visible, ces détecteurs photoniques ne sont pas suffisamment rapides pour suivre les variations temporelles du champ électromagnétique. Les variations du champ électrique pour les photons visibles se font à l'échelle de  $10^{-14}$ s (=10 femtosecondes) tandis que les détecteurs (à base de semi-conducteurs) les plus rapides ont des temps caractéristiques voisins de  $10^{-11}$ s (=10 picosecondes). Prenons comme exemple un détecteur dont le temps d'intégration (ou temps de réponse) est noté  $\tau$ , le flux mesuré  $\Phi$  s'écrit :

$$\begin{aligned}\Phi &\propto \frac{1}{\tau} \int |E(t)|^2 dt = \frac{1}{\tau} \int |E_0 \cos(\omega t + \varphi)|^2 dt \\ \Phi &\propto \frac{E_0^2}{2\tau} \int (1 + \cos(2\omega t + 2\varphi)) dt = \frac{E_0^2}{2}\end{aligned}\tag{1.43}$$

Or comme  $\frac{2\pi}{\omega} \ll 1$ , la contribution de l'intégrale du  $\cos(2\omega t + 2\phi)$  s'annule quelle que soit  $\phi$  ( $\phi$  étant une phase aléatoire). Même avec des fréquences THz plus petites que les fréquences du domaine visible ( $10^{14}$ - $10^{15}$ Hz), les constantes de temps caractéristiques des détecteurs restent trop lentes pour avoir accès aux variations temporelles du champ électrique. Pourtant, les physiciens ont trouvé deux méthodes permettant de mesurer le champ électrique THz en fonction du temps : il s'agit de l'échantillonnage électro-optique et de l'échantillonnage photoconductif.

### D.2.1 Echantillonnage électro-optique

La méthode de détection par échantillonnage électro-optique (cf. figure 1.9) repose sur un effet non linéaire : l'effet Pockels <sup>[42]</sup> ou effet électro-optique. Cet effet se traduit par un changement de l'indice de réfraction moyen d'un matériau, induit par la présence d'un champ électrique constant ou faiblement variable, et proportionnel à ce champ électrique. Ce système de détection permet de mesurer un angle qui est aussi proportionnel au champ électrique. Il est alors possible de déterminer le champ électrique et non l'intensité. Mais la véritable originalité de cette méthode réside dans la possibilité d'avoir accès aux variations temporelles du champ électrique.

Il s'agit d'une technique de détection indirecte du champ électrique, souvent nommée technique pompe-sonde. Elle repose sur l'utilisation d'un laser à impulsions ultracourtes. Une impulsion pompe visible est utilisée pour générer une impulsion THz, que l'on fait focaliser dans un cristal électro-optique (cf. figure 1.10). Dans ce même cristal, une impulsion sonde visible est, elle aussi, focalisée. L'impulsion sonde visible étant plus courte temporellement que l'impulsion THz, l'interaction entre ces deux ondes dans le cristal ne se fait que sur la durée de l'impulsion sonde, i.e. une dizaine de femtosecondes. A cette échelle de temps, on peut considérer que l'amplitude du champ électrique THz est constante. Pour un retard donné, pendant le passage de l'impulsion visible, la valeur du champ THz va polariser le cristal électro-optique, et le rendre anisotrope. Cette anisotropie

---

[42] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Elsevier Science, Second Edition, 2003.

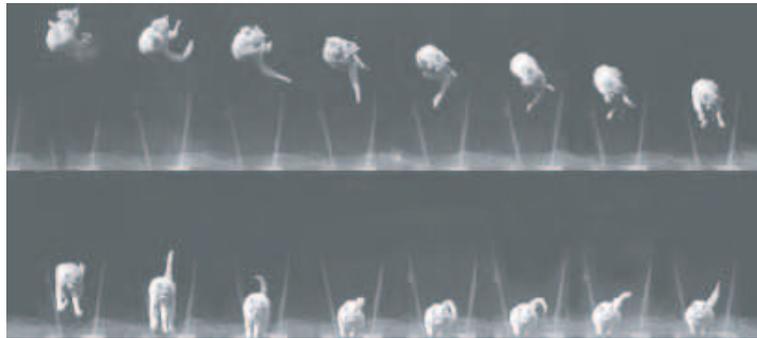


FIG. 1.9: Illustration du concept d'échantillonnage. Le mouvement du chat est échantillonné par la succession de prises de vue. Le temps entre deux photos donne le pas d'échantillonnage (Photo d'E. J. Marey, Chute du chat, Cinémathèque française, collection des appareils).

vient moduler la polarisation de l'impulsion sonde visible; une mesure de la variation de l'angle de la polarisation de cette onde donne alors accès à l'amplitude du champ électrique THz par une relation de proportionnalité. Par ailleurs, le contrôle précis du retard entre l'impulsion sonde visible et l'impulsion THz à mesurer permet d'échantillonner celui-ci. Ainsi l'enregistrement effectué reconstruit l'évolution temporelle du champ électrique THz. Expérimentalement, le figure 1.10 montre un schéma de principe.

Cette technique de mesure du champ électrique d'une impulsion THz a été pour la première fois mise en oeuvre par Q. Wu et X.-C. Zhang<sup>[43]</sup>. Ils ont étendu au domaine THz la technique d'échantillonnage électro-optique conventionnel inventée par Valdmanis en 1983<sup>[44]</sup>. Beaucoup de travail a alors été mené pour comprendre théoriquement les performances ultimes (surtout en termes de bande passante et de rapport signal à bruit) de ce type de détection. L'article de L. Duvillaret de 2002 résume très bien les travaux effectués<sup>[45]</sup>.

### D.2.2 Echantillonnage photoconductif

Une fois de plus les travaux pionniers concernant l'échantillonnage photoconductif ont été menés par D. H. Auston et D. R. Grischowski<sup>[8,46]</sup>. Le principe de mesure reste le même que pour l'échantillonnage électro-optique décrit ci-dessus, l'idée est toujours d'ouvrir une porte temporelle

[43] Q. Wu and X. C. Zhang. Free-space electrooptic sampling of terahertz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 67(24) :3523–3525, 1995.

[44] J. A. Valdmanis, G. A. Mourou, and C. W. Gabel. Subpicosecond electrical sampling. *IEEE J. Quan. Elec.*, 19(4) :664–667, 1983.

[45] L. Duvillaret, S. Riolland, and J.-L. Coutaz. Electro-optic sensors for electric field measurements. i. theoretical comparison among different modulation techniques. *JOSA B*, 19(11) :2962, 2002.

[8] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith. Picosecond photoconducting hertzian dipoles. *Appl. Phys. Lett.*, 45 :284, 1984.

[46] C. Fattinger and D. Grischowsky. Point source terahertz optics. *Appl. Phys. Lett.*, 53(16) :1480, October 1988.

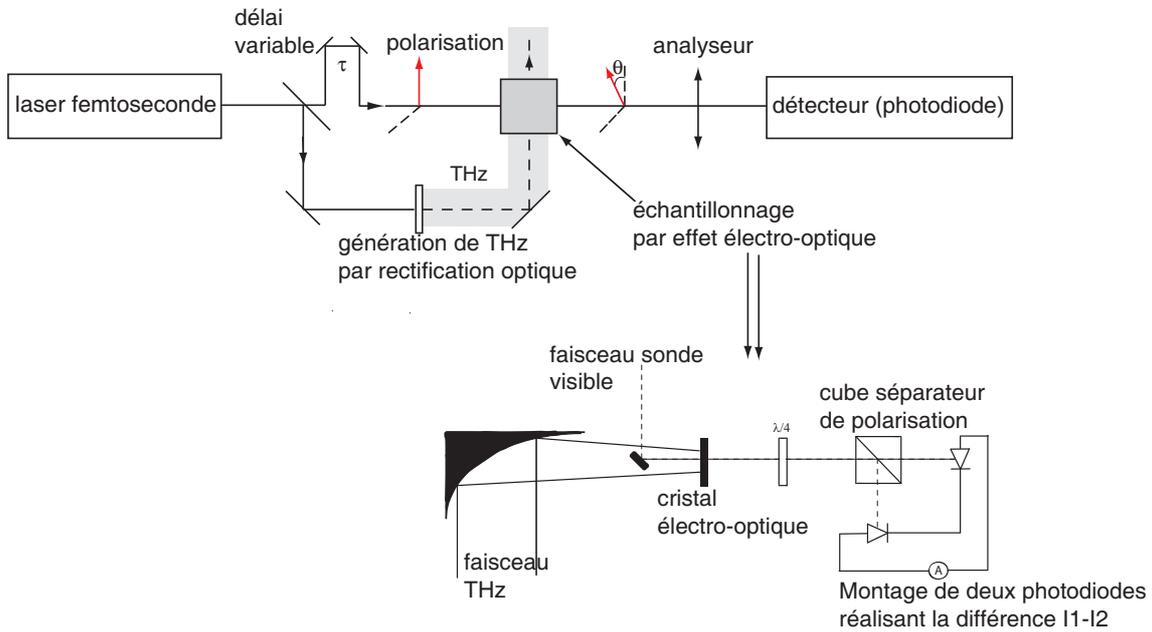


FIG. 1.10: Schéma de principe de la génération et détection d'impulsions THz par effets non linéaires.

avec une impulsion ultracourte (inférieure à  $100 \text{ fs}$  généralement), et de mesurer une grandeur physique proportionnelle à la valeur du champ électrique terahertz. En pratique, il faut utiliser une antenne photoconductive ayant les mêmes caractéristiques notamment en terme de temps de vie des porteurs que celle utilisée pour la génération. Cette antenne n'est pas polarisée, seul un micro-ampèremètre est relié à ses électrodes. Quand l'impulsion sonde visible arrive sur l'antenne, elle crée des paires électrons-trous. Ces charges libres sont alors accélérées uniquement s'il existe pendant leur durée de vie courte (inférieure à la picoseconde) un champ électrique non nul. Ce champ provient de l'impulsion THz focalisée aussi entre les deux électrodes de l'antenne photoconductive. Il suffit alors de faire varier le retard entre impulsions THz et sonde visible, et d'enregistrer le courant induit par le déplacement de ces charges libres pour reconstruire l'évolution temporelle du champ électrique de l'impulsion THz. La figure 1.11 montre une application expérimentale des processus mis en jeu précédemment.

### D.2.3 Conclusion sur ces deux méthodes de détection

Ces deux méthodes permettent de mesurer le champ électrique d'une impulsion THz. La figure 1.12 montre un exemple d'un tel champ créé par une antenne photoconductive.

Dans le cadre de l'échantillonnage électro-optique, le rapport signal à bruit sur le champ électrique a été mesuré égal à quelques centaines <sup>[43]</sup> lors de la première réalisation. Après quelques années

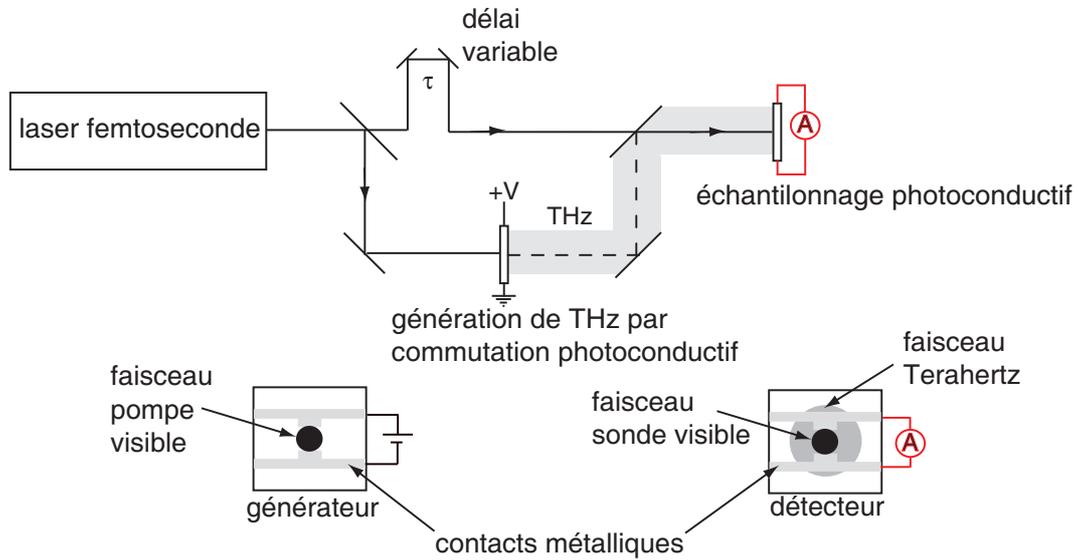


FIG. 1.11: schéma de principe de la génération et détection d'impulsions THz à partir d'antennes photoconductives.

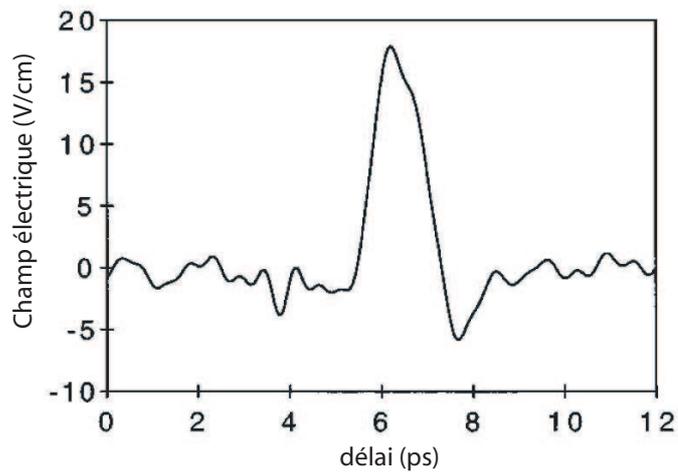


FIG. 1.12: Exemple d'enregistrement du champ électrique d'une impulsion THz, effectué par échantillonnage électro-optique. Tiré du travail de Q.Wu et X.-C. Zhang <sup>[43]</sup>

d'amélioration, le rapport signal à bruit vaut plutôt  $10^4$  [47], et est comparable à celui obtenu lors d'un échantillonnage photoconductif. En revanche, la bande passante de la détection électro-optique est plus grande que pour la détection par antenne.

Il est important de souligner que la possibilité de mesurer la variation temporelle du champ électrique est une véritable exception dans le domaine de l'optique. À ce titre, le domaine THz présente un avantage certain que les autres domaines électromagnétiques ne possèdent pas. Cette possibilité a donné lieu à de nombreuses applications notamment en spectroscopie THz, dont nous allons largement parlé dans la suite.

## E Applications et motivations dans le domaine THz

Entre le début des années 1970 et la fin des années 1980, les nouvelles sources impulsionnelles THz et les détections cohérentes et sensibles dans le domaine THz ont été mises au point. Au début des années 1990, les scientifiques disposaient de sources et de détecteurs efficaces dans le domaine THz ; dès lors comme dans tout domaine du spectre électromagnétique, la recherche d'une application utile a alors commencé. Nous avons décidé de ne retenir qu'une partie de ces applications en les classant en deux groupes : spectroscopie et imagerie. Nous nous restreindrons donc à ne présenter que ces deux grands types d'applications qui ont attiré l'attention de la communauté THz. Volontairement, nous ne parlerons pas des études théoriques du domaine THz car elles demandent une analyse spécifique pour chacune d'entre elles, ainsi que les applications en télécommunications qui restent plus du domaine des électroniciens, du domaine des micro ondes et nous ne présentons volontairement pas les applications en astronomie, car ce n'est pas l'objet de ce travail.

### E.1 Spectroscopie THz

#### E.1.1 Présentation

Il existe plusieurs types de spectroscopie THz. Un premier critère de distinction concerne la possibilité de mesurer l'intensité ou le champ électrique THz ; la distinction se fait sur le détecteur. Dans la première catégorie, un détecteur thermique incohérent (bolomètre par exemple) est utilisé, tandis que dans la deuxième catégorie une détection cohérente du champ électrique est effectuée. Pour ce dernier cas, on parle de spectroscopie sensible à la phase, qui apporte donc plus d'information que la spectroscopie basée sur une détection incohérente. En effet, quand on mesure le champ électrique THz, on a une information sur l'amplitude et sur la phase soit deux grandeurs physiques distinctes porteuses d'informations complémentaires, alors que mesurer l'intensité ne donne accès qu'au carré du champ électrique et pas à la phase de l'onde.

---

[47] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer, J. B. Stark, Q. Wu, X. C. Zhang, and J. F. Federici. Coherent terahertz radiation detection : Direct comparison between free-space electro-optic sampling and antenna detection. *Appl. Phys. Lett.*, 73(4) :444–446, 1998.

Dans chaque catégorie de spectroscopie basée sur une détection incohérente ou cohérente, il y a deux manières de travailler. La première utilise une source continue, monochromatique et des méthodes de détection homodyne, tandis que la seconde se base sur des sources impulsionnelles et une détection par échantillonnage électro-optique ou photoconductif.

Pour chaque type de spectroscopie, nous nous proposons d'expliquer le principe et de donner une réalisation expérimentale afin de montrer la variété d'applications accessibles à la spectroscopie THz.

### E.1.2 Spectroscopie incohérente utilisant des sources continues

Nous avons présenté dans le paragraphe sur les sources continues THz, la génération par photomélangement. Cette technique de génération d'ondes THz repose sur l'utilisation de deux lasers monochromatiques accordables et d'un matériau photoconducteur. Suivant les caractéristiques du matériau, il est possible de générer des ondes dont les fréquences vont de quelques dizaines de GHz à quelques THz. Cette accordabilité permet de faire de la spectroscopie. En plaçant un échantillon derrière l'émetteur, puis un détecteur incohérent tel un bolomètre, l'enregistrement de l'intensité transmise par l'échantillon en fonction du désaccord fréquentiel entre les deux lasers continus donne directement le spectre d'absorption de l'échantillon. Il faut bien sûr au préalable enregistrer un spectre référence sans échantillon afin de caractériser le rayonnement de l'émetteur et de quantifier le rendement de conversion aux différentes longueurs d'onde. Le rapport entre le spectre enregistré avec l'échantillon et le spectre référence donne le spectre d'absorption de l'échantillon étudié.

Cette méthode spectroscopique a été mise en oeuvre pour mesurer la présence de gaz dans l'atmosphère [48]. L'application ciblée par cette technique concerne essentiellement la détection de polluants.

### E.1.3 Spectroscopie incohérente utilisant des sources impulsionnelles

Dans cette partie, il est essentiel de citer la spectroscopie par transformée de Fourier, qui est peut-être la technique spectroscopique la plus répandue. Cette technique est basée sur un interféromètre éclairé par une source large bande (telle une lampe au mercure, ou une lampe blanche), elle permet donc l'étude de résonances moléculaires du domaine THz au visible, suivant la source et le détecteur utilisés. L'échantillon est placé dans un des bras de l'interféromètre, et le chariotage d'un des bras de l'interféromètre permet d'enregistrer l'interférogramme correspondant. Une transformée de Fourier appliquée à l'interférogramme permet de remonter au spectre d'absorption. La résolution en fréquence de cet instrument est fixée par la longueur de l'interférogramme obtenu [49].

Avec ce type de spectroscopie, une application THz dans le contrôle et la sécurité est tout à fait envisageable. En effet, aux fréquences THz, de nombreux emballages (papier, carton, plastique...)

---

[48] W. D. Chen, G. Mouret, J. Burie, and D. Boucher. Detection of carbon dioxide in air using difference-frequency generation based infrared spectrometer. *Int. J. Inf. Milli. Wav.*, 19 :409–417, 1998.

[49] G. Grüner. *Millimeter and Submillimeter Wave Spectroscopy of Solids*. Springer, 1998.

sont quasi transparents. La détection de la présence ou l'absence de substances dangereuses contenues dans des emballages est donc envisageable dans le domaine THz. De plus, grâce à l'information apportée par le spectre d'absorption, la possibilité d'identification de produits est d'un grand intérêt pour les industriels.

#### E.1.4 Spectroscopie cohérente utilisant des sources continues

Cette partie ne diffère de la spectroscopie incohérente que dans la mesure où la détection permet de remonter à l'amplitude et la phase de l'indice de réfraction. La phase est obtenue en faisant interférer le faisceau objet avec un faisceau référence. Si le faisceau référence a la même fréquence que le faisceau objet, on parle de spectroscopie homodyne, et si les deux faisceaux n'ont pas la même fréquence on parle de spectroscopie hétérodyne <sup>[50]</sup>. La détection hétérodyne est souvent employée quand la fréquence du faisceau objet est inconnue.

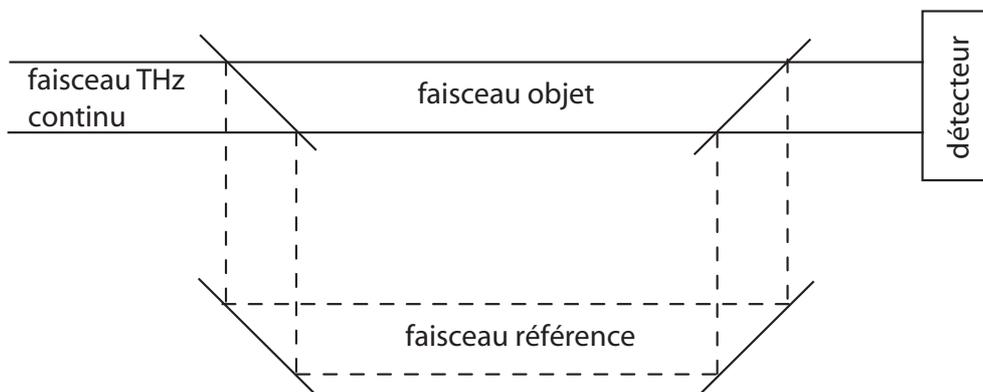


FIG. 1.13: Schéma de principe d'une spectroscopie homodyne. Un faisceau THz continu est séparé en un faisceau référence et un faisceau objet. Dans le bras référence, un objet de phase variable est introduit. A la sortie de cet interféromètre dit de Mach-Zender, les deux faisceaux sont superposés sur le détecteur.

La figure 1.13 montre un schéma de fonctionnement de la détection homodyne. L'objet placé dans le bras objet modifie à la fois l'amplitude et la phase du faisceau objet. Le détecteur enregistre une quantité qui est proportionnelle à :

$$S \propto (C + E_{obj}E_{ref}\cos(\phi_{obj} - \phi_{ref})) \quad (1.44)$$

En modifiant la phase  $\phi_{ref}$  (en plaçant un objet de phase variable dans le bras référence, ou en chariotant le bras référence) on est capable de remonter à la phase  $\phi_{obj}$ . Et dans l'optique de faire

[50] S. E. Ralph and D. Grischkowsky. Thz spectroscopy and source characterization by optoelectronic interferometry. *Appl. Phys. Lett.*, 60(9) :1070–1072, March 1992.

une spectroscopie, il faut varier la fréquence du faisceau THz continu en entrée de l'interféromètre. Ainsi dans ce schéma de fonctionnement, il est nécessaire de faire varier deux grandeurs physiques :

- la fréquence,
- pour chaque fréquence, la différence de phase entre phase objet  $\phi_{obj}$  et phase référence  $\phi_{ref}$ .

Le laser à cascade quantique est une source particulièrement bien adaptée à ce schéma de spectroscopie, car la source est stable, puissante, monochromatique et accordable.

### E.1.5 Spectroscopie cohérente utilisant des sources impulsionnelles

Cette technique de spectroscopie est très récente, elle est née avec les nouvelles techniques de détection cohérente dans le THz, à savoir l'échantillonnage photoconductif ou électro-optique. Développée pour la première fois par l'équipe de D. H. Auston, cette technique utilisait surtout les antennes photoconductrices à ses débuts [51,52,53]. Avec la maîtrise progressive de l'échantillonnage électro-optique, les antennes sont peu à peu abandonnées au profit du cristal non linéaire ZnTe (notamment pour sa bande passante plus élevée) dans les montages de "time domain spectroscopy", dont l'acronyme en anglais est TDS.

La figure 1.14 résume un schéma typique basé sur une génération par rectification optique, et une détection par échantillonnage électro-optique (voir aussi figure 1.5). L'échantillon est placé au foyer des miroirs M'2 et M'3, afin d'avoir une densité d'énergie lumineuse maximale. Dans le schéma de détection, le faisceau THz vient modifier la polarisation de l'impulsion sonde ultracourte, et les deux photodiodes enregistrent la rotation de polarisation de ce faisceau. La différence entre les deux signaux des photodiodes P1 et P2 est assurée par l'électronique d'entrée de la détection synchrone. Le faisceau initial sortant de l'oscillateur femtoseconde est haché afin de réaliser cette détection synchrone à la fréquence du hacheur.

Ce schéma de spectroscopie fonctionne en transmission mais d'autres géométries existent, notamment la configuration en réflexion [54]. Le signal enregistré est proportionnel au champ électrique THz, et la reconstruction temporelle de ce champ est assurée par la ligne à retard placée dans le trajet du faisceau visible sonde. Si l'échantillon est caractérisé par un facteur de transmission complexe de la forme  $t(f) = T_0(f) \cdot e^{i\phi(f)}$ , où  $f$  est la fréquence, alors le signal enregistré s'écrit sous la forme suivante :

---

[51] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, and Ch. Fattinger. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *JOSA B*, 7(10) :2006–2015, 1990.

[52] K. P. Cheung and D. H. Auston. Excitation of coherent phonon polaritons with femtosecond optical pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :2152, 1985.

[53] K. P. Cheung and D. H. Auston. A novel technique for measuring far-infrared absorption and dispersion. *Infrared Phys.*, 26 :23–27, 1986.

[54] D. M. Mittleman, M. Gupta, R. Neelamani, R. G. Baraniuk, J. V. Rudd, and M. Koch. Recent advances in terahertz imaging. *Appl. Phys. B*, 68(6) :1085–1094, 1999.

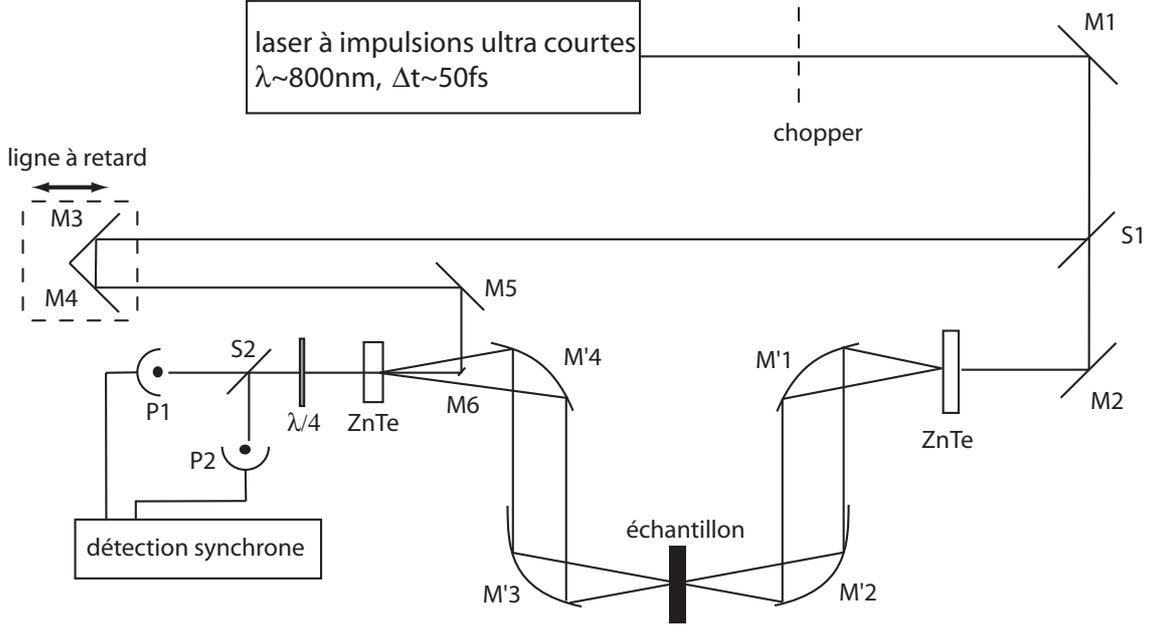


FIG. 1.14: Schéma expérimental d'un spectroscopie TDS-THz.  $M_i$  sont des miroirs à  $45^\circ$ ,  $M'_i$  sont des miroirs paraboliques métalliques qui permettent la réflexion et la focalisation du faisceau THz.  $S_i$  sont des lames séparatrices et  $P_i$  des photodiodes.

$$E_{enr}(t) \propto \int_0^{\infty} E_{inc}(t) T(f) e^{i\phi(f)} e^{2i\pi ft} df \quad (1.45)$$

La figure 1.15.a montre un exemple de signal enregistré avec un schéma de génération et de détection basé sur les antennes photoconductrices [51]. Une transformée de Fourier complexe du champ électrique permet d'obtenir les parties réelle (voir figure 1.15.b) et imaginaire correspondants du spectre.

En divisant chaque spectre obtenu par les spectres référence i.e. sans échantillon, l'indice de réfraction complexe (dispersion ET absorption) en fonction de la fréquence est reconstruit. C'est le grand avantage de ce type de spectroscopie, l'information accessible permet une caractérisation spectrale complète de l'échantillon.

## E.2 Imagerie et microscopie THz

L'imagerie THz constitue la deuxième grande voie de développement du domaine des ondes THz. En effet, l'imagerie THz donne accès à un contraste tout à fait novateur, dans la mesure où l'interaction lumière-matière repose pour ces longueurs d'onde en une inspection des niveaux vibrationnels

[51] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, and Ch. Fattinger. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *JOSA B*, 7(10) :2006–2015, 1990.

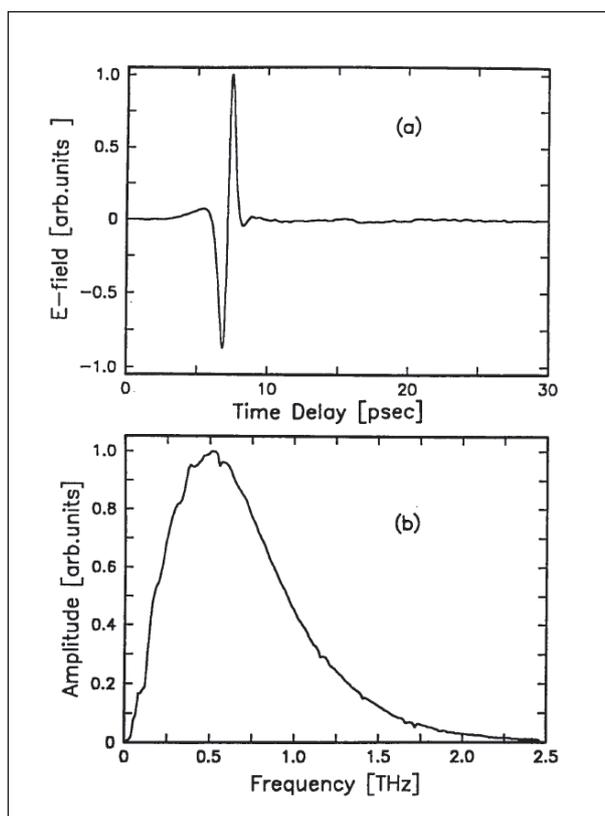


FIG. 1.15: (a) Exemple de champ électrique THz mesuré [51]. (b) Spectre en amplitude de (a).

et surtout rotationnels de la matière. Ce contraste unique permet d'envisager une multitude d'applications dans le contrôle qualité, la détection de gaz et polluants, la biologie, la détection d'objets cachés etc... Dans cette partie, nous allons discuter des verrous technologiques liés à l'établissement d'une imagerie THz comme application grand public.

### E.2.1 Imagerie en champ lointain

Les premiers travaux concernant l'imagerie THz ont été menés par l'équipe de M. C. Nuss [55,56] en 1995, et reposent sur l'utilisation d'un montage de TDS THz comme système imageur. Nuss a montré l'intérêt de cette technique dans le contrôle industriel, en la comparant à l'inspection par rayons X. Les rayons T présentent l'avantage d'être non ionisants, non destructifs, non invasifs, caractéristiques idéales pour le contrôle sécurité, l'inspection de bagages etc... Cette première réalisation repose sur l'utilisation d'antennes photoconductrices comme générateur et détecteur des

[55] B. B. Hu and M. C. Nuss. Imaging with thz waves. *Opt. Lett.*, 20 :1716–1718, 1995.

[56] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss. T-ray imaging. *IEEE J. Selec. Top. Quan. Elec.*, 2(3) :679–692, 1996.

impulsions THz. La possibilité de coupler l'imagerie et la spectroscopie THz est un des avantages majeures de cette technique.

Parallèlement, en 1996, l'équipe de X.C. Zhang met au point un système permettant d'imager la répartition transverse en intensité d'un faisceau THz, système basé uniquement sur des effets d'optique non linéaire (cristal de ZnTe) [57]. L'équipe de Zhang développe alors plusieurs schémas expérimentaux originaux toujours basés sur des cristaux non linéaires, et est une des premières à ouvrir la voie de l'imagerie THz à la biologie [58,59], en réalisant l'image THz d'une fourmi. L'originalité de sa méthode repose sur la mise en forme spatiale du faisceau THz en élargissant ce dernier, et sur une détection par effet électro-optique grâce à une caméra CCD. Zhang fait l'image THz de l'objet sur le cristal non linéaire de détection, qui est éclairé par un faisceau visible élargi aussi et projeté ensuite sur une caméra CCD. Comme pour la détection électro-optique D.2.1, le codage de l'amplitude du champ THz en variation de polarisation du faisceau visible permet de réaliser une image 2D.

Ces deux techniques ont en outre l'avantage de présenter plusieurs contrastes. En effet, l'enregistrement de la variation temporelle du champ électrique THz permet d'envisager des images en champ électrique, en intensité, en temps de retard par rapport à une impulsion de référence. La multitude de contraste rend encore plus attractive la technique d'imagerie THz. Cette technologie innovante et riche fait d'ailleurs l'objet d'un développement commercial aux Etats-Unis par picometrix ([www.picometrix.com](http://www.picometrix.com)) et en Angleterre par Teraview ([www.teraview.com](http://www.teraview.com)). Le marché de l'imagerie THz reste aujourd'hui encore très ouvert mais connaît un intérêt croissant.

Il faudrait un peu parler des applications concrètes en dermatologie (détection de cancer<sup>[60]</sup>, quantification du degré des brûlures...), imagerie d'une graine de tournesol<sup>[61]</sup>, investigation d'échantillons histo-pathologiques (foie humain et larynx de porc)<sup>[62]</sup>, détection et identification d'agents biologiques et chimiques (molécules et protéines telles que ADN<sup>[63]</sup>), identification de tissu, détection de

- 
- [57] Q. Wu, T. D. Hewitt, and X. C. Zhang. Two-dimensional electro-optic imaging of thz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 69(8) :1026–1028, 1996.
- [58] Z. P. Jiang and X. C. Zhang. Single-shot spatiotemporal terahertz field imaging. *Opt. Lett.*, 23(14) :1114–1116, 1998.
- [59] Z. P. Jiang and X. C. Zhang. Terahertz imaging via electrooptic effect. *IEEE Trans. Micro. Th. Tech.*, 47(12) :2644–2650, 1999. résumé de trois montages expérimentaux : balayage à un point, image avec caméra CCD, image avec système chirpé.
- [60] E. Pickwell, B. E. Cole, A. J. Fitzgerald, M. Pepper, and V. P. Wallace. In vivo study of human skin using pulsed terahertz radiation. *Phys. Med. Bio.*, 49(9) :1595–1607, 2004.
- [61] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer. Progress towards two-dimensional biomedical imaging with thz spectroscopy. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3841–3846, 2002.
- [62] P. Knobloch, C. Schildknecht, T. Kleine-Ostmann, M. Koch, S. Hoffmann, M. Hofmann, E. Rehberg, M. Sperling, K. Donhuijsen, G. Hein, and K. Pierz. Medical thz imaging : an investigation of histo-pathological samples. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3875–3884, 2002.
- [63] P. H. Bolivar, M. Brucherseifer, M. Nagel, H. Kurz, A. Bosserhoff, and R. Buttner. Label-free probing of genes by time-domain terahertz sensing. *Phys. Med. Bio.*, 47 :3815, 2002.

maladies, utilisation de l'irradiation THz dans un but thérapeutique<sup>[64]</sup>.

Mittleman et Nuss vont alors mettre à profit ces différents contrastes pour réaliser un montage de tomographie THz <sup>[65]</sup>. En mesurant le retard du pic principal du champ électrique de l'impulsion THz des différentes rétro-réflexions ayant lieu dans l'échantillon à étudier, il est possible de reconstruire une image 2D en profondeur. L'équipe de Mittleman va encore plus loin en réalisant l'imagerie interférométrique THz avec notamment la réalisation d'un montage de Tomographie par Cohérence Optique THz <sup>[66]</sup>.

Tous ces développements confirment le potentiel attracteur de l'imagerie THz. Cependant malgré tous les avantages cités précédemment dans l'imagerie THz, cette dernière présente un énorme défaut, à savoir son faible pouvoir de résolution. Si le système imageur est parfait, i.e. dénué d'aberrations, sa résolution ultime est fixé par son ouverture numérique et la longueur d'onde d'illumination, ce qui correspond à un ordre de grandeur de 300  $\mu m$ . Cette valeur est bien trop grossière pour réaliser une microscopie compétitive dans un contexte de recherche internationale dans lequel les nanosciences prennent une place de plus en plus importante. La course à la résolution fait donc l'objet de la partie suivante.

### E.2.2 Imagerie en champ proche

Comme nous le verrons un peu plus loin dans le chapitre 3, il existe plusieurs moyens de dépasser la limite de résolution imposée par la diffraction, tous basés sur la notion de champ proche. Brièvement, on peut séparer deux techniques donnant accès à une information résolue sub-longueur d'onde ; la première consiste à approcher de l'échantillon, à une distance inférieure à la longueur d'onde une source de lumière THz de taille sub-longueur d'onde et la seconde consiste à approcher à une distance sub-longueur d'onde de l'échantillon un diffuseur de lumière THz de taille sub-longueur d'onde.

La première approche a été mise au point par l'équipe de M. C. Nuss <sup>[67]</sup>, à l'aide d'un cône métallique. L'extrémité du cône est polie de manière à produire une très petite ouverture. Cette dernière se situe à proximité de la surface de l'échantillon, et joue le rôle d'un petit trou de lumière qui illumine l'échantillon. La taille du trou donne la résolution des images de champ proche, typiquement inférieur à  $\frac{\lambda}{4}$ . D'autres essais ont été menés avec des ouvertures différentes, qu'elles soient

---

[64] P. Dumas and L. Miller. Biological and biomedical applications of synchrotron infrared microspectroscopy. *J. Bio. Phys.*, 29 :201, 2003.

[65] D. M. Mittleman, S. Hunsche, L. Boivin, and M. C. Nuss. T-ray tomography. *Opt. Lett.*, 22(12) :904–906, 1997.

[66] J. L. Johnson, T. D. Dorney, and D. M. Mittleman. Interferometric imaging with terahertz pulses. *IEEE J. Sel. Top. Quan. Elec.*, 7(4) :592–599, 2001. THz OCT.

[67] S. Hunsche, M. Koch, I. Brener, and M. C. Nuss. Thz near-field imaging. *Opt. Comm.*, 150(1-6) :22–26, 1998.

statiques [68,69] ou dynamiques [70].

La seconde approche semble plus délicate à mettre en oeuvre aux vues du faible nombre d'équipes de recherche qui ont développé un tel système. Trois équipes se sont lancées dans ce domaine, avec des idées légèrement différentes. L'équipe de Planken tout d'abord utilise une pointe métallique à proximité d'un cristal non linéaire pour la détection. Ce cristal est taillé de sorte que sans la pointe aucun signal THz ne puisse être mesuré, l'effet électro-optique étant inopérant. La présence de la pointe induit de nouvelles polarisations, qui permettent alors de mesurer un signal THz. L'extension latérale des images obtenues de résolution égale à  $18 \mu m$ , soit  $\frac{\lambda}{14}$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde moyenne [71]. L'équipe de D. Mittleman [72] utilise la pointe métallique comme un guide d'onde qui est couplé en son extrémité avec un échantillon. Son étude porte actuellement plus sur les problèmes de couplage et de propagation au niveau de la tige métallique, aussi aucune image n'a été réalisée avec cette méthode. Enfin, l'équipe qui peut se targuer d'avoir les meilleurs résultats en terme de résolution, est l'équipe de R. Kersting [73,74]. Le montage expérimental ressemble un peu à celui de Mittleman en ce sens que l'impulsion THz est focalisé au niveau de la pointe, et la détection se fait en champ lointain. L'extrémité de la pointe diffuse une fraction du faisceau THz focalisée et qui contient une information de champ proche. Les premières images obtenues sur un réseau d'or ont montré des résolutions proches de 500nm, ce qui est une avancée considérable dans ce domaine.

### E.3 Motivations de ce travail de thèse

Dans ce domaine en plein essor qu'est l'imagerie THz, le réel enjeu est bien sûr la résolution des images THz, en particulier, quand les micro et nanotechnologies occupent une part importante de la recherche mondiale. Il est clair que développer un instrument de diagnostic ou de caractérisation dont la résolution est à l'échelle du millimètre n'est pas satisfaisant aujourd'hui. L'objectif de cette thèse est donc de développer de nouveaux microscopes THz utilisant les techniques d'optique de champ proche.

- 
- [68] O. Mitrofanov, I. Brener, R. Harel, J. D. Wynn, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and J. Federici. Terahertz near-field microscopy based on a collection mode detector. *Appl. Phys. Lett.*, 77(22) :3496–3498, 2000.
- [69] J. F. Federici, O. Mitrofanov, M. Lee, J. W. P. Hsu, I. Brener, R. Harel, J. D. Wynn, L. N. Pfeiffer, and K. W. West. Terahertz near-field imaging. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3727–3734, 2002.
- [70] Q. Chen, Z. P. Jiang, G. X. Xu, and X. C. Zhang. Near-field terahertz imaging with a dynamic aperture. *Opt. Lett.*, 25(15) :1122–1124, 2000.
- [71] N. C. J. van der Valk and P. C. M. Planken. Electro-optic detection of subwavelength terahertz spot sizes in the near field of a metal tip. *Appl. Phys. Lett.*, 81(9) :1558–1560, 2002.
- [72] K. L. Wang, D. M. Mittleman, N. C. J. van der Valk, and P. C. M. Planken. Antenna effects in terahertz apertureless near-field optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 85(14) :2715–2717, 2004.
- [73] H.-T. Chen, S. Kraatz, G.C. Cho, and R. Kersting. Identification of a resonant imaging process in apertureless near-field microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :267401–267403, Décembre 2004.
- [74] G. C. Cho, H.-T. Chen, S. Kraatz, Karpowicz N., and Kersting R. Apertureless terahertz near-field microscopy. *Semiconductor Science and Technology*, 20 :S286–s292, July 2005.

Le premier fil conducteur est la recherche de la résolution, à ce titre nous nous proposons de coupler l'utilisation d'une micro-source locale THz et d'une pointe métallique sub-longueur d'onde, permettant d'atteindre des informations de champ ultra-proche.

Le second fil directeur repose sur la mise en place d'une technique originale de génération de la source locale. Au lieu de venir focaliser le faisceau THz sur une zone sub-longueur d'onde, et de perdre énormément de puissance, l'idée est de créer la source THz à partir d'un spot focalisé dans le visible, dont la taille sera alors contrôlée par la longueur d'onde visible i.e. 800 nm.

Enfin un troisième axe de recherche consiste à allier la microscopie THz à une spectroscopie THz locale. En effet, une identification locale pourrait s'avérer extrêmement utile dans l'étude de micro-structures semiconductrices ou supraconductrices, et de structures biologiques.

Ce travail de thèse se veut volontairement instrumental, avec deux optiques majeures, la première réaliser un microscope de champ proche en THz et d'en comprendre le fonctionnement, et la seconde trouver une ou plusieurs applications de recherche dans la mesure où c'est le souci commun de toutes les techniques d'imagerie THz actuelles. Il faut en effet bien rappeler que le domaine THz est encore neuf, contrairement au domaine des rayons X, et encore plus au domaine visible.

## F Conclusion du chapitre

Nous avons vu dans ce chapitre un bilan général du domaine THz, en termes de sources, détecteurs et d'applications. Ce domaine du rayonnement électromagnétique peu exploré connaît un fort engouement dans la communauté scientifique, de nouvelles ouvertures et projets sont proposés régulièrement à voir le nombre de publications croissant dans le domaine. Les techniques de génération et de détection semblent à l'heure actuelle être bien en place, sauf peut être dans le domaine des lasers à cascade quantique et des réseaux de micro-bolomètres afin de réaliser des caméras 2D THz. Les travaux de recherche scientifique quant à eux concernent plus volontiers la découverte d'applications. Parmi elles, spectroscopie et imagerie THz rassemblent la majorité des projets et développements. Comme tout bon domaine de l'optique, l'imagerie semble être une voie royale pour aboutir à de réelles avancées technologiques notamment en terme de microscopie.



---

# Génération et détection THz : nos choix expérimentaux

---

## Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Montage expérimental</b>	<b>41</b>
A.1	Laser titane saphir Ti :Sa	41
A.2	Cristaux non linéaires	48
A.3	Détecteurs	49
<b>B</b>	<b>Caractérisation du rayonnement émis</b>	<b>52</b>
B.1	Puissance rayonnée	52
B.2	Diagramme angulaire de rayonnement	56
B.3	Rayonnement non linéaire	58
B.4	Etude de la polarisation	58
B.5	Etude azimutale	60
B.6	Spectre du rayonnement détecté	64

---

## A Montage expérimental

### A.1 Laser titane saphir Ti :Sa

#### A.1.1 Description théorique

Un oscillateur LASER (Light Amplification Stimulated Emission Radiation) à impulsion ultra courte fonctionne comme un oscillateur LASER classique, grâce au couplage entre un amplificateur

optique et un résonateur optique [75]. Ce type de laser est à différencier des lasers déclenchés ou Q-switch. Il existe en effet plusieurs conditions supplémentaires afin d'obtenir une impulsion laser femtoseconde :

i Un milieu amplificateur à large bande spectrale, i.e. une grande plage de longueur d'onde (typiquement 50nm de largeur à mi-hauteur) doit pouvoir être amplifié dans le milieu constitutif du laser. En effet, largeur temporelle  $\Delta t$  et largeur spectrale  $\Delta\nu$  d'une impulsion ultra courte sont reliées par l'inégalité de Fourier suivante :  $\Delta t \cdot \Delta\nu \sim 2\pi$ . Si l'on veut une impulsion de durée inférieure à 100fs, alors la largeur spectrale de l'impulsion doit être au moins égale à 60THz. Cette estimation ne tient toutefois pas compte de la forme de l'impulsion qui modifie la relation entre durée et spectre.

ii Un mécanisme de compensation de la vitesse de groupe.

Même dans un milieu faiblement dispersif comme l'air, les longueurs d'onde ne se propagent pas à la même vitesse. Or comme l'impulsion femtoseconde possède un grand nombre de longueurs d'onde, à mesure que l'impulsion se propage, elle s'élargit. Pour une impulsion gaussienne dont l'intensité s'écrit  $I_Z(t) = I_0 e^{-\frac{t^2}{\tau^2(z)}}$ , on peut montrer que l'élargissement  $\tau(z)$  vaut [76] :

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \left[ \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right]_0 \frac{z^2}{\tau_0^4}} \quad (2.1)$$

où  $z$  est la direction de propagation de l'impulsion,  $\tau_0$  la largeur temporelle initiale, et  $\left[ \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right]_0$  est le coefficient de dispersion de vitesse de groupe défini à la longueur d'onde moyenne  $\lambda_0$  de l'impulsion. Ainsi pour une propagation dans l'air (caractérisée par un coefficient de dispersion de vitesse de groupe à 800nm de  $22 fs^2/m$ ) d'une impulsion laser femtoseconde de longueur d'onde moyenne égale à 800nm, le tableau 2.1 résume les valeurs d'élargissement pour des longueurs de propagation différentes.

A cause des multiples aller-retours des photons dans la cavité laser, il y a nécessairement un élargissement de l'impulsion. Aussi il est nécessaire d'ajouter un mécanisme de compensation adapté, souvent à base de deux prismes. Il est alors possible de maintenir constante la durée de l'impulsion dans la cavité laser.

iii Un mécanisme de blocage des modes longitudinaux.

Avec un milieu amplificateur large bande, un grand nombre (supérieur à  $10^5$ ) de longueurs d'onde sont amplifiées et sont résonantes dans la cavité optique ; mais une telle configuration ne garantit pas l'existence d'une impulsion. En effet, une lampe blanche fonctionne avec de multiples longueurs d'onde sans pour autant avoir un fonctionnement impulsionnel. Il faut

[75] C. Fabre, A. Aspect, and G. Grynberg. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*. Ellipses, 1997.

[76] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena : Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, Boston, 1996.

Durée initiale	Durée après une propagation de 1m	Durée après une propagation de 10m
6fs	12fs	102fs
10fs	11,7fs	62fs
50fs	50fs	51,4fs
100fs	100fs	100,1fs

TAB. 2.1: Exemples d'élargissement d'impulsions femtoseconde.

que chaque mode longitudinal soit en phase avec son voisin, de manière à ce que le champ électrique résultant soit la somme **cohérente** de tous ces modes. Un tel mécanisme est souvent compliqué à mettre en oeuvre, mais dans le cas de l'oscillateur Ti : Sa, l'insertion d'un diaphragme dans la cavité suffit à le rendre impulsionnel. On parle alors d'auto blocage des modes. Le phénomène repose sur l'effet Kerr optique <sup>[42]</sup>(effet non linéaire du 3ème ordre) ou effet de lentille thermique qui a lieu dans le milieu amplificateur. Dans le milieu à gain (cristal de saphir dopé au titane), l'inversion de population est réalisée en focalisant le laser de pompe grâce à une lentille. Lorsque la densité d'énergie dans le cristal est très élevée, il apparaît une variation non linéaire de l'indice de réfraction (c'est la manifestation de l'effet Kerr). Le cristal se comporte alors comme une lentille convergente : c'est le phénomène d'autofocalisation. Celle-ci a pour effet de focaliser le faisceau, ce qui condense encore plus l'énergie optique et augmente encore le phénomène d'autofocalisation. Cet effet sera plus important pour une onde impulsionnelle que pour une onde continue, la densité d'énergie optique étant plus grande pour le cas impulsionnel. En introduisant alors dans la cavité une fente, on sélectionne seulement la section de la partie impulsionnelle du faisceau. Celle-ci engendre en effet des pertes plus importantes pour le régime continu, qui ne peut donc plus "laser", et autorise seulement le mode impulsionnel : il y a verrouillage des modes.

### A.1.2 Caractéristiques et description pratique des deux lasers

Pendant mon travail de thèse, j'ai travaillé avec deux lasers titane saphir qui possèdent des caractéristiques différentes.

i Le premier laser Ti :Sa est un MIRA 900 de chez *Coherent*<sup>TM</sup>.

Ses principales caractéristiques sont résumées ci-dessous :

- fonctionnement en mode continu ou impulsionnel,
- largeur temporelle de l'impulsion de 200fs,
- taux de répétition de 75MHz,
- puissance moyenne de 1 à 2W,
- accordabilité en mode continu de 700 à 1000nm.

---

[42] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Elsevier Science, Second Edition, 2003.

Afin de mesurer le spectre des impulsions laser, nous avons mesuré le spectre du laser grâce à un spectromètre fibré à réseau, et, pour avoir accès à la largeur temporelle de l'impulsion, nous avons mis au point un autocorrélateur interférométrique par génération de seconde harmonique. La figure 2.1 montre un spectre typique enregistré avec le spectromètre. La différence entre modes impulsionnel et continu est très claire et concomitante de l'élargissement du spectre. A noter qu'envoyer le faisceau laser directement sur la fibre optique sature le capteur, et qu'il est donc nécessaire de placer avant l'entrée de la fibre une densité optique (souvent voisine de 2-3) ou un diffuseur (tranche de téflon de 1cm d'épaisseur). La résolution du spectromètre est évidemment trop faible pour voir le peigne de fréquences de l'impulsion laser.

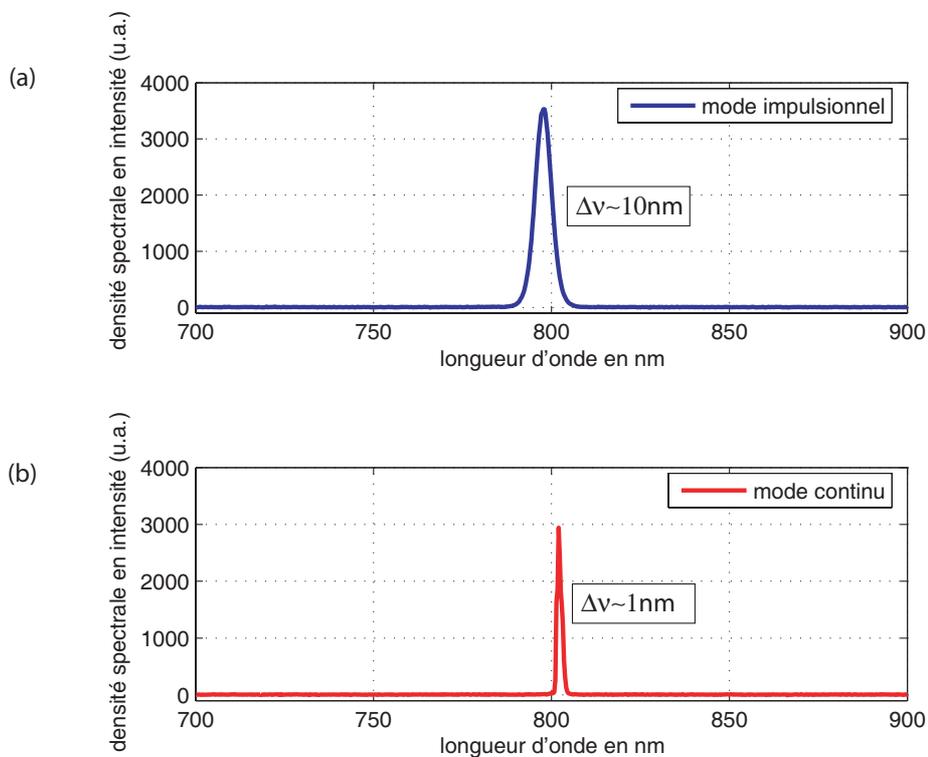


FIG. 2.1: (a) Spectre du MIRA en mode impulsionnel. (b) Spectre du MIRA en mode continu.

Quant à l'autocorrélateur interférométrique, il a été construit sur le modèle de celui trouvé dans le livre de J.-C. Diels et W. Rudolph <sup>[76]</sup> (voir figure 2.2).

La présence de la compensatrice (BK7 épaisseur=3 mm) est un élément indispensable du montage, car elle permet d'avoir un contraste optimal des franges d'interférences. Sans com-

[76] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena : Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, Boston, 1996.

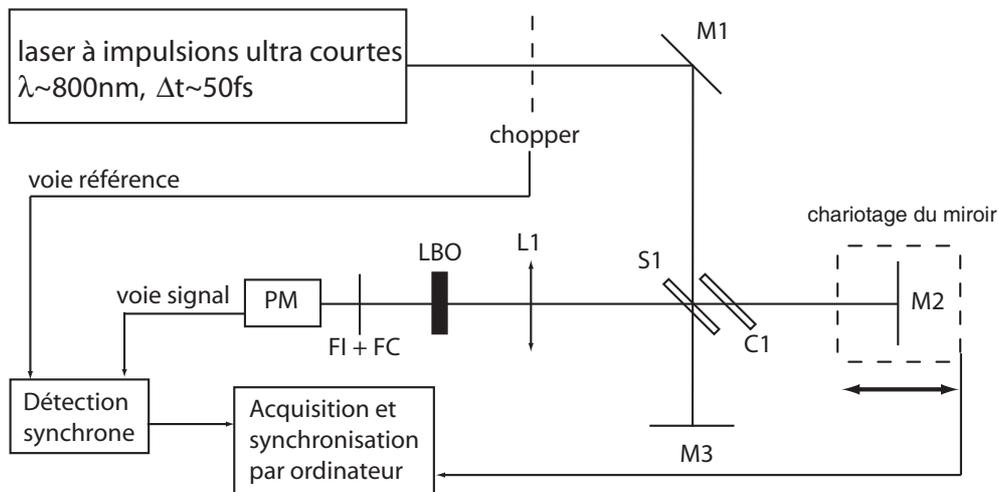


FIG. 2.2: Schéma expérimental de l'autocorrélateur interférométrique. Mi sont des miroirs diélectriques, S1 est la séparatrice d'épaisseur égale à 3 mm de l'interféromètre et C1 la compensatrice. L1 est une lentille de 15 cm de focale et LBO est le cristal de borate de lithium  $LiB_3O_5$  d'épaisseur 2 mm. PM est un photomultiplicateur. FI signifie filtre interférentiel centré à 400 nm et de largeur à mi-hauteur égale à 10 nm, et FC est un filtre coloré Schott bleu (50 nm de bande passante).

pensatrice, je n'avais pas réussi à obtenir les franges d'interférences ou plus précisément le contraste était tellement dégradé qu'il était impossible de trouver le contact optique.

La procédure de réglage de l'interféromètre de Michelson utilisée ici est classique. Nous nous sommes appuyés sur le livre de Sextant [77] et sur notre expérience :

- La première étape consiste à aligner le faisceau réfléchi par le miroir M3 avec le faisceau incident en utilisant deux diaphragmes à 1 m de distance et en modifiant les vis d'orientation du miroir M3.
- La seconde étape consiste à superposer et aligner les deux faisceaux sortant de l'interféromètre. On place les deux diaphragmes en sortie à 2 m de distance l'un de l'autre, et on cache le faisceau 2, celui du bras du miroir M2. En modifiant la position et l'orientation de la séparatrice, on fait passer le faisceau 1 au travers des deux diaphragmes. Il faut alors libérer le faisceau 2, cacher l'autre bras de l'interféromètre et régler suivant le même critère les vis d'orientation du miroir M2. En libérant les deux bras, les deux faisceaux doivent alors être superposés et alignés. Ce réglage assure que la figure d'interférences obtenue à l'infini ou au foyer d'une lentille (ce qui est notre cas ici) est constituée d'anneaux concentriques d'interférences, les anneaux n'étant visibles qu'au contact optique car la lumière incidente provient d'un laser impulsif femtoseconde (et donc de spectre large).
- La recherche du contact optique en chariotant le bras M2 est rendue plus facile quand, au moment du montage, on égale grossièrement la longueur des deux bras de l'interféromètre (au mm près).

[77] Sextant. *Optique expérimentale*. Hermann, 1997.

Une fois ces réglages opérés, le chariotage d'un des bras peut commencer. Ce dernier s'effectue grâce à un moteur pas à pas monté sur platine de translation micro-contrôle et contrôlé par ordinateur par un programme développé sous Labview (voir complément). Afin d'obtenir un interférogramme dépouillé au maximum d'artefacts et de bruits, il est nécessaire que le déplacement du miroir soit synchronisé avec l'acquisition. A chaque déplacement du miroir, il faut attendre quelques millisecondes pour que la position du miroir soit stable et commencer à faire l'acquisition de l'état des franges d'interférences sur le photomultiplicateur. La figure 2.3 représente un interférogramme typique obtenu en fonctionnement normal en mode impulsif du MIRA.

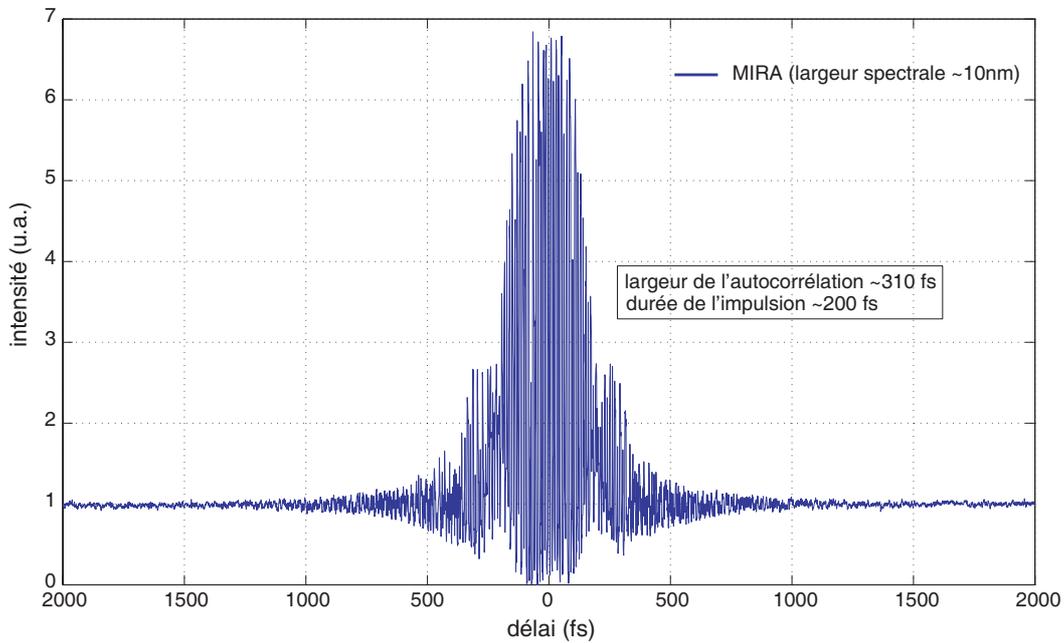


FIG. 2.3: Interférogramme obtenu avec le MIRA.

L'interférogramme présente plusieurs défauts. Le premier est le contraste entre niveau bas et haut qui devrait être égal au rapport  $\frac{1}{8}$ . Le second défaut réside dans le fait que certaines oscillations ne sont pas bien enregistrées par le photomultiplicateur. Ces deux défauts trouvent leur origine dans une détérioration des réglages optiques et dans les différents bruits acoustiques et vibrationnels qui perturbent l'état d'interférences. Toutefois, le montage permet de caractériser de manière acceptable l'impulsion laser incidente. La durée d'impulsion trouvée ici vaut 200 fs, ce qui est la durée d'impulsion annoncée par le constructeur.

ii Le second laser Ti :Sa est un femtosource Scientific de chez Femtolasers<sup>TM</sup>.

Ses principales caractéristiques données par le constructeur sont les suivantes :

- fonctionnement en mode continu ou impulsionnel,
- largeur temporelle de l'impulsion de  $20 \text{ fs}$ ,
- taux de répétition de  $80 \text{ MHz}$ ,
- puissance moyenne de  $300 \text{ mW}$ .

Une fois encore, nous avons cherché à vérifier ces données expérimentalement. La mesure de puissance a été réalisée avec un puissancemètre de précision et a confirmé les valeurs comprises entre  $300$  et  $600 \text{ mW}$  suivant le régime de fonctionnement du laser. Le spectre du laser a été mesuré par le spectromètre à réseau, la figure 2.4 montre l'évolution du spectre passant du mode impulsionnel au mode continu. On notera ici que le mode continu du femtosource est en fait déjà un mode impulsionnel car la largeur du spectre est voisin de  $12 \text{ nm}$ , i.e. la largeur du mode impulsionnel du MIRA.

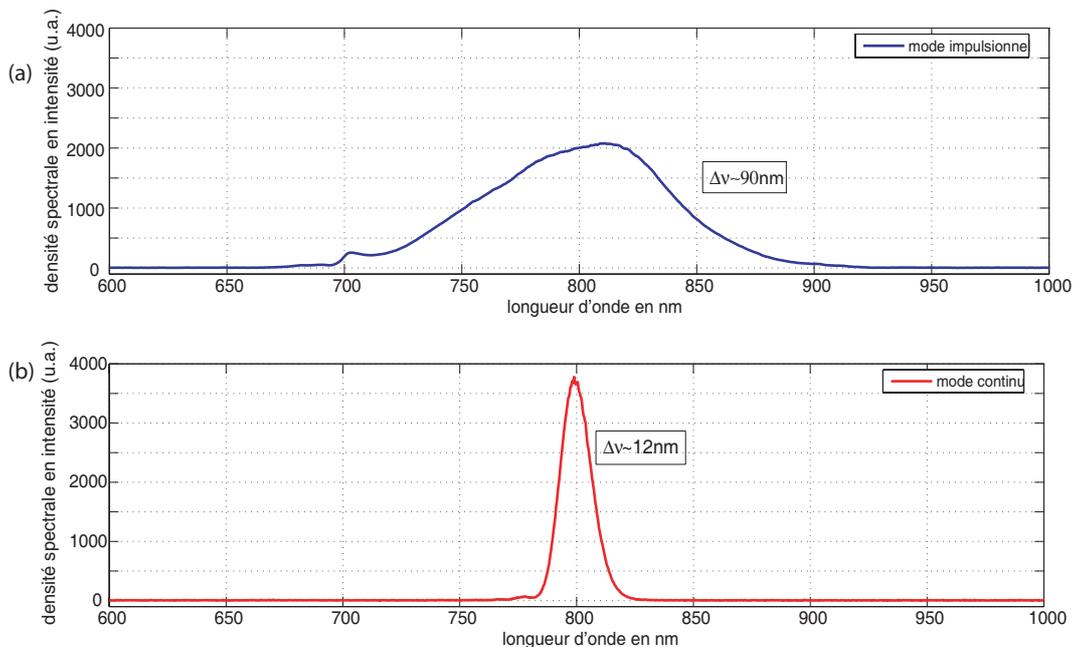


FIG. 2.4: (a) Spectre du femtosource en mode impulsionnel. (b) Spectre du femtosource en mode continu.

La figure 2.5 représente le meilleur interférogramme obtenu pour le mode impulsionnel du femtosource. La largeur à mi-hauteur de l'interférogramme permet de remonter à la durée de l'impulsion à condition d'imposer une hypothèse supplémentaire sur la forme de l'impulsion. En supposant que cette dernière est gaussienne, la durée de l'impulsion est alors voisine de  $30 \text{ fs}$ , ce qui est légèrement au dessus de la durée donnée par le constructeur.

Cette différence peut s'expliquer simplement par le fait que lors de la mesure de l'autocor-

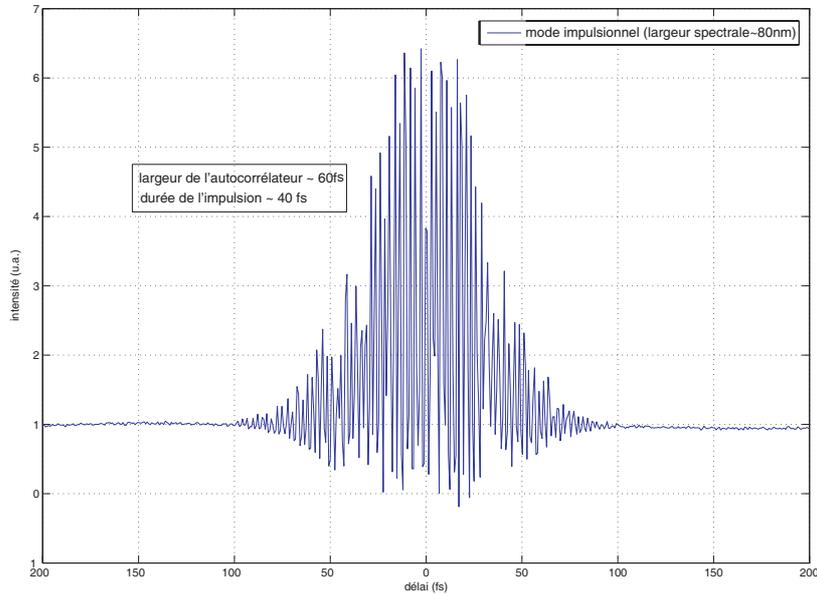


FIG. 2.5: Interférogramme obtenu avec le femtosource.

rélateur interférométrique, nous avons utilisé un cristal doubleur épais (2mm), qui entraîne pour des impulsions ultracourtes de quelques dizaines de femtosecondes un élargissement et une distorsion de l'interférogramme.

## A.2 Cristaux non linéaires

Les lasers à impulsions ultra courtes décrits précédemment nous ont servis à générer des impulsions THz par rectification optique (voir chapitre I). Cette section est dédiée à la présentation des cristaux utilisés au cours du travail de thèse. Deux catégories de cristaux non linéaires ont été testées ici : des cristaux semiconducteurs (GaAs et ZnTe) et des cristaux organiques (4-diméthylamino-Nméthylstilbazolium tosylate dont l'acronyme anglais est DAST). Quelque soit le cristal utilisé, il est nécessaire que ce dernier soit non centrosymétrique et que les coefficients du tenseur diélectrique d'ordre 2 soient les plus grands possibles. Il est nécessaire de présenter la cristallographie des cristaux d'une part, et les valeurs des coefficients électro-optiques d'autre part, si l'on veut quantifier la rectification optique de ces cristaux.

Les deux matériaux semiconducteurs étudiés ici cristallisent suivant une structure de type blende, i.e. les cristaux sont cubiques et appartiennent au groupe ponctuel  $43m$  [11]. Ils n'ont alors qu'un

[11] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander. Terahertz optical rectification from (110) zincblende crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 64(11) :1324–1326, 1994.

seul terme indépendant non nul du tenseur diélectrique du second ordre, tel que  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ . La collecte des coefficients non linéaires du second ordre noté  $d_{ij}$  est délicate car d'une part elle dépend de la longueur d'onde et d'autre part il y a une grande dispersion des valeurs suivant les travaux et techniques de mesure.

Cristal	Longueur d'onde	Coefficient nonlinéaire du second ordre (pm/V)	Référence
SiO <sub>2</sub>	1064 nm	$d_{11}=0,30$	[78]
KDP	1064 nm	$d_{36}=0,39$	[78]
GaAs	800 nm	$d_{14}=100$	[79]
	proche infrarouge	$d_{14} 150$	[80]
ZnTe	1047nm	$d_{14}=119$	[81]
DAST	1318nm	$d_{111}=1000$	[82]
	1542 nm	$d_{111}=840$	[83]

TAB. 2.2: Valeurs des coefficients non linéaires du second ordre de quelques matériaux.

Le tableau résume les propriétés non linéaires du second ordre des cristaux utilisés. Il est à noter que le DAST est à distinguer des autres cristaux dans la mesure où il s'agit d'un cristal organique. Le DAST est caractérisé par des coefficients non linéaires géants (voir tab.2.2), mais comme il s'agit d'un cristal organique, son seuil de dommage est plus bas que les cristaux semiconducteurs. Nous avons essayé ce cristal en tant que générateur d'ondes THz, mais même avec des puissances incidentes voisines de 50 mW, l'impulsion incidente focalisée détériorait le cristal, d'autant plus que ce dernier était d'épaisseur faible (100  $\mu m$ ).

Par conséquent, dans la suite, les études de génération de THz se feront avec le GaAs et surtout le ZnTe.

### A.3 Détecteurs

L'impulsion THz générée par rectification optique possède un spectre large. Théoriquement pour une impulsion incidente de durée égale à 30 fs, le spectre généré sera centré à 6 THz et aura une largeur spectrale de 7 THz (voir 1.2). Pour pouvoir détecter toutes ces longueurs d'onde qui s'évalent donc de 0 à quelques dizaines de THz, il est nécessaire d'utiliser un détecteur large bande. Dans ce travail, le choix s'est porté sur l'utilisation d'un bolomètre, plutôt que sur une détection électro-optique. Toutefois, comme nous allons le voir par la suite, le bolomètre a une fenêtre spectrale utile limitée par des filtres et, pour mesurer les ondes générées dans le domaine infrarouge, il s'est révélé inefficace. Aussi nous avons décidé d'utiliser un détecteur HgCdTe. En somme, suivant la bande passante utile, nous avons utilisé deux détecteurs : un détecteur IR à base de HgCdTe et un détecteur THz bolométrique. L'objet de cette section est de présenter ces deux détecteurs.

### A.3.1 Détecteur HgCdTe pour l'infrarouge

Ce détecteur est constitué d'un alliage de semiconducteurs HgTe et CdTe en proportions contrôlées. La détection de lumière est basée sur l'effet photoélectrique, i.e. quand un photon est absorbé par le matériau, il y a création d'une paire électron-trou, et l'on détecte le courant créé par ces charges libres. L'absorption d'un photon n'est donc pas automatique et il existe une condition sur l'énergie du photon, cette dernière doit être plus grande que le gap de l'alliage semiconducteur. C'est à ce niveau précis que réside tout l'intérêt du détecteur à base de HgCdTe. En effet, comme HgTe est un semimétal, son gap est nul, et comme CdTe possède un gap de 1,5 eV soit 362 THz soit 827 nm [84,85], il est possible de contrôler la valeur du gap de l'alliage en modifiant la proportion de CdTe par rapport à celle de HgTe : la plage de sensibilité du détecteur peut alors décrire tout l'infrarouge. De plus le détecteur HgCdTe est un détecteur plus rapide que les bolomètres, avec des fréquences typiques de coupure de plusieurs kHz. Toutefois, il existe un inconvénient à tous ces détecteurs, ils doivent fonctionner refroidis à l'azote liquide ou à l'hélium liquide pour les bolomètres afin de réduire le bruit dû aux porteurs de charges excités thermiquement. Le détecteur utilisé dans ce travail contient environ 20 sensibilité est comprise entre 8 et 15  $\mu\text{m}$ .



FIG. 2.6: Photo du détecteur HgCdTe avec son module d'amplification bas bruit.

- 
- [84] W. D. Lawson, S. Nielsen, E. H. Putley, and A. S. Young. Preparation and properties of hgte and mixed crystals of hgte-cdte. *J. Phys. Chem. Solids*, 9(3-4) :325–329, Mars 1959.
- [85] P. Norton. HgCdTe infrared detectors. *Opto-electronic review*, 10 :159, 2002.

La figure 2.6 est une photo du détecteur utilisé, sur laquelle le petit boîtier métallique à côté du détecteur contient le circuit électrique d'amplification et de filtrage du signal. Les caractéristiques techniques détaillées de cet instrument de mesure sont présentées en complément.

### A.3.2 Détecteur pour le terahertz : le bolomètre

Le bolomètre utilisé ici est un bolomètre au silicium (voir paragraphe I.4), il est refroidi à l'hélium liquide, et donc enfermé dans un cryostat. La figure 2.7 montre ce cryostat. On aperçoit aussi la fenêtre optique du bolomètre constitué d'une plaque de polyéthylène blanc. Derrière cette plaque, deux filtres additionnels peuvent être placés alternativement, l'un est constitué de polyéthylène blanc dont une des faces est recouverte d'une couche de  $48 \mu\text{m}$  de diamant (filtre 1) et l'autre de quartz (filtre 2). Cela définit alors deux plages de fonctionnement du bolomètre : le filtre 1 a une plage spectrale comprise entre 0 et  $100 \text{ cm}^{-1}$  (entre  $100 \mu\text{m}$  et plusieurs mm) et le filtre 2 a une plage spectrale comprise entre 100 et  $700 \text{ cm}^{-1}$  (entre  $14 \mu\text{m}$  et  $100 \mu\text{m}$ , soit en fréquence entre 3 THz et 21,5 THz). Le bolomètre est relié à un premier étage d'amplification de courant fort gain/faible bruit refroidi lui aussi à la température de l'hélium liquide et à un second étage d'amplification de puissance dont le gain variable est fixé à 200 ou 1000 par l'utilisateur.



FIG. 2.7: Photo du bolomètre, hauteur du bolomètre=50cm.

La procédure de refroidissement du bolomètre, ainsi que ses caractéristiques techniques sont reportées en complément de ce chapitre.

## B Caractérisation du rayonnement émis

Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté les briques élémentaires (source et détection d'ondes THz) du montage de microscopie THz. Le banc expérimental destiné à l'étude du rayonnement émis est présenté sur la figure 2.8. Des miroirs paraboliques sont utilisés pour guider les ondes THz, car il n'existait pas de lentilles adaptées au THz quand ce travail de thèse a débuté. Des filtres supplémentaires sont ajoutés sur le trajet du faisceau THz menant au détecteur, afin de filtrer le rayonnement incident provenant du laser Ti :Sa (impulsion pompe proche infrarouge) tout en laissant passer le rayonnement THz.

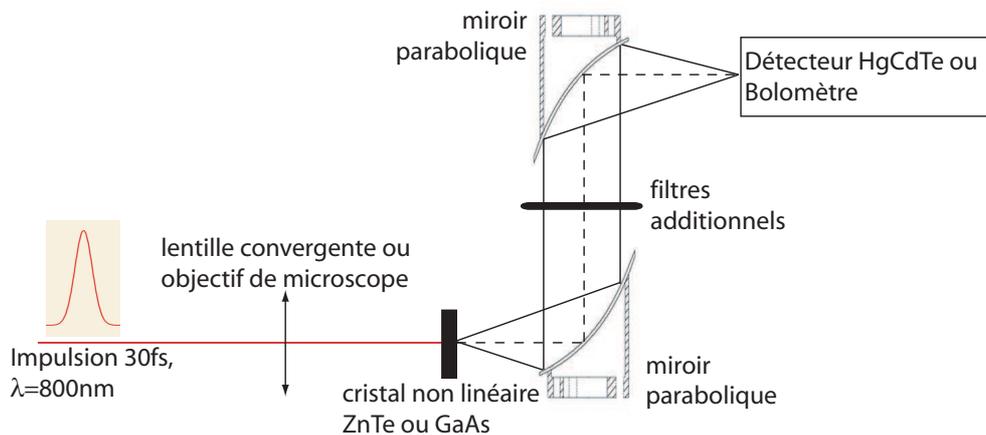


FIG. 2.8: Schéma expérimental du montage permettant l'étude de la génération par rectification optique d'ondes THz.

Une fois les réglages optiques d'alignement effectués, un signal a été mesuré par le détecteur ; il restait à prouver que ce signal était bien dû à la rectification optique opérée dans le cristal non linéaire. Plusieurs preuves expérimentales sont présentées dans la suite.

### B.1 Puissance rayonnée

A cause de l'absence d'accord de phase dans le cristal non linéaire, le rendement de conversion de la rectification optique est très faible, et il est nécessaire de filtrer le rayonnement incident de manière différente suivant le détecteur utilisé.

Pour le détecteur HgCdTe, aucun filtre supplémentaire n'a été nécessaire pour filtrer le signal provenant du faisceau incident, car la fenêtre en germanium placée devant le détecteur permet de filtrer efficacement tous les photons visibles et proches infrarouges (autour de 800 nm).

En revanche, pour le détecteur bolométrique, la recherche d'un matériau suffisamment filtrant dans le visible et transparent dans le THz a été très délicate. Après de multiples essais, nous sommes arrivés à la conclusion qu'une alliance entre un diffuseur et un matériau absorbant était la plus efficace pour répondre au cahier des charges. Une plaque de téflon de 1 *cm* ou une plaque de polyéthylène blanc de 2 *mm* jouent le rôle de diffuseur, tandis que quelques épaisseurs de sac ménager (polyéthylène + particules de carbone), ou un morceau de carton jouent le rôle d'absorbant. Comme le spectre généré est très large, nous n'avons pas pu trouver de combinaison qui laisse inchangée le niveau de signal THz après le passage des filtres additionnels.

Dans le domaine THz (bolomètre en position 2 pour le filtre interne + filtres additionnels, et avec un cristal de ZnTe d'épaisseur 500  $\mu\text{m}$ ), avec des réglages optiques d'alignement et une puissance incidente égale à 100 *mW*, le bolomètre affiche un signal proche de 1 *mV*. En tenant compte de la sensibilité égale à  $2,77 \cdot 10^5$ , du facteur de gain (égal à 1000 ici) du bolomètre, ce signal correspond à une puissance optique de  $\sim 1$  *nW*. Si l'on suppose que la propagation des ondes THz entre le cristal et le bolomètre se fait sans perte (ce qui n'est pas le cas pour toutes les longueurs d'onde de l'impulsion IR/THz), que l'émission THz est isotrope et en tenant compte de l'ouverture numérique limitée des miroirs paraboliques ( $ON \sim 0,4$ ), le signal collecté ne représente en fait que 20% du signal généré dans le cristal, et le rendement de conversion visible-THz pour la partie 0,3 – 3 THz est de  $5 \cdot 10^{-6}$ , valeur compatible avec la littérature [16]. Ce rendement faible s'explique simplement par l'effet de rectification optique qui n'opère pas à l'accord de phase, privilégiant la largeur de la bande spectrale générée.

Nous avons aussi étudié l'influence de la focalisation du faisceau incident sur l'efficacité de génération d'ondes IR/THz. Ce problème fait aujourd'hui encore débat, des résultats contradictoires ont été publiés ces dernières années [86,87,88]. Historiquement, en focalisant le spot pompe sur une distance inférieure à 300  $\mu\text{m}$ , Zhang et. al. ont mis en évidence une diminution d'efficacité de rayonnement dans un cristal de GaAs de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et l'ont expliquée comme une compétition entre la rectification optique et la diffraction. Dans leur modèle, la variation de l'efficacité en fonction de la focalisation est étudiée suivant deux domaines limites par rapport à la longueur d'onde. Et c'est sur le domaine sub-longueur d'onde que porte le débat. Suivant leur modèle, la polarisation non linéaire s'écrit :

$$P_{NL} \propto I_{inc} \propto P_{inc} a^{-2} \quad (2.2)$$

- 
- [16] A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin, and A. Migus. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the midinfrared by optical rectification of 15 fs light-pulses at 100 mhz repetition rate. *Appl. Phys. Lett.*, 67(20) :2907–2909, 1995.
- [86] J. Z. Xu and X. C. Zhang. Optical rectification in an area with a diameter comparable to or smaller than the center wavelength of terahertz radiation. *Opt. Lett.*, 27(12) :1067–1069, 2002.
- [87] G. L. Dakovski, B. Kubera, and J. Shan. Localized terahertz generation via optical rectification in znte. *JOSA B*, 22(8) :1667–1670, 2005.
- [88] V. Y. Gaivoronskii, M. M. Nazarov, D. A. Sapozhnikov, E. V. Shepelyavyi, S. A. Shkel'nyuk, A. P. Shkurinov, and A. V. Shuvaev. Competition between linear and nonlinear processes during generation of pulsed thz radiation in a znte crystal. *Quantum Electronics*, 35 :407–414, 2005.

où  $I_{inc}$  et  $P_{inc}$  sont l'intensité et la puissance incidentes, et  $a$  la taille du waist sur le cristal non linéaire d'épaisseur négligeable, fixée à  $20 \mu m$  dans le modèle. L'intensité THz générée est proportionnelle au carré de la polarisation non linéaire, et au carré du nombre de diffuseurs, car il y a un effet d'interférences constructives :

$$I_{THz} \propto |N \cdot P_{NL}|^2 \propto a^2 \quad (2.3)$$

Ce modèle repose sur l'hypothèse que  $N$  est proportionnel au volume, ce qui en fait un modèle volumique et n'est valable que si l'épaisseur du cristal générateur est bien supérieure à la taille du waist. C'est peut-être cette hypothèse qui paraît "frauduleuse" à l'équipe de Dakovski, qui utilise plutôt un modèle surfacique avec un cristal très fin ( $e=20 \mu m$ ) de ZnTe. Dès lors dans le domaine sub-longueur d'onde l'intensité THz émise ne dépend plus de la taille du waist :

$$I_{THz} \propto |N \cdot P_{NL}|^2 \propto \left| a^2 \cdot \frac{1}{a^2} \right|^2 \quad (2.4)$$

Ce résultat est tout à fait en accord avec leurs résultats expérimentaux et ils expliquent alors que le modèle présenté par l'équipe de Zhang ne s'applique qu'aux résultats de Zhang et propose que la génération de seconde harmonique et l'absorption à deux photons seraient responsables de la diminution d'efficacité de rayonnement THz dans un domaine de focalisation sub-longueur d'onde. C'est là qu'interviennent les travaux de Gaivoronskii et al.<sup>[88]</sup>. Cette équipe russe a bien montré que les effets d'absorption à deux photons, et de génération de seconde harmonique intervenaient et détérioraient l'efficacité de génération par rectification optique. Mais ils n'ont pas pu réussir à montrer quantitativement que ces effets étaient responsables de la diminution du rayonnement émis par rectification optique : le débat reste donc ouvert.

Dans ce contexte polémique, nos résultats expérimentaux apportent la preuve que, pour des cristaux de ZnTe d'épaisseur supérieure à  $200 \mu m$ , la génération d'ondes THz diminue quand on focalise le faisceau incident sur une taille plus petite que la longueur d'onde générée. Ces vérifications ont été faites avec le bolomètre et avec le détecteur HgCdTe.

Il est à noter que lorsque le spot atteint une taille voisine de  $10 \mu m$ , un spot vert apparaît. Il s'agit de fluorescence à deux photons. En effet, le gap du ZnTe est un gap direct<sup>[89]</sup> situé autour de  $2,391 eV$  (valeur mesurée à  $4 K$ ), tandis que les photons incidents ont une énergie voisine de  $1,5 eV$  ( $\lambda = 800nm$ ). La figure 2.9 montre une photo de ce spot vert ainsi que le spectre enregistré correspondant.

La position du maximum de ce spectre d'émission est identique au gap du ZnTe, ce qui permet de conclure qu'il s'agit bien d'une émission par fluorescence engendrée par une absorption à deux pho-

---

[88] V. Y. Gaivoronskii, M. M. Nazarov, D. A. Sapozhnikov, E. V. Shepelyavyi, S. A. Shkel'nyuk, A. P. Shkurinov, and A. V. Shuvaev. Competition between linear and nonlinear processes during generation of pulsed thz radiation in a znte crystal. *Quantum Electronics*, 35 :407–414, 2005.

[89] J. L. Reno and E. D. Jones. Determination of the dependence of the band gap energy on composition  $cd(1-x)zn(x)te$ . *Phys. Rev. B*, 45 :1440, 1992.

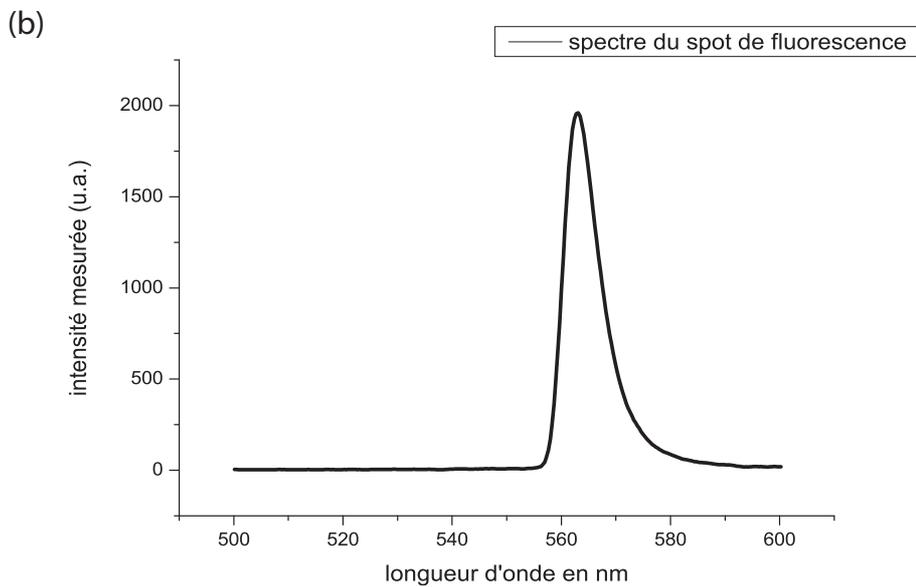
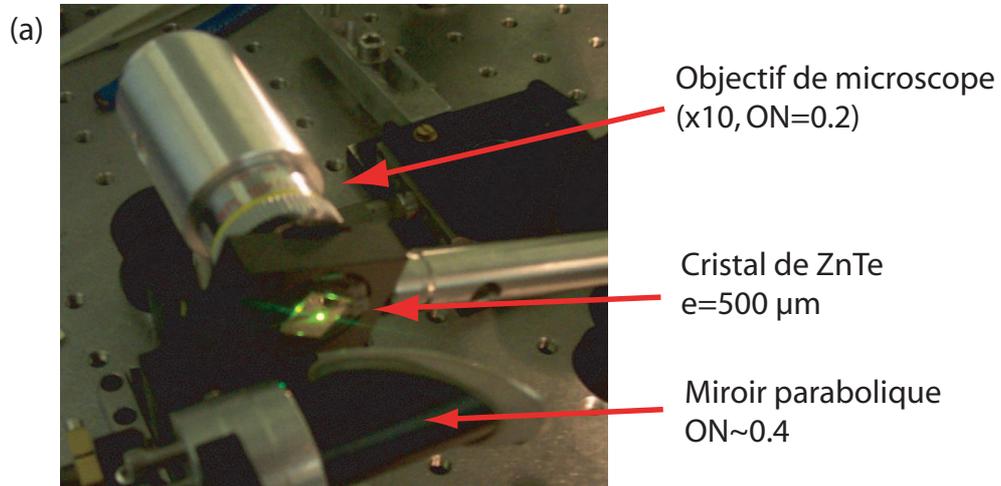


FIG. 2.9: (a) Photo du cristal non linéaire ZnTe éclairé par le laser femtosource, pour une focalisation de 10  $\mu\text{m}$  (b) Spectre du spot lumineux apparaissant sur la photo précédente.

tons. Nous n'avons pas tenté de vérifier quantitativement, si ce phénomène expliquait la diminution d'efficacité de génération THz, mais cela reste une perspective intéressante pour l'avenir.

## B.2 Diagramme angulaire de rayonnement

La puissance mesurée précédemment tient compte de l'ensemble des ondes THz collectées par le système optique composé de deux miroirs paraboliques, mais ne donne aucune information sur la répartition angulaire de ces ondes. Cette donnée pourtant s'avère cruciale dans la mesure où toutes les ondes THz générées dans le cristal n'arrivent pas à sortir du cristal. Notamment si l'on regarde la différence d'indice de réfraction entre le ZnTe et l'air à 1 THz ( $n_{THz} = 3,5$ , et  $n_{air} = 1$  [90]), l'angle de réflexion totale est de  $17^\circ$ .

Afin de mesurer le diagramme angulaire de rayonnement, nous avons placé un diaphragme variable sur le trajet du faisceau THz entre les deux miroirs paraboliques, là où ce faisceau est plutôt parallèle. Nous avons alors enregistré le signal THz en fonction de l'ouverture du diaphragme. Pour une ouverture du diaphragme  $d$ , le signal enregistré s'écrit en fonction de la répartition transverse en intensité comme suit :

$$S(d) = \int_0^d I(r) 2\pi r dr \quad (2.5)$$

L'intensité  $I(\theta)$  s'obtient alors à partir de l'équation 2.5, en opérant une dérivée discrète sur les mesures obtenues. Le résultat concernant les signaux mesurés avec le bolomètre et le détecteur HgCdTe sont respectivement résumés sur la figure 2.10.a et 2.10.b.

Plusieurs constatations s'imposent à la vue de ces deux diagrammes :

- le rayonnement émis dans un régime où le spot de focalisation est égal à la longueur d'onde générée, est anisotrope et légèrement dirigé vers l'avant. L'existence d'interférences constructives dans le cristal non linéaire peut expliquer que ce diagramme s'oriente vers l'avant. Cette situation diffère notablement d'un cas de rayonnement dipolaire pour laquelle le rayonnement est plus ouvert angulairement, ce qui est logique car les conditions de validité (taille source  $\ll$  longueur d'onde  $\ll$  distance d'observation) ne sont pas remplies ici.
- les diagrammes angulaires de rayonnement se trouvent limités par l'ouverture numérique des miroirs. L'utilisation de miroirs plus ouverts ou d'une lentille focalisante placée juste après le cristal pourrait nettement améliorer le niveau de signal. L'ouverture maximale aux alentours de  $30^\circ$  correspond en fait à l'ouverture limitée des miroirs paraboliques et non pas à la source, puisque cette valeur est indépendante du détecteur.
- Les deux diagrammes ont été obtenus suivant des réglages optiques différents, mais qui maximisaient le signal collecté i.e. la taille du spot de focalisation était égale à la longueur d'onde générée. Cette différence de réglages explique certainement les différences entre les deux diagrammes.

---

[90] E. D. Palik, editor. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1998.

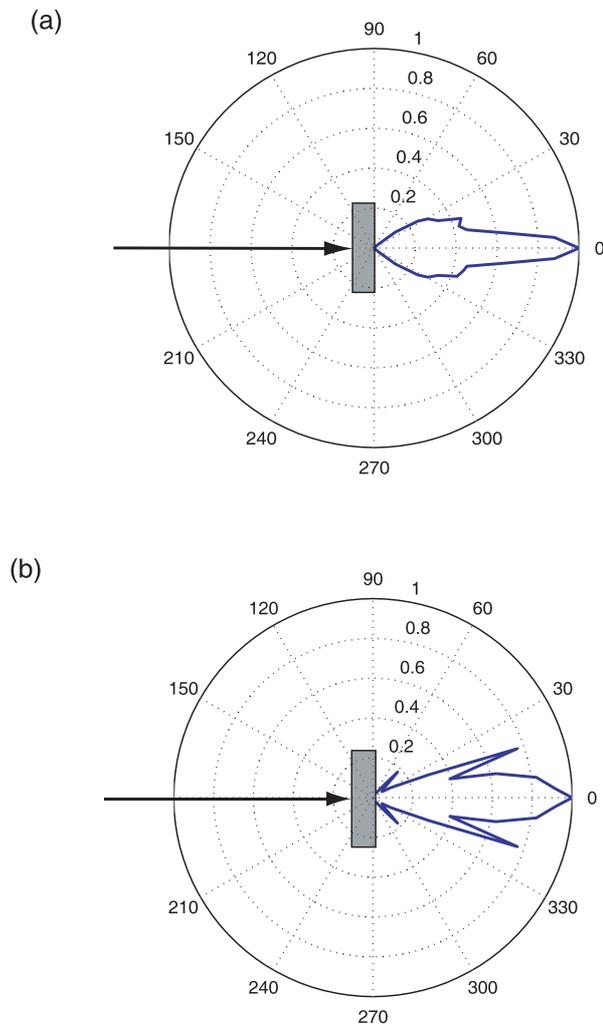


FIG. 2.10: (a) Répartition angulaire de l'intensité THz normalisée mesurée par le bolomètre, et générée dans un cristal de ZnTe d'épaisseur  $e = 500 \mu m$ . (b) Répartition angulaire de l'intensité IR normalisée (u.a.) mesurée par le détecteur HgCdTe, et générée dans un cristal de ZnTe d'épaisseur  $e = 500 \mu m$ .

- Dans le cas du diagramme IR, le pic à  $40^\circ$  semble être plus un artefact de diffraction ou à un problème de focalisation du faisceau IR dans le détecteur via le second miroir parabolique. Le second pic vers  $20^\circ$  semble quant à lui être plus représentatif, puisqu'existant dans les deux diagrammes. Là encore, il peut s'agir d'un phénomène de diffraction sur les miroirs paraboliques.

### B.3 Rayonnement non linéaire

Les sections précédentes ont montré que le signal mesuré était bien un signal IR/THz dénué de photons incidents visibles, mais nous ne savons pas encore s'il s'agit d'un signal généré par rectification optique. Pour apporter la preuve que le signal détecté est issu d'un processus optique non linéaire, nous avons étudié la variation de ce signal en fonction de la puissance incidente. La figure 2.11 montre le carré du signal collecté en fonction de la puissance incidente. Les courbes en trait plein correspondent à des ajustements linéaires des points expérimentaux.

Pour les deux cristaux GaAs et ZnTe, l'évolution linéaire du signal en fonction du carré de la puissance incidente montre bien que nous avons affaire à un processus de génération non linéaire d'ordre 2. Cependant, deux autres points sont à souligner ici :

- Les niveaux de signal et de bruit sont légèrement différents suivant les deux cristaux pour des raisons essentiellement de réglages optiques et de positionnement du détecteur. Les résultats présentés correspondent aux premiers résultats obtenus, depuis, des efforts en matière d'augmentation de signal et d'amélioration du rapport signal à bruit ont été réalisés. De plus il existe une difficulté expérimentale majeure dans cette expérience qui limite la reproductibilité des mesures. Il faut savoir que la variation de la puissance incidente a été effectuée à l'aide d'une densité optique variable, composée d'un disque de verre comprenant à l'intérieur une épaisseur variable de film métallique. La rotation de ce disque permet de faire varier la transmission, mais comme l'épaisseur de verre n'est pas uniforme sur le disque, la rotation de ce dernier ne fait pas que varier la puissance transmise, elle modifie aussi le trajet du faisceau transmis. Cette modification de chemin optique entraîne une détérioration de l'alignement optique dans le cristal non linéaire et une diminution du signal collecté. Pour palier à ce défaut, il est nécessaire de réaligner le montage en maximisant le signal mesuré, à chaque nouvelle position du disque.
- Le dernier point de mesure obtenu avec l'arsénure de gallium pour une puissance incidente supérieure à  $200\text{ mW}$  semble légèrement en dessous de la courbe d'ajustement. Sa position peut être expliquée soit par un phénomène de saturation, déjà observé par d'autres équipes pour le DAST, soit par un problème de réglage optique mentionné précédemment. C'est pourquoi il a été supprimé des données utilisées pour l'ajustement linéaire.

### B.4 Etude de la polarisation

Nous avons étudié la polarisation de l'onde IR/THz générée par rectification optique, afin de vérifier la conservation de la polarisation au passage dans le cristal. L'expérience a été réalisée uniquement dans le domaine IR, car nous ne possédons que des polariseurs fonctionnant dans ce domaine de longueur d'onde. Ces polariseurs sont à grilles ; en plaçant un sur le trajet du faisceau IR, il est

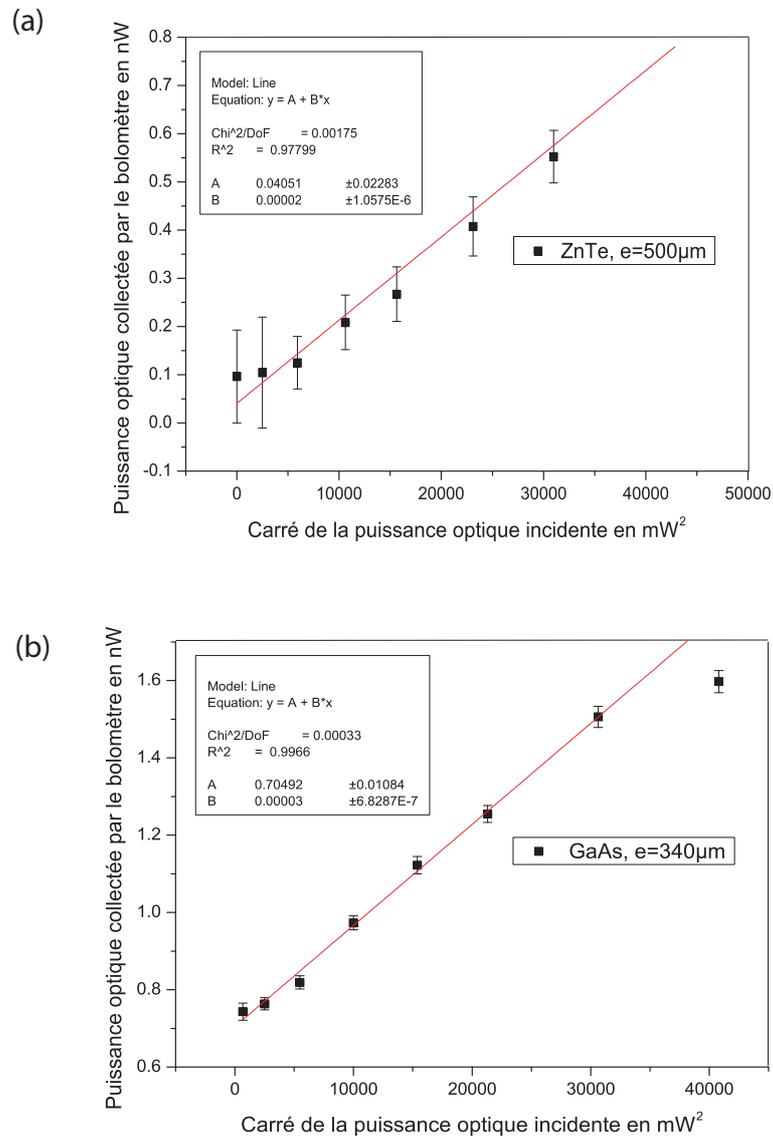


FIG. 2.11: Evolution du signal THz collecté en fonction de la puissance optique au carré, pour un cristal de ZnTe (a) et pour un cristal de GaAs (b) (pour un angle azimutal donnant la puissance maximale - voir plus loin-).

possible d'étudier l'intensité transmise par le polariseur en fonction de l'angle  $\alpha$  entre la direction du polariseur et la direction de polarisation de l'onde incidente. La figure 2.12 montre les points expérimentaux obtenus et les compare à la loi de Malus en  $\cos^2(\alpha)$ <sup>1</sup>.

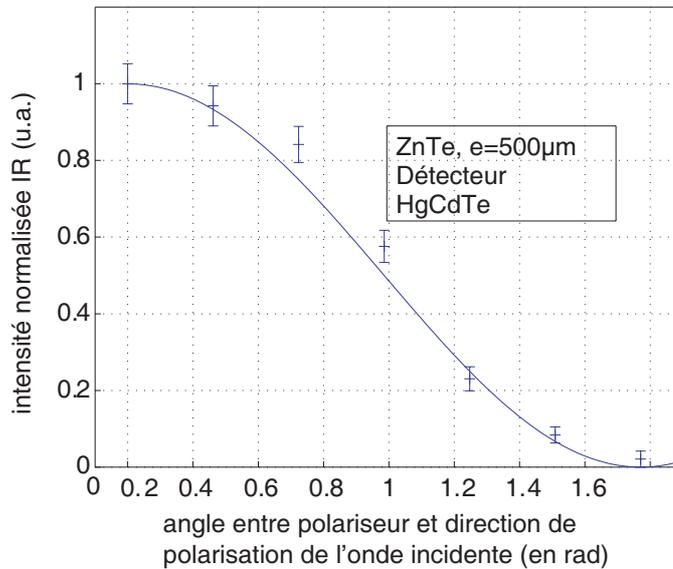


FIG. 2.12: Variation de l'intensité IR transmise par un polariseur à grille en fonction de l'angle entre la direction de polarisation du polariseur et celle du champ électrique visible incident. Comparaison avec la loi de Malus en traits pleins.

Le bon accord de la loi de Malus et des points expérimentaux tend à montrer qu'il y a bien conservation de la polarisation lors du processus de génération d'ondes IR/THz dans le cristal non linéaire de ZnTe. Toutefois, on peut noter que certains points ne sont pas parfaitement alignés avec l'ajustement théorique; on peut expliquer cet écart par l'incertitude sur la connaissance de la direction de polarisation du polariseur.

## B.5 Etude azimutale

Les sections précédentes nous ont permis de conclure que le signal mesuré était bien un signal issu de photons IR/THz, et qu'il était issu d'un processus non linéaire d'ordre 2. Toutefois, rien ne

<sup>1</sup>Etienne Malus était un physicien et mathématicien français du début du 19ème siècle. Il a notamment travaillé sur l'optique géométrique et ondulatoire, a participé à la découverte de la polarisation de la lumière, étudié les effets de polarisation de la lumière par réflexion et est surtout connu pour la loi de Malus, donnant l'intensité lumineuse transmise, quand un polariseur est placé sur le trajet d'un faisceau lumineux incident

prouve que le signal a bien été généré par rectification optique [91,92]. Il existe en effet d'autres effets linéaires et non linéaires initiés par un faisceau impulsif proche infrarouge, responsables d'une génération d'ondes IR/THz. Toutefois les ondes émises à partir de la rectification optique porte une signature spécifique : l'efficacité de rayonnement dépend de l'angle azimutal  $\theta$  suivant une fonction parfaitement définie ( $\theta$  est défini comme étant l'angle entre la direction de polarisation du champ électrique incident et la direction d'un axe cristallographique). L'objet de cette section est de trouver cette fonction, et de comparer ensuite la variation azimutale théorique trouvée aux résultats expérimentaux.

Il est possible de prévoir la réponse azimutale d'un cristal non linéaire type blende taillé en  $\langle 110 \rangle$  par le calcul d'optique non linéaire suivant. Pour mener à bien ce calcul, il est nécessaire d'introduire trois systèmes de coordonnées différents.

- $R=(x,y,z)$ , qui repère les axes du référentiel dans le laboratoire,
- $R'=(x',y',z')$ , qui repère les axes cristallographiques du cristal,
- $R''=(x'',y'',z'')$ , qui repère les axes diélectriques principaux du cristal.

Dans le repère du laboratoire,  $z$  est la direction de propagation de l'impulsion visible incidente,  $x$  est la polarisation (linéaire) de ce champ incident. La figure 2.13 est un schéma de principe fixant l'orientation des systèmes de coordonnées entre eux.

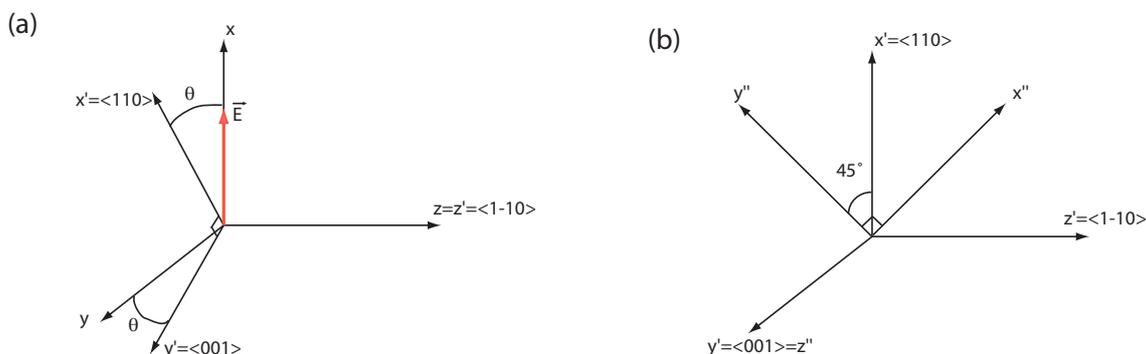


FIG. 2.13: (a) Lien entre les systèmes de coordonnées  $R$  et  $R'$ . (b) Lien entre les systèmes de coordonnées  $R'$  et  $R''$ .

La notation  $\langle 110 \rangle$  de la taille du cristal réfère en fait l'axe cristallographique  $x'$  dans le système de coordonnées des axes diélectriques principaux du cristal, ainsi

[91] Q. Chen and Z.-C. Zhang. Polarization modulation in optoelectronic generation and detection of terahertz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :3435, 1999.

[92] A. Bonvalet. *Spectroscopie infrarouge femtoseconde : étude, développement et applications*. PhD thesis, Laboratoire Optique et Biosciences, Ecole Polytechnique, 1997.

$$\begin{aligned}
x' = \langle 110 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}_{R''} \\
y' = \langle 001 \rangle &= \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}_{R''} \\
z' = \langle 1-10 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}_{R''}
\end{aligned}$$

Ce qui nous donne le lien entre  $R'$  et  $R''$ , lien que l'on peut formaliser par l'intermédiaire d'une matrice de transfert  $T''$ , définie comme suit :

$$E_{R'} = T'' \cdot E_{R''}; \text{ ou } T'' = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix}_{R''} \quad (2.6)$$

Le lien entre  $R$  et  $R'$  se fait grâce à la définition de l'angle azimutale  $\theta$ , angle entre la polarisation de l'onde incidente et l'axe cristallographique  $\langle 110 \rangle$ . On peut formaliser ce lien en écrivant la matrice de passage entre les deux référentiels :

$$\mathbf{E}_{R'} = T' \cdot \mathbf{E}_R; \text{ ou } T' = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}_R \quad (2.7)$$

L'onde incidente pénétrant dans le cristal non linéaire va polariser ce dernier, caractérisé par ses coefficients non linéaires du second ordre (car nous nous focalisons sur la rectification optique). La matrice de ces coefficients s'écrit pour des cristaux de type blende comme le ZnTe ou le GaAs de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad (2.8)$$

où  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$  par propriété de symétrie [42].

La polarisation résultante s'écrit :

$$\vec{P}_{R''} = \varepsilon_0 \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix}_{R''} \otimes \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix}_{R''}^* \quad (2.9)$$

Or l'onde incidente est polarisée uniquement suivant l'axe  $x$ , et s'écrit donc dans le repère des axes principaux :

---

[42] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Elsevier Science, Second Edition, 2003.

$$\vec{E} = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}_R = E_0 \begin{pmatrix} \cos \theta \\ -\sin \theta \\ 0 \end{pmatrix}_{R'} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \cos \theta \\ -\sqrt{2} \sin \theta \end{pmatrix}_{R''} \quad (2.10)$$

On peut alors simplifier l'équation 2.9 :

$$\vec{P}_{R''} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x E_x^* \\ E_y E_y^* \\ E_z E_z^* \\ E_y E_z^* + E_z E_y^* \\ E_x E_z^* + E_z E_x^* \\ E_x E_y^* + E_y E_x^* \end{pmatrix}_{R''} \quad (2.11)$$

$$\vec{P}_{R''} = \varepsilon_0 d_{14} E_0^2 \begin{pmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \theta \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \theta \\ \frac{1}{2} \cos^2 \theta \end{pmatrix}_{R''} \quad (2.12)$$

Le passage du système de coordonnées  $R''$  à  $R$  se fait en utilisant les matrices de passage  $T'$  et  $T''$  définies plus haut :

$$\vec{P}_{R''} = T''^{-1} \cdot T' \vec{P}_R = \varepsilon_0 d_{14} E_0^2 \begin{pmatrix} -\frac{3}{2} \cos^2 \theta \sin \theta \\ -\cos \theta \sin^2 \theta + \frac{1}{2} \cos^3 \theta \\ 0 \end{pmatrix}_R \quad (2.13)$$

Cette polarisation non linéaire induit un champ électrique IR/THz, via une dérivé première ou seconde en fonction du temps suivant la géométrie de la source, qui joue donc sur  $E_0(t)$ , indépendamment de  $\theta$ . L'intensité IR/THz générée est donc proportionnelle au carré du module de la polarisation, ce qui donne après linéarisation des fonctions trigonométriques :

$$I_{IR/THz} \propto 7 + 4 \cos(2\theta) - 3 \cos(4\theta) \quad (2.14)$$

L'équation 2.5 décrit la variation de l'efficacité de génération d'ondes IR/THz par rectification optique en fonction de l'angle azimutale  $\theta$  défini plus haut.

La figure 2.14 superpose les résultats expérimentaux à la courbe théorique déduite de l'équation 2.5.

L'accord excellent entre théorie et expérience est une preuve irréfutable que le signal mesuré par les deux détecteurs HgCdTe et bolomètre provient bien d'une génération optique dû au coefficient  $\chi^{(2)}$  du cristal non linéaire. Par ailleurs, la section B.1 a montré que le signal mesuré provenait bien de photons IR/THz. En conséquence, ces deux preuves assurent que le signal détecté ne peut provenir que d'une génération par rectification optique.

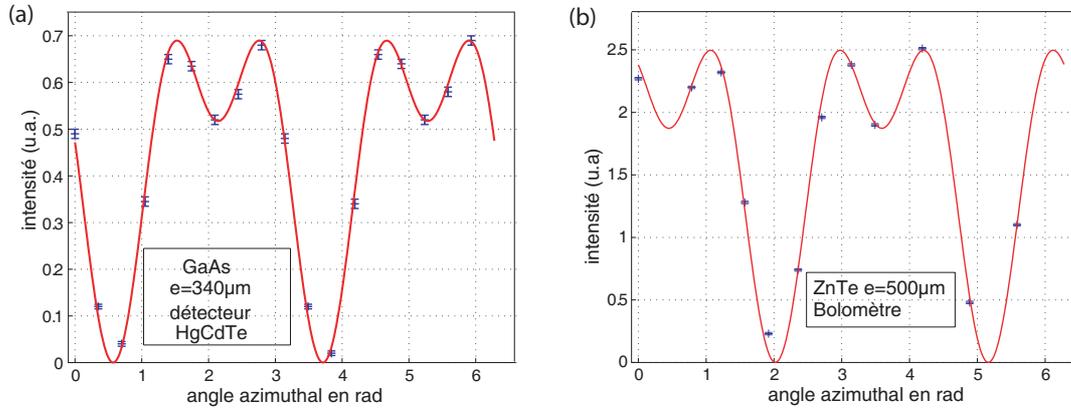


FIG. 2.14: Comparaison théorie expérience de la variation azimuthale de l'intensité IR générée dans un cristal de GaAs (a) et de l'intensité THz générée dans un cristal de ZnTe (b).

## B.6 Spectre du rayonnement détecté

### B.6.1 Principe

Il reste un dernier point pour caractériser complètement le rayonnement IR/THz généré par rectification optique dans notre montage expérimental, la connaissance de la répartition spectrale en intensité du signal mesuré. La recherche de cette information a fait l'objet du développement et de la réalisation d'un montage de spectroscopie par transformée de Fourier.

Ce spectroscopie par transformée de Fourier fonctionnant dans le domaine IR a été développé par A. Bonvalet et M. Joffre dans le milieu des années 1990 [16], et nous l'avons étendu au domaine THz.

Leur démarche scientifique part du constat que la réalisation d'un interféromètre dans le domaine IR ou THz est difficile notamment pour des raisons d'alignement optique. Du fait de la plus grande longueur d'onde que dans le visible, c'est en principe plus facile à aligner mais comme on ne voit pas les faisceaux, l'alignement optique à ces longueurs d'onde est en fait délicat. L'idée est de réaliser l'interféromètre dans le domaine visible puis à la sortie de convertir la fréquence visible en fréquence IR ou THz par rectification optique. Cette réalisation expérimentale est à rapprocher de celle d'un autocorrélateur interférométrique [76] à la différence qu'en sortie de l'interféromètre, l'effet non linéaire n'est pas la génération de seconde harmonique mais la rectification optique. Toutefois si l'interféromètre est un interféromètre classique de Michelson où les faisceaux des deux bras se recouvrent spatialement en sortie, le mélange des deux faisceaux dans le cristal non linéaire en

[16] A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin, and A. Migus. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the midinfrared by optical rectification of 15 fs light-pulses at 100 mhz repetition rate. *Appl. Phys. Lett.*, 67(20) :2907–2909, 1995.

[76] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena : Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, Boston, 1996.

sortie génère un interférogramme dont l'information spectrale dans le domaine IR/THz est noyée parmi d'autres signaux parasites. [92]

En effet, en sortie de l'interférogramme, le champ électrique résultant de la superposition des deux impulsions femtosecondes peut s'écrire :

$$E^{tot} \propto \text{Re}(A_1(t)e^{-i\omega t} + A_2(t-\tau)e^{-i\omega(t-\tau)}) \quad (2.15)$$

où  $\tau$  est le décalage temporel entre les deux impulsions parcourant les deux bras de l'interféromètre. A la sortie du cristal non linéaire, si l'on ne retient que les termes dûs à la rectification optique (i.e. différence de fréquence) :

$$E_{OR}^{tot}(t) \propto A_1(t) \cdot A_1^*(t) + A_2(t-\tau) \cdot A_2^*(t-\tau) + A_1(t) \cdot A_2^*(t-\tau)e^{-i\omega\tau} + A_1^*(t) \cdot A_2(t-\tau)e^{i\omega\tau} \quad (2.16)$$

Le premier terme (resp. le second) correspond au champ IR/THz engendré par la voie 1 (resp. la voie 2), et les deux derniers termes correspondent à l'interaction entre les deux impulsions visibles dans le cristal non linéaire.

Si un détecteur sensible aux longueurs d'onde IR/THz est placé après le cristal, le signal enregistré sera de la forme suivante :

$$I(\tau) \sim \int_{-\infty}^{\infty} |E_{OR}^{tot}(t)|^2 dt \quad (2.17)$$

$$I(\tau) \sim \int_{-\infty}^{\infty} |E_{IR1}(t) + E_{IR2}(t-\tau) + A_1(t)A_2^*(t-\tau)e^{-i\omega\tau} + A_1^*(t)A_2(t-\tau)e^{i\omega\tau}|^2 dt \quad (2.18)$$

où  $E_{IRi}(t) = A_i(t)A_i^*(t)$  est un terme réel (on ne fera donc plus de distinction entre module carré et carré).

Si on développe cette expression, on distingue quatre termes :

1.

$$i_1(\tau) \sim \int_{-\infty}^{\infty} E_{IR1}^2(t) + E_{IR2}^2(t-\tau) dt = 2 \int_{-\infty}^{\infty} E_{IR1}^2(t) dt \quad (2.19)$$

Ce terme constant vient placer un offset dans l'interférogramme enregistré, car il est indépendant de  $\tau$ . Pour faire de la spectroscopie IR/THz, il n'est donc pas gênant.

2.

$$i_2(\tau) \sim 2 \int_{-\infty}^{\infty} E_{IR1}(t)E_{IR2}(t-\tau) dt \quad (2.20)$$

---

[92] A. Bonvalet. *Spectroscopie infrarouge femtoseconde : étude, développement et applications*. PhD thesis, Laboratoire Optique et Biosciences, Ecole Polytechnique, 1997.

$i_2$  est l'autocorrélation du champ électrique IR/THz, qui par une transformée de Fourier donne accès au spectre de la source (spectre référence). En plaçant un échantillon dans un des bras de l'interféromètre, tout en effectuant la transformée de Fourier de  $i_2$ , il est possible d'obtenir le spectre d'absorption de l'échantillon, que l'on peut normaliser en faisant le rapport avec le spectre référence. La difficulté majeure ici est de pouvoir isoler ce terme, car il se confond avec un des termes de l'expression de  $i_4$ , comme nous allons le voir dans la suite.

3.

$$\begin{aligned} i_3(\tau) &\sim 4 \int_{-\infty}^{\infty} [E_{IR1}(t) + E_{IR2}(t - \tau)] [A_1(t)A_2^*(t - \tau)e^{i\omega\tau} + A_1^*(t)A_2(t - \tau)e^{-i\omega\tau}] dt \\ i_3(\tau) &\sim 4 \cos(\omega\tau) \int_{-\infty}^{\infty} [E_{IR1}(t) + E_{IR2}(t - \tau)] A_1^2(t)A_2^2(t - \tau) dt \end{aligned} \quad (2.21)$$

Ce terme de l'interférogramme oscille à la fréquence  $\omega$ , contient une information difficile à interpréter mais ne gêne pas pour isoler le terme  $i_2(\tau)$ .

4.

$$\begin{aligned} i_4(\tau) &\sim \int_{-\infty}^{\infty} [A_1(t)A_2^*(t - \tau)e^{i\omega\tau} + A_1^*(t)A_2(t - \tau)e^{-i\omega\tau}]^2 dt \\ i_4(\tau) &\sim 2(1 + \cos(2\omega\tau)) \int_{-\infty}^{\infty} [I_1(t)I_2(t - \tau)] dt \end{aligned} \quad (2.22)$$

où  $I_i(t) = \text{Re}(A_i(t)e^{-i\omega t})^2$ . Ce terme  $i_4(\tau)$  comporte deux termes, l'un oscillant à la fréquence  $2\omega$  et l'autre centré autour de la fréquence nulle. L'intégrale en post facteur représente l'autocorrélation intensimétrique des impulsions visibles (fonction d'autocorrélation d'ordre 2 du champ électrique visible incident).

De tous ces termes, seul le terme  $i_2(\tau)$  nous intéresse, cependant il est centré autour de la fréquence nulle, au même titre que le premier terme de  $i_4(\tau)$ . Un filtre spectral, comme celui effectué lors de la mesure de l'autocorrélation interférométrique par génération de seconde harmonique, ne permet pas de récupérer uniquement le terme d'intérêt. Toutefois, en passant à une géométrie non colinéaire, il est possible par un filtrage spatial de ne récupérer que le terme d'intérêt. En effet, le terme  $i_2$  est porté par des ondes IR/THz dont la focalisation et la sortie du cristal se font de manière différente des ondes visibles responsables du terme gênant dans  $i_4$ , à cause des effets de diffraction. La contribution gênante dans  $i_4$  sort du cristal avec un angle, beaucoup plus important que les ondes du terme  $i_2$ ; un filtrage spatial via une fente permet de ne récupérer que l'autocorrélation du champ électrique rectifié. Mission accomplie!

C'est ce que nous avons réalisé pour faire de la spectroscopie IR/THz, suivant le montage expérimental proposé par A. Bonvalet et reproduit sur la figure 2.15.

Les résultats expérimentaux présentant les interférogrammes et les spectres correspondants obtenus avec le détecteur HgCdTe et le bolomètre sont résumés sur les deux figures suivantes (figures 2.16 et 2.17).

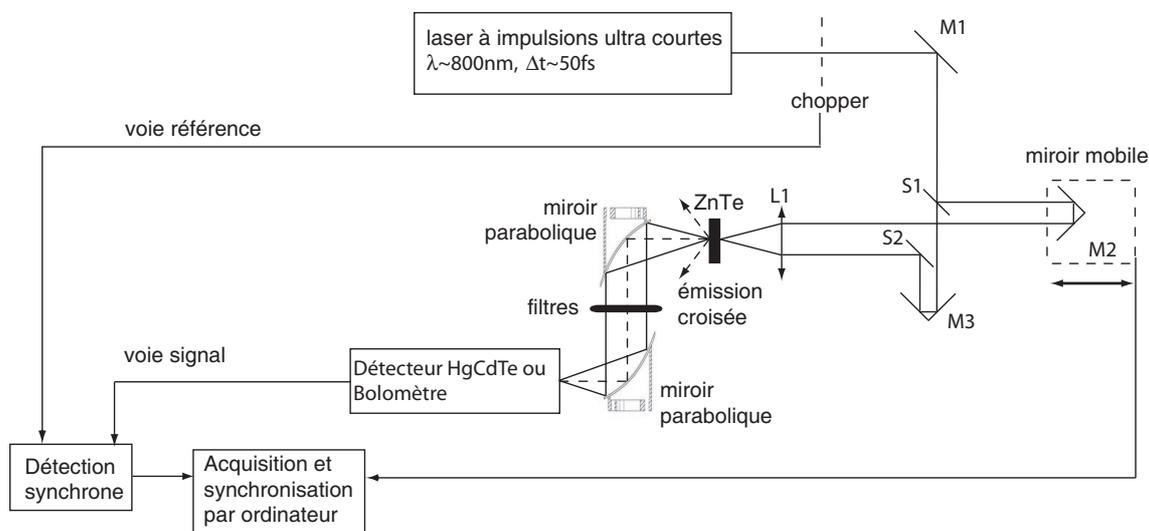


FIG. 2.15: Schéma expérimental du spectromètre par transformée de Fourier en géométrie non colinéaire.

Bien que la source IR/THz présente un spectre continu en émission <sup>[93,94]</sup>, à cause des filtres additionnels (polyéthylène noir et polyéthylène blanc), il n'est pas possible de le visualiser sur les spectres expérimentaux. Les spectres expérimentaux sont le résultats du produit de convolution des fonctions d'appareil des détecteurs avec leurs filtres par le spectre continu de la source. En jouant sur les fonctions d'appareil, i.e. trouver de meilleurs filtres spectraux et réduire la taille du cristal générateur, il serait possible de visualiser des spectres plus larges avec notre dispositif.

### B.6.2 Application à la spectroscopie THz

Les spectres mesurés précédemment servent de références qui nous permettent de faire de la spectroscopie. Nous avons inséré plusieurs échantillons sur le trajet du faisceau THz, et étudié la transmission pour chacun d'entre eux. A titre d'exemple, le spectre d'absorption du téflon est présenté sur la figure 2.18.

Cet exemple montre le potentiel de cette spectroscopie IR/THz. Dans la mesure où le domaine THz est encore largement inexploré, cette technique de spectroscopie apporte un plus indéniable dans la caractérisation spectrale des matériaux dans ce domaine de fréquences. Toutefois, plusieurs améliorations peuvent être apportées :

- le rapport signal à bruit peut être amélioré en stabilisant le mouvement du miroir mobile, l'utilisation d'un moteur à courant continu plutôt qu'un moteur pas à pas peut se révéler efficace.

[93] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X.-C. Zhang. Distorsion of thz pulses in electro-optic sampling. *JOSA B*, 15 :1795, 1998.

[94] R. Huber, A. Brodschelm, T. Tausser, and A. Leitenstorfer. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 thz. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :3191–3193, 2000.

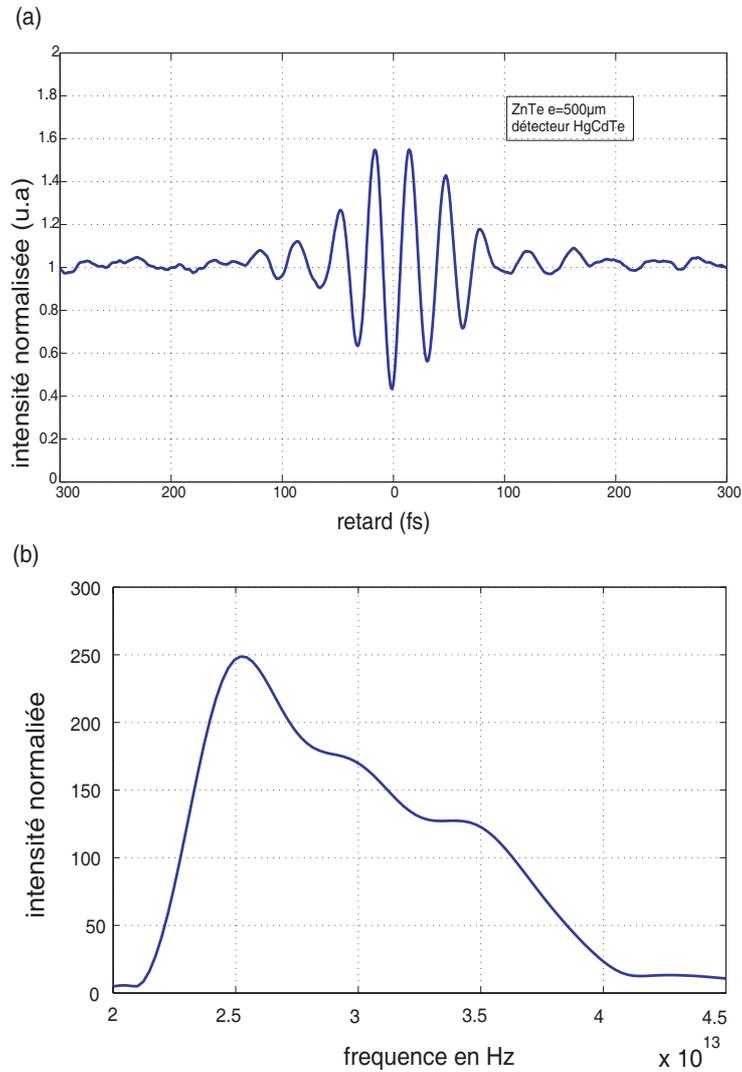


FIG. 2.16: (a) Autocorrélation obtenue en régime non colinéaire dans le domaine IR, obtenu avec le détecteur HgCdTe. (b) Transformée de Fourier de l'autocorrélation (a) donnant le spectre de la source générée par rectification optique convoluée avec la fonction d'appareil du détecteur HgCdTe.

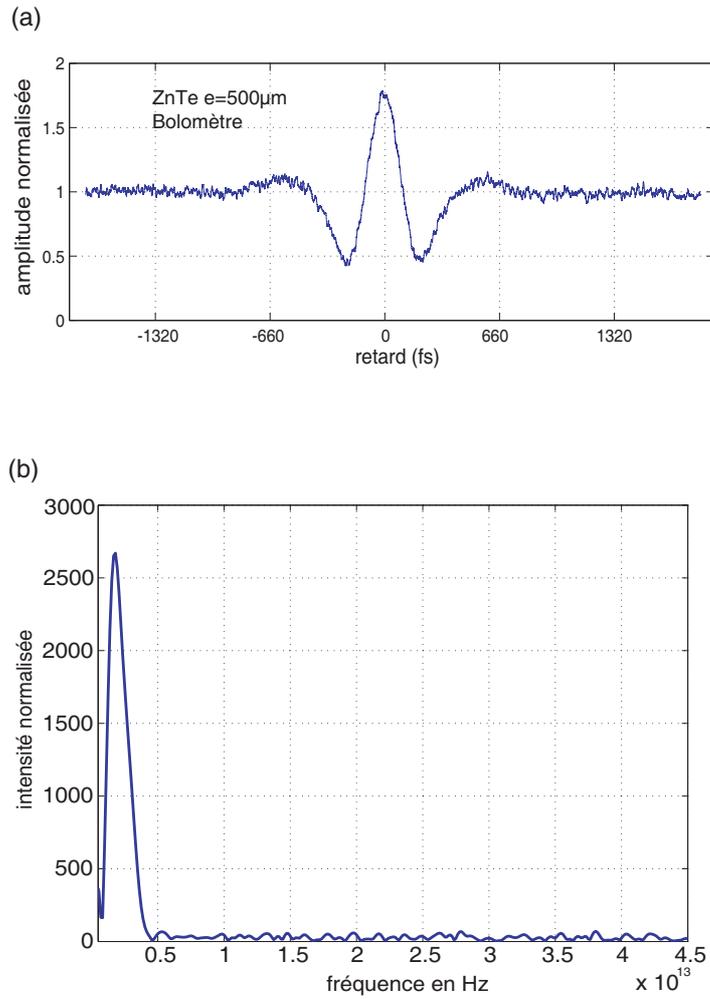


FIG. 2.17: (a) Autocorrélation obtenue en régime non colinéaire dans le domaine THz, obtenu avec le bolomètre. (b) Transformée de Fourier de l'autocorrélation (a) donnant le spectre de la source générée par rectification optique convoluée avec la fonction d'appareil du bolomètre et ses filtres spectraux.

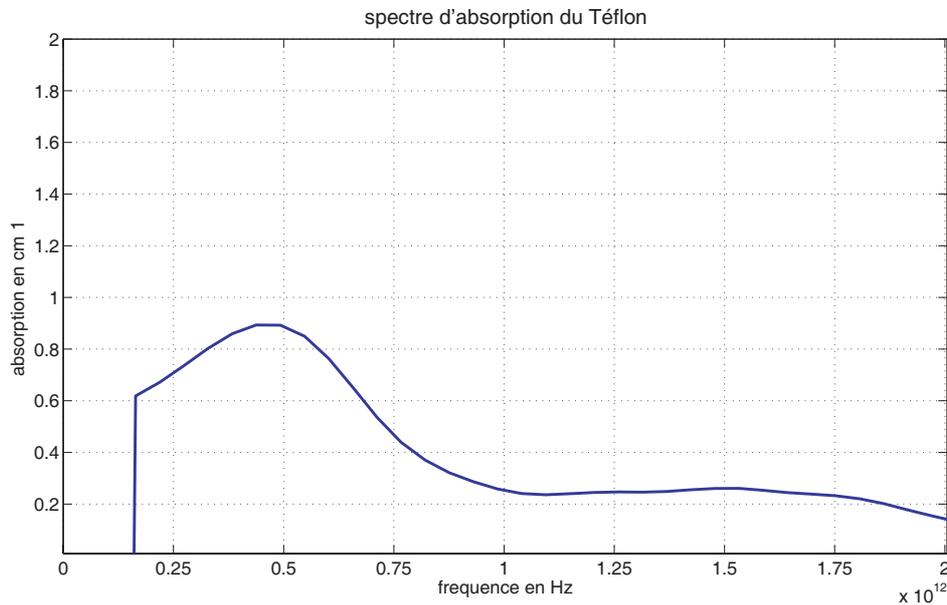


FIG. 2.18: Spectre du téflon entre 0.3 et 2 THz.

- l'utilisation de cristaux non linéaires plus épais (épaisseur supérieure à 1 mm) permettrait de disposer de plus de signal THz. Le désaccord de phase augmentant avec l'épaisseur, l'émission aux hautes fréquences (supérieures à plusieurs THz) serait réduite, mais l'énergie disponible entre 0 et 4-5 THz augmenterait.
- l'utilisation d'optiques de collection plus ouvertes permettrait de collecter plus de signal. La possibilité récente de pouvoir utiliser des lentilles en picarin <sup>2</sup> qui fonctionnent à la fois dans le visible et le THz serait un avantage certain concernant la facilité de réglage optique.
- la propagation du faisceau THz dans l'atmosphère constitue une source de bruit non négligeable, placer un capot opaque et hermétique sur l'ensemble du spectroscopie pourrait apporter une réponse efficace à ce problème. En effet, l'introduction d'un gaz inerte par rapport aux ondes THz comme le diazote, ou même la possibilité de faire le vide dans l'enceinte, supprimerait toute contrainte et perte de signal liées à la nature et aux mouvements des gaz contenus dans l'atmosphère.
- enfin, les variations de puissance et de phase du mode impulsionnel du laser constituent une forte restriction à l'utilisation de ce type de spectroscopie en fonctionnement courant voire grand public. La spectroscopie THz résolue en temps (THz TDS en anglais) semble être beaucoup plus adaptée au domaine THz, d'un point de vue de la quantité et la diversité des informations fournies (voir chapitre 1), et du fait que l'on s'affranchit des variations de puissance du laser.

---

<sup>2</sup><http://www.mtinstruments.com/>

---

# Microscopie THz de champ proche

---

## Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Introduction à la microscopie optique de champ proche</b>	<b>71</b>
A.1	Diffraction et résolution en optique	71
A.2	Les idées de l'optique de champ proche	74
<b>B</b>	<b>Mode à ouverture</b>	<b>75</b>
B.1	Présentation	75
B.2	Montage expérimental	76
B.3	Images-résultats expérimentaux	77
B.4	Conclusions	85
<b>C</b>	<b>Mode collection</b>	<b>86</b>
C.1	Présentation	86
C.2	Description du montage	87
C.3	Résultats et difficultés	89
<b>D</b>	<b>Conclusion de ce chapitre</b>	<b>93</b>

---

## A Introduction à la microscopie optique de champ proche

### A.1 Diffraction et résolution en optique

Tout système d'imagerie optique est caractérisé par une résolution spatiale (latérale ou longitudinale). Quand ce système est libéré des aberrations, la résolution spatiale latérale se trouve limitée par la diffraction. La diffraction décrit comment une onde lumineuse est modifiée lors de sa propagation. Plus précisément, on peut voir l'effet de la diffraction sur la figure 3.1 qui est extraite de la thèse de Rémi Carminati <sup>[95]</sup>.

---

[95] R. Carminati. *Analyse de la formation des images en optique de champs proche*. PhD thesis, EM2C Ecole Centrale Paris, 1996.

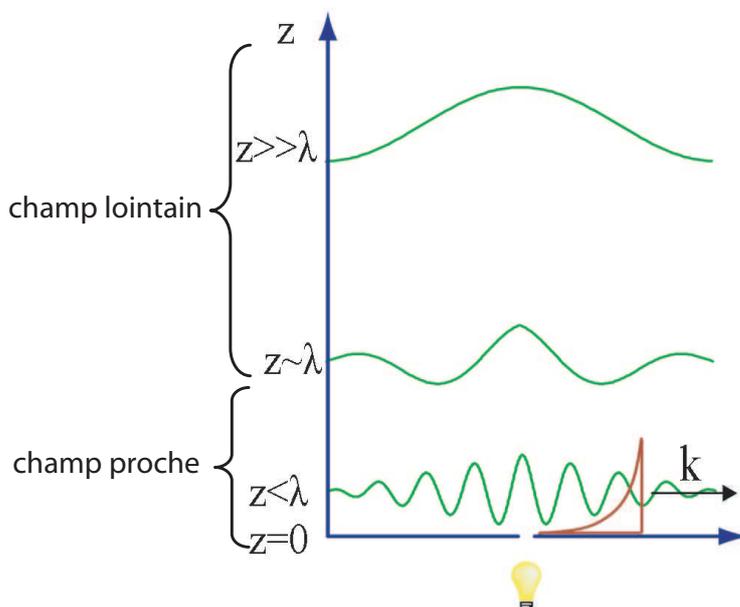


FIG. 3.1: Schéma explicatif de la diffraction lors de la propagation d'une onde plane au passage d'un objet. La diffraction agit comme un filtrage passe bas des fréquences spatiales

Ce schéma montre une onde plane polarisée rectilignement traversant un objet présentant un contraste en transmission. La courbe verte juste après l'objet représente la variation spatiale du champ électrique de l'onde et met en évidence l'existence de variations rapides de ce champ (transitions du champ se faisant sur des échelles de longueur plus petites que la longueur d'onde). Ces variations spatiales rapides sont portées par les **ondes évanescentes**, dont la composante suivant  $z$  du vecteur d'onde est imaginaire pure, et les autres composantes réelles. L'existence de ces ondes à la surface de l'échantillon est liée à la longueur d'onde d'illumination  $\lambda$ , et définit ce que l'on appelle la zone de champ proche, situé à une distance inférieure à  $\frac{\lambda}{2\pi}$  de la surface de l'échantillon. La zone située à une distance supérieure à cette échelle de longueur est appelée la zone de champ lointain.

Il est alors aisé de comprendre pourquoi un système d'imagerie classique parfait, i.e. dépourvu de toute aberration optique, présente une résolution latérale limitée : il travaille en champ lointain. En effet, si deux objets ponctuels sont suffisamment proches pour que leurs taches images se recouvrent, alors ils ne sont plus discernables. La résolution d'un système optique classique limité par la diffraction peut donc être définie comme la distance minimale entre deux objets telle que leurs images par cet instrument soient séparées. Afin de quantifier le pouvoir de résolution d'un instrument optique et de comparer les performances de différents systèmes, il est communément

adopté un critère simple, appelé critère de Rayleigh <sup>1</sup> et illustré sur la figure 3.2 : deux points objets sont résolus si le maximum principal de l'une des images coïncide avec le premier minimum de l'autre.

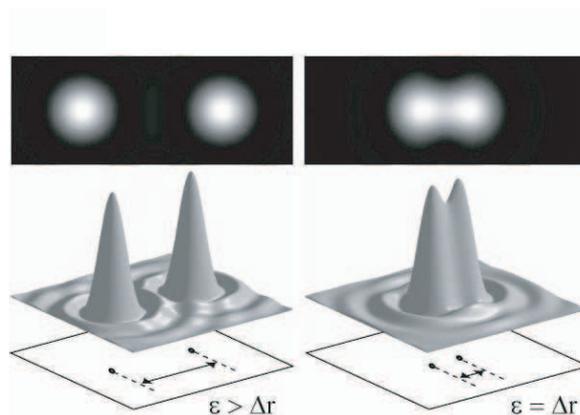


FIG. 3.2: Critère de Rayleigh (dans le cas d'une pupille circulaire) : (a) images clairement séparées (b) images à la limite de résolution

Concrètement, dans le cas d'un microscope possédant un objectif de microscope d'ouverture numérique notée  $ON$ , illuminé par une lumière monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ , le critère de Rayleigh permet d'évaluer la résolution ultime de l'instrument et donne la valeur suivante :

$$\Delta r = \frac{1,22 \lambda}{2 O.N.} \quad (3.1)$$

Notons qu'il existe d'autres critères, comme ceux de Schuster <sup>[96]</sup> ou de Houston <sup>[97]</sup>, qui définissent des pouvoirs de résolution différemment. Par exemple, le critère de Schuster stipule que deux points objets sont séparés s'il n'y a aucun recouvrement des lobes centraux de leurs taches de diffraction ; dans ce cas, la limite de résolution est bien supérieure à celle définie par le critère de Rayleigh. Selon le critère de Houston, pour que deux points objets soient séparés, leurs tâches images en intensité doivent être séparés d'une distance au moins égale à la largeur à mi-hauteur d'une seule tâche image. Puisque la résolution est définie grâce à la largeur à mi-hauteur d'une seule tâche image, le critère de Houston peut être appliqué à un seul point source. C'est ce critère que nous utiliserons par la suite, avec celui de Rayleigh. Le critère de Houston a aussi l'avantage d'être plus facile à mettre en oeuvre contrairement au critère de Rayleigh. En effet, il nécessite un échantillon composé d'objets très petits (pouvant être considérés comme ponctuels) dont il est possible de faire varier la distance de séparation.

<sup>1</sup>introduit par Lord Rayleigh en 1879

[96] A. J. den Dekker and A. van den Bos. Resolution : a survey. *J. Opt. Soc. Am. A*, 14 :547–557, 1997.

[97] W. V. Houston. A compound interferometer for fine structure work. *Phys. Rev.*, 29 :478, 1927.

## A.2 Les idées de l'optique de champ proche

La question qui se pose alors est la suivante : la limitation de la résolution, imposée par la diffraction, est-elle insurmontable ? La réponse est non, car l'information des détails fins existe bien, elle est juste confinée à la surface de l'objet via les ondes évanescentes. Collecter les ondes évanescentes permettrait donc d'améliorer la résolution. Cette idée fut pour la première fois formulée par Edward Hutchinson Synge en 1928 <sup>[98]</sup>, et consistait à balayer une ouverture sub-longueur d'onde, utilisée comme source de lumière, dans le champ proche d'un échantillon. A l'époque, la précision dans le contrôle et le positionnement d'une telle ouverture était insuffisante pour réaliser une telle expérience dans le domaine des fréquences optiques. En 1972, Ash et Nichols réalisèrent des images de champ proche avec une résolution de  $\lambda/60$  <sup>[99]</sup> dans le domaine des micro-ondes, où les contraintes de positionnement sont moins grandes. Puis le développement du microscope à effet tunnel (STM) par Binnig et Rohrer <sup>[100]</sup> en 1982 (Prix Nobel de Physique) ainsi que celui du microscope à force atomique (AFM) par Binnig et al <sup>[101]</sup> apportèrent les progrès technologiques nécessaires à la réalisation du premier SNOM (Scanning Near-field Optical Microscopy) en 1984 par l'équipe de Dieter Pohl <sup>[102]</sup>, appelé stéthoscope optique ("optical stethoscop") en référence au stéthoscope utilisé en médecine. En effet, dans le cas du stéthoscope, les ondes sonores ont une longueur d'onde de l'ordre du mètre, l'auscultation par le médecin est donc réalisée en champ proche car le stéthoscope est situé à une distance sub-longueur d'onde du patient. Dans le cas du microscope optique de champ proche, une ouverture sub-longueur d'onde dans un écran opaque est utilisée comme source, placée à une distance sub-longueur d'onde de la surface de l'échantillon : c'est le **mode à ouverture en illumination**. La lumière transmise est collectée en champ lointain.

L'ouverture nanométrique dans un plan fût ensuite remplacée par une pyramide ou un cône métallisé <sup>[103]</sup> (pour confiner le champ électromagnétique) qui présentait à son extrémité une ouverture de diamètre inférieur à la longueur d'onde. Cette nouvelle sonde autorisa l'observation d'échantillons avec un faible contraste de topographie . Elle permit également de travailler dans une configuration différente où l'échantillon était illuminé en champ lointain et la lumière était couplée dans le guide d'onde placé à une distance bien inférieure à  $\lambda$  de la surface de l'échantillon <sup>[104]</sup> : c'est le **mode à ouverture en collection**.

- 
- [98] E. H. Synge. A suggested method for extending the microscopic resolution into the ultramicroscopic region. *Phil. Mag.*, 6 :356, 1928.
- [99] E. A. Ash and G. Nicholls. Super-resolution aperture scanning microscope. *Nature*, 237(5357) :510–512, 1972.
- [100] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 49(1) :57, 1982.
- [101] G. Binnig, C.F. Quate, and C.H. Gerber. Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 56(9) :930–933, 1986.
- [102] D.W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz. Optical stethoscopy : image recording with resolution  $\lambda/20$ . *Appl. Phys. Lett.*, 44 :651–653, 1984.
- [103] E. Betzig, A. Lewis, A. Harootunian, M. Isaacson, and E. Kratschmer. Near-field scanning optical microscopy (nsom), development and biophysical applications. *Biophysical Journal*, 49 :269–279, 1986.
- [104] E. Betzig, M. Isaacson, and A. Lewis. Collection mode near-field scanning optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 51 :2088, 1987.

Les micropipettes furent ensuite remplacées par des fibres optiques monomodes, étirées et métallisées à leur extrémité, qui ont encore amélioré la résolution spatiale [105]. Elles sont encore aujourd'hui les sondes les plus couramment utilisées et équipent les SNOM commerciaux (VEECO, AlphaSNOM par exemple). La microscopie optique de champ proche utilisant comme sonde une fibre optique étirée est appelée SNOM à ouverture.

Afin de détecter le champ évanescent, une idée originale fut ensuite proposée par A.C. Boccara [106] en 1988 puis par H.K. Wickramasinghe dans un brevet américain [107] deux ans plus tard. Elle consiste à utiliser comme sonde une pointe métallique, dont l'extrémité possède un rayon de courbure de quelques dizaines de nanomètres. Approchée à quelques nanomètres de la surface de l'échantillon, cette pointe diffuse les ondes évanescentes vers le détecteur placé dans le champ lointain. Cette technique est appelée **SNOM sans ouverture**. Depuis quelques années, elle a fait ses preuves dans divers domaines d'application [108,109,110] et est aujourd'hui largement présente dans les laboratoires de recherche. Même si certaines entreprises tentent de la développer, il n'existe pas encore de SNOM commercial qui utilise une pointe métallique diffusante.

## B Mode à ouverture

### B.1 Présentation

Historiquement, dans le domaine THz, comme nous l'avons vu au cours du chapitre 1, les premières images THz obtenues en champ proche sont issues d'un montage SNOM à ouverture. Un cône métallique creux muni d'une ouverture de  $100\ \mu\text{m}$  à son extrémité permet de focaliser l'impulsion THz sur une zone sub-longueur d'onde. La résolution alors atteinte est de  $100\ \mu\text{m}$ , i.e. fixée par la taille de l'ouverture. Cependant, deux difficultés majeures limitent cette technique :

1. La transmission d'un tel guide d'ondes est en  $P_{inc}^{-4}$ , où  $P_{inc}$  est la puissance THz incidente ; cela limite grandement le signal détecté. C'est un des problèmes classiques de la microscopie optique de champ proche.
2. La taille de l'ouverture n'est pas contrôlable facilement par l'expérimentateur. En effet, pour modifier la taille de l'ouverture, il est nécessaire de changer de cône focalisant. L'adaptation de la taille de la source à un échantillon spécifique est très difficile ici.

---

[105] E. Betzig and R.J. Chichester. Single molecules observed by near-field scanning optical microscopy. *Science*, 262 :1422–1425, 1993.

[106] A.C. Boccara. *Contrat MRT n88 PO 249 France*, 1988.

[107] H.K. Wickramasinghe and C.C. Williams. *U.S. Patent n° 947 034*, 1990.

[108] S. Ducourtieux, V.A. Podolskiy, S. Grésillon, S. Buil, B. Bernini, P. Gadenne, A.C. Boccara, J.-C. Rivoal, W.D. Bragg, K. Banerjee, V.P. Safonov, V.P. Drachev, Z.C. Ying, A.K. Sarychev, and V.M. Shalaev. Near-field optical studies of semicontinuous metal films. *Phys. Rev. B*, 64(16) :165403, 2001.

[109] B. Knoll and F. Keilmann. Near-field probing of vibrational absorption for chemical microscopy. *Nature*, 399 :134–137, 1999.

[110] N. Hayazawa, A. Tarun, Y. Inouye, and S. Kawata. Near-field enhanced raman spectroscopy using side illumination optics. *J. Appl. Phys.*, 92(12) :6983–6986, 2002.

En somme, même si des améliorations concernant le couplage de la lumière entre le guide d'ondes THz et l'échantillon ont lieu, c'est la manière dont les ondes THz sont amenées à travailler en champ proche qui pose problème. C'est pourquoi nous avons développé une nouvelle approche, basée sur une génération d'ondes THz *in situ*, i.e. directement dans le champ proche de l'échantillon, avec un contrôle fin de la taille et de la position de la source locale d'ondes THz. Contrôler la taille de la source afin d'adapter la résolution au type d'échantillon à étudier, avoir la possibilité simple d'avoir une source THz sub-longueur d'onde, et fonctionner sans contact (i.e. cela équivaut souvent à un gain en rapidité) sont autant d'avantages dans notre idée de réalisation d'un microscope THz original.

Remarque : je me suis posé la question de savoir si ces idées là ne pourraient pas être adapté au visible. En bref, il faudrait disposer d'une impulsion laser avec un spectre large plutôt centré dans l'UV (c'est le cas des impulsions attosecondes, fabriquées par cascade non linéaire), et d'un cristal non linéaire permettant de réaliser une rectification optique dans l'UV-X. Dès lors, par rectification optique, si le spectre généré est assez large, des contributions dans le visible doivent pouvoir exister ; et le fait de travailler avec une impulsion incidente de faible longueur d'onde permettrait là aussi d'avoir une source de taille sub-longueur d'onde par rapport au visible et de pouvoir contrôler la taille de cette source. Ceci dit, cette idée semble difficilement exécutable, étant donné la difficulté d'obtenir de telles impulsions dont la génération et la caractérisation sont encore étudiés dans les laboratoires de recherche.

## B.2 Montage expérimental

Il y a eu deux montages expérimentaux différents de par leur système optique de collection. Le premier déjà présenté dans le chapitre 2, est horizontal i.e. l'axe optique est parallèle à la table optique, et le système optique de collection est composé de miroirs paraboliques hors d'axe. Ce montage sera dénommé montage A dans la suite. Le second montage, montage B, présenté sur la figure 3.3, est quant à lui vertical, i.e. l'axe optique des objectifs de microscope est perpendiculaire à la table optique.

Le laser Ti :Sa est introduit dans ce montage puis focalisé dans le cristal non linéaire par un objectif de microscope de grossissement  $\times 10$  et d'ouverture numérique égale à 0,2, avec une distance de travail de 1 *cm*. Les ondes THz sont générées dans le cristal non linéaire par rectification optique et collectées avec un objectif à miroir dit Cassegrain (grossissement égal à 50, ouverture numérique égale à 0,4), constitué de deux miroirs placés en tête à tête dont l'un des deux est troué en son centre. Un miroir métallique oriente le faisceau THz afin de le faire focaliser dans le détecteur qui peut être le bolomètre ou le détecteur HgCdTe. Un balayage en x,y de l'ensemble échantillon-cristal non linéaire permet de reconstruire une image en intensité de la transmission THz de l'échantillon. Le fait de focaliser le laser Ti :Sa de longueur d'onde centrale égale à 800 *nm* permet d'atteindre une taille de source THz voisine de 1  $\mu m$ , ce qui est très sub-longueur d'onde pour le domaine THz. Dans notre système, la grande facilité de contrôle et mise en forme de faisceaux visibles est utilisée pour créer une source THz locale directement dans la zone de champ proche d'un échantillon : d'où

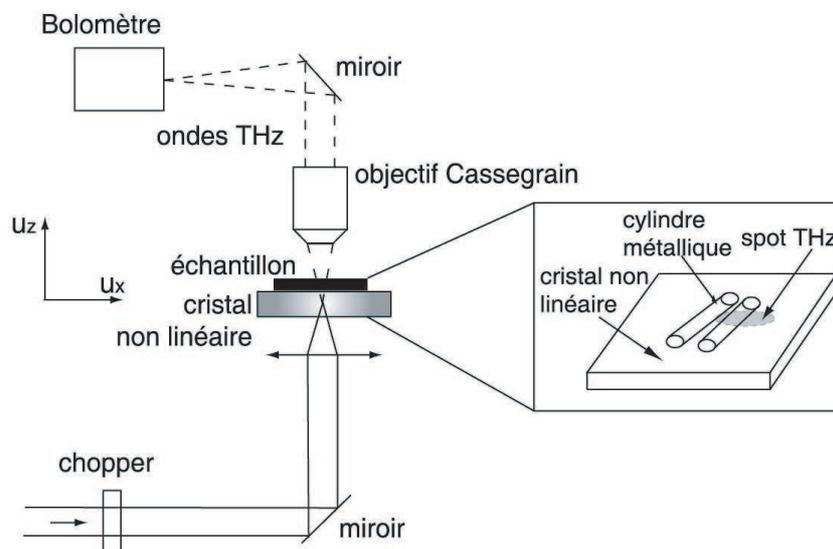


FIG. 3.3: Schéma expérimental du microscope optique de champ proche THz en mode à ouverture en illumination (montage B).

le terme "génération *in situ*". La taille de la source ainsi que la distance source-échantillon sont aisément modifiables via la position de l'objectif de microscope de focalisation, et cela permet une adaptation optimale du montage à chaque échantillon, et aussi au détecteur comme nous allons le montrer dans les résultats suivants.

### B.3 Images-résultats expérimentaux

#### B.3.1 Tiges de tungstène dans le domaine THz

*Dans cette section, les expériences ont été menées sur le montage A et avec le bolomètre uniquement, l'information concerne donc des longueurs d'onde de quelques centaines de microns.*

Avant même de réaliser une image d'un échantillon, il est primordial de vérifier l'homogénéité de génération d'ondes THz quelque soit la position du spot de focalisation dans le cristal non linéaire. Une image référence (voir la figure 3.4.a) a alors été réalisée avec le bolomètre, pour une illumination réalisée avec le laser femtolaser ( $P = 100$  mW,  $\Delta\lambda = 90$  nm).

La figure 3.4.b montre l'image obtenue de deux tiges métalliques de tungstène déposées sur le cristal. Il faut savoir que dans le domaine THz les métaux sont absorbants du THz, en effet, même pour un mauvais métal, i.e. ayant une fréquence plasma petite (par rapport aux fréquences visibles), les ondes THz sont absorbées ou réfléchies, étant donné que l'on se situe dans un cadre où la fréquence d'excitation est inférieure à la fréquence plasma du métal. Physiquement, on peut le comprendre en considérant qu'un métal est une mer d'électrons libres, se comportant comme des oscillateurs

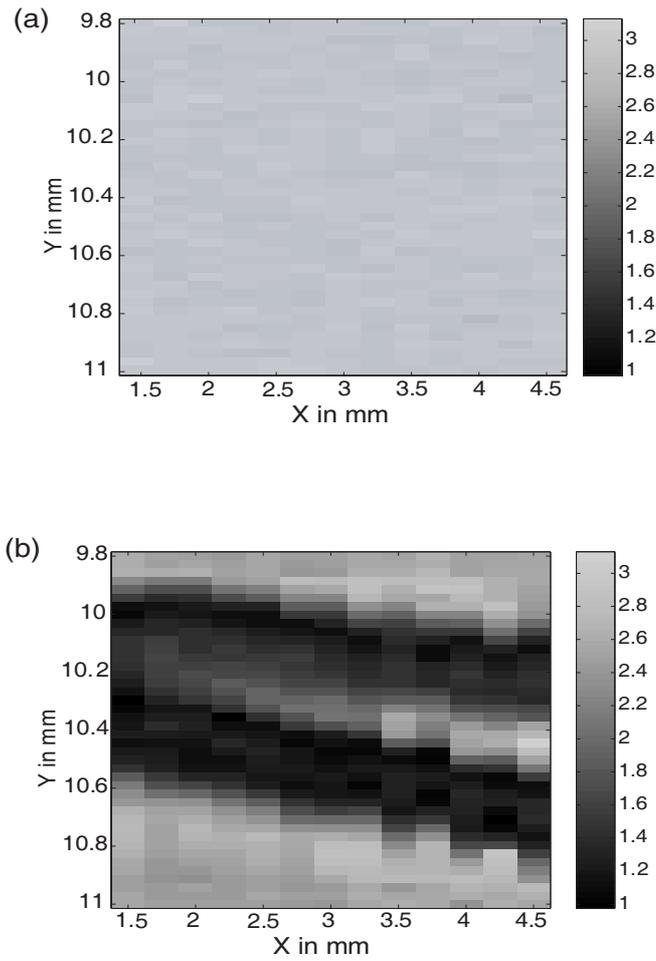


FIG. 3.4: (a) Image référence du cristal de ZnTe d'épaisseur  $e=500 \mu\text{m}$ . (b) Image de deux tiges de tungstène de diamètre  $125 \mu\text{m}$  posées sur le cristal de ZnTe.

dont les fréquences de coupure sont supérieures à la fréquence d'excitation.

Plusieurs points peuvent être discutés à partir de ces deux images :

- La pertinence du contraste est démontrée ici par comparaison entre l'image référence et l'image des deux tiges. On parlera dans la suite de contraste négatif pour une tige métallique.
- Le rapport signal à bruit sur les deux images est voisin de 10. La valeur est plutôt faible, due à la faible ouverture numérique du miroir parabolique et à des réglages optiques délicats à optimiser. L'abondance de degrés de liberté ne nous a pas permis d'établir un protocole de réglage reproductible et permettant de maximiser le signal.
- La résolution sur cette image est évaluée par un critère de Rayleigh et donne une valeur proche de  $80 \mu m$ , ce qui correspond à  $\frac{\lambda}{4}$ , pour une longueur d'onde moyenne de  $250 \mu m$ .
- La forme du signal obtenu pour une seule tige (voir figure 3.5) présente des rebonds inattendus. Un modèle a été développé pour expliquer cet effet et est présenté dans le chapitre 4.

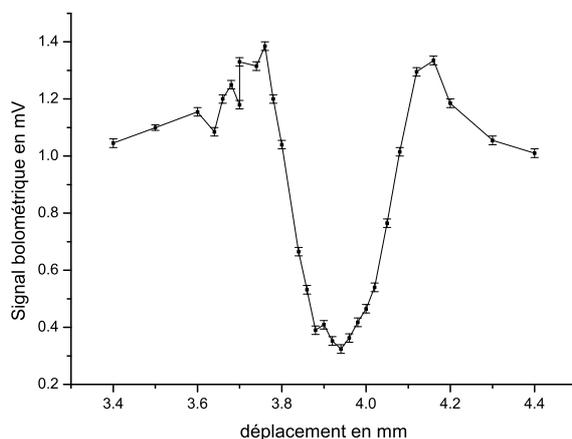


FIG. 3.5: Coupe transversale de l'image THz d'une tige de tungstène de diamètre  $125 \mu m$

### B.3.2 Métaux et isolants dans le domaine THz

*Les sections suivantes concernent des résultats obtenus sur le montage B.*

Les résultats précédents sont encourageants et ils nous ont poussés à développer un microscope optique de meilleure facture notamment en terme de qualité de translation et de précisions de réglages. La figure 3.6 montre une photo du microscope construit.

Afin de valider le fonctionnement de ce microscope, plusieurs images ont été effectuées. Des images de tiges métalliques de tungstène taillées en pointe ont été réalisées, ainsi que des images de billes de silice et d'échantillons biologiques humains (cheveu et sourcil). L'objet de cette partie est de

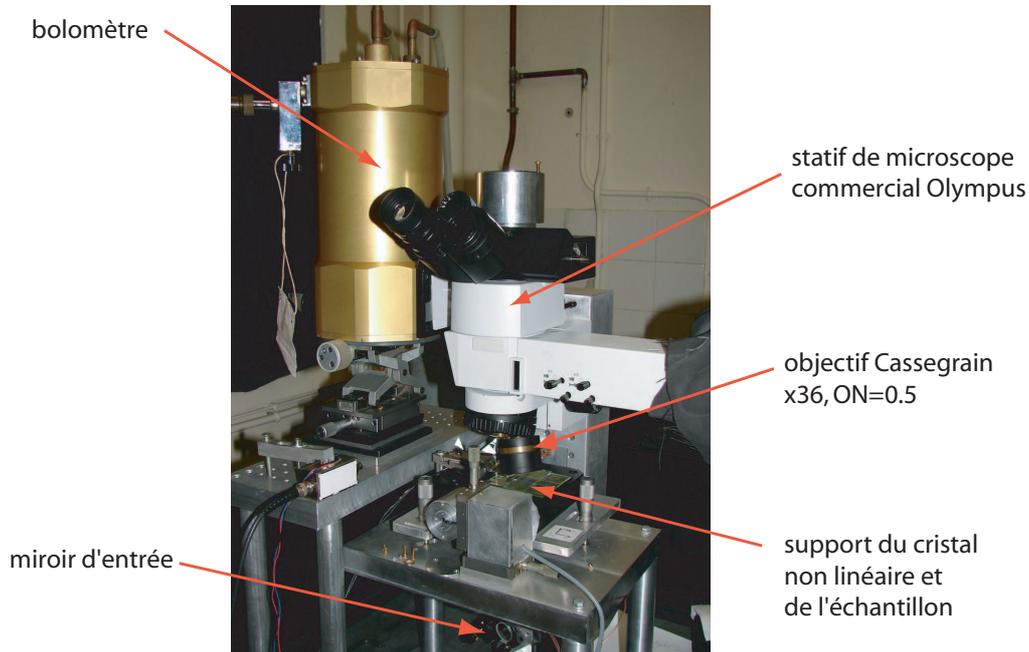


FIG. 3.6: Photographie du microscope optique de champ proche fonctionnant dans le domaine THz.

présenter ces résultats.

La figure 3.7 montre une image THz d'une bille de silice poreuse de diamètre égal à  $30 \mu m$ .

Plusieurs constatations peuvent être faites :

- Le contraste est ici positif, contrairement aux images précédentes de tiges métalliques. Ce changement peut être dû soit à l'objectif Cassegrain qui a remplacé les miroirs paraboliques, soit à la nature de l'échantillon. Pour trancher l'indétermination, nous avons réalisé une image d'une tige métallique taillée en pointe à son extrémité, placée parallèlement à la polarisation incidente. La figure 3.8 montre l'image obtenue.

Sur cette image, le contraste de la tige métallique est négatif contrairement aux images précédentes de diélectriques. A la vue de ce résultat, il semble donc naturel de conclure que notre microscope est sensible à la nature de l'échantillon. Toutefois, le rôle de l'objectif Cassegrain ne doit pas être oublié pour autant, dans la mesure où géométriquement le support du miroir sphérique de l'objectif Cassegrain qui se situe au niveau de l'axe optique, cache une partie non négligeable du signal émis par le cristal non linéaire. Le demi-angle d'ouverture de l'objectif est alors compris entre  $15^\circ$  et  $30^\circ$ .

- La largeur à mi-hauteur de la figure de diffraction de l'image vaut  $30 \mu m$  et est parfaitement compatible avec la taille réelle de l'objet. Cela nous permet de conclure via le critère de Houston, que l'image est bien une image de champ proche de la bille de silice : la résolution accessible de l'image est  $30 \mu m$ .

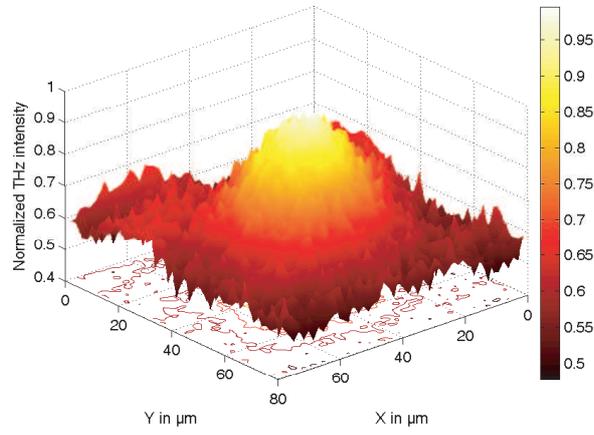


FIG. 3.7: Image THz d'une bille de silice de 30  $\mu\text{m}$  de diamètre.

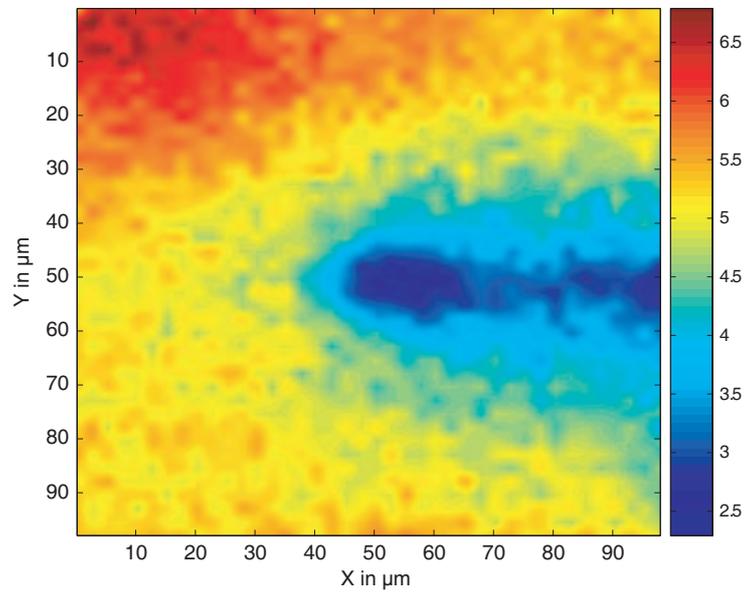


FIG. 3.8: Image THz de l'extrémité d'une tige de tungstène.

- Le point précédent prouve que l'image est de champ proche, la résolution est donc fixée par la taille de la source locale et la distance source-échantillon. La valeur trouvée de  $30 \mu\text{m}$  montre alors que la taille de la source locale est inférieure ou égale à cette valeur. Inférieure ou égale, car elle pourrait très bien être inférieure mais la distance source-échantillon peut augmenter la taille de la source vue par l'échantillon. Des expériences parallèles dites de couteau ont montré que la taille de la source était en fait très voisine de  $30 \mu\text{m}$  (voir figure 3.9), montrant par la même occasion que le signal collecté provient bien de la zone du cristal la plus proche de l'échantillon.

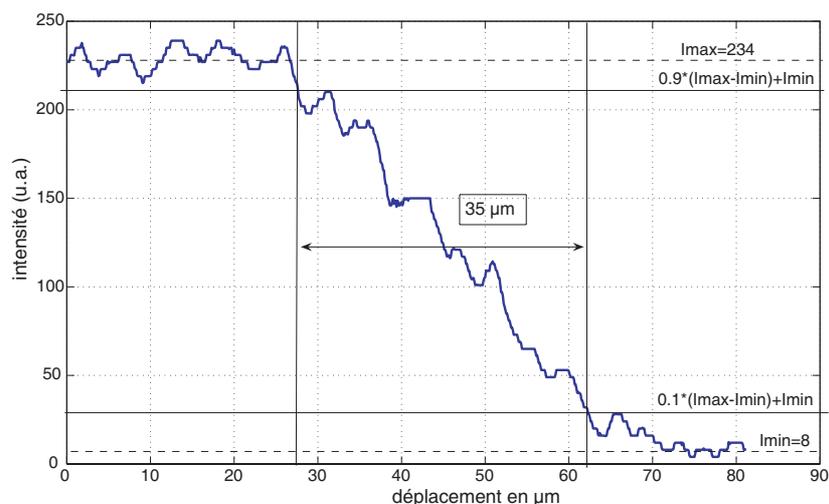


FIG. 3.9: Profil issu d'une image du cristal nu balayé jusqu'à une de ses extrémités lors d'une expérience dite de couteau.

- Dans certaines images, suivant la qualité des réglages optiques, des détails plus fins que  $30 \mu\text{m}$  ont été mis en évidence. En particulier sur une bille présentant un trou en son sein (voir la figure 3.10), l'image THz correspondante montre la présence d'un contraste négatif d'extension inférieure à  $10 \mu\text{m}$ .

Le contraste négatif ci-dessus n'est pas un artefact, puisque l'image a été reproduite de manière identique à deux reprises. Néanmoins, l'explication de ce "trou de signal" reste encore hasardeuse, mais fait l'objet d'une partie du chapitre 4, dans lequel un modèle de diffusion de Mie a été développé afin d'expliquer quantitativement le contraste obtenu sur les images.

- **POINT TRES IMPORTANT SUR LES REGLAGES OPTIQUES.** La reproductibilité des images repose essentiellement sur la capacité de l'expérimentateur à trouver des réglages optimaux. La procédure de réglage est présentée en complément de ce chapitre. Il est toutefois important de dire que dans ce montage il existe un compromis à trouver. Si l'on veut la meilleure résolution possible, il faut focaliser le spot incident sur des distances sub-longueur d'onde (voir section B), c'est-à-dire se mettre dans un régime pour lequel la puissance rayonnée diminue à mesure que le spot est plus petit. Il faut donc trouver un compromis entre rapport signal à bruit et résolution.

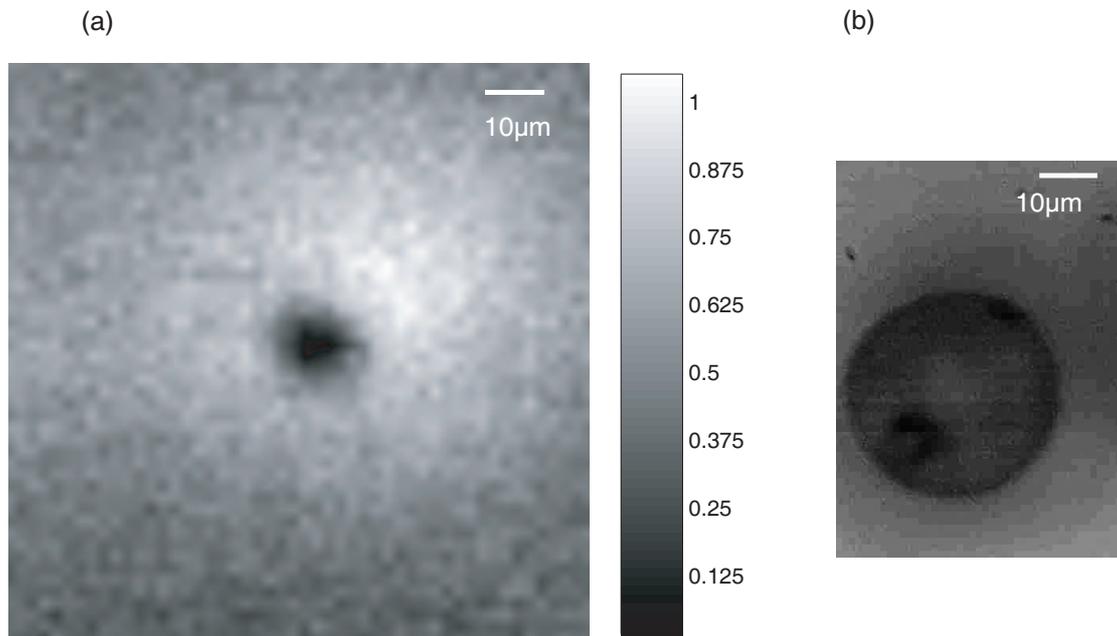


FIG. 3.10: (a) Image THz d'une bille de silice de diamètre  $35 \mu m$ . (b) Image visible de la même bille de silice, enregistrée par une webcam

L'enjeu du réglage du montage est bien de réaliser le meilleur compromis, et là encore le nombre important de degrés de liberté ne permet pas forcément un contrôle parfait de l'optimum.

- C'est la taille de la source qui limite la résolution des images. Alors pourquoi ne pas focaliser plus la source THz ? En fait, dès que nous passons dans un domaine de focalisation sub-longueur d'onde pour le domaine THz, l'efficacité de génération diminue (voir chapitre 2). Pour améliorer ce point, il faudrait utiliser un cristal plus fin typiquement d'épaisseur voisine de quelques dizaines de  $\mu m$  [87]. Cette orientation pourrait nous faire gagner un facteur 10 dans la résolution à condition bien sûr d'être capable de collecter un signal supérieur au bruit. Cette extension nécessite du travail pour optimiser le niveau de signal collecté mais mérite d'être tenté afin d'améliorer la résolution des images THz.

### B.3.3 Billes de silice dans le domaine IR

Le même travail que précédemment a été mené aussi dans l'IR, avec le détecteur HgCdTe. La figure 3.11 montre une image THz d'une bille de silice poreuse de diamètre égal à  $10 \mu m$ , par rapport à une longueur d'onde moyenne de  $10 \mu m$ .

Plusieurs constatations peuvent être faites ici aussi :

---

[87] G. L. Dakovski, B. Kubera, and J. Shan. Localized terahertz generation via optical rectification in znte. *JOSA B*, 22(8) :1667–1670, 2005.

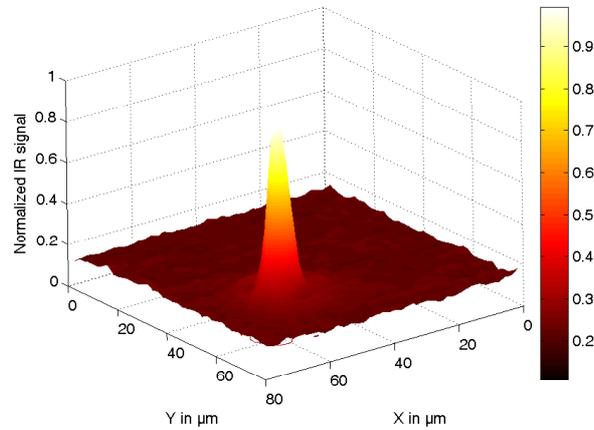


FIG. 3.11: Image IR d'une bille de silice de  $10 \mu m$  de diamètre.

- Le contraste est ici aussi positif, et le rapport du signal maximum sur le signal moyen est voisin de 10 et est clairement supérieur au rapport obtenu dans le domaine THz. Le rapport taille de bille sur longueur d'onde moyenne étant différent, il peut expliquer la différence de comportement entre les résultats THz et IR. Mais la variation de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde peut aussi expliquer la différence de comportement des images. Nous en discuterons plus largement dans le chapitre 4.
- La largeur à mi-hauteur est voisine de  $10 \mu m$  ce qui est tout à fait compatible avec la taille réelle de la bille. Cela nous permet ici aussi de conclure que la taille de la source IR est inférieure ou égale à la taille de la bille. En revanche, il est difficile d'affirmer que l'image obtenue recèle des détails de champ proche, puisque la longueur d'onde moyenne se situe autour de  $10 \mu m$ .
- Comme pour le domaine THz, il serait intéressant d'utiliser un cristal plus fin afin de pouvoir mieux focaliser et obtenir ainsi une meilleure résolution.

### B.3.4 échantillons biologiques : sourcils humains dans le domaine THz

Afin de montrer les capacités de notre instrument, nous avons réalisé des images d'échantillons biologiques à savoir des sourcils humains. Le contraste de ces échantillons est positif comme pour les billes de silice et la résolution obtenue reste voisine de  $30 \mu m$ . La figure 3.12 résume cette partie de travail.

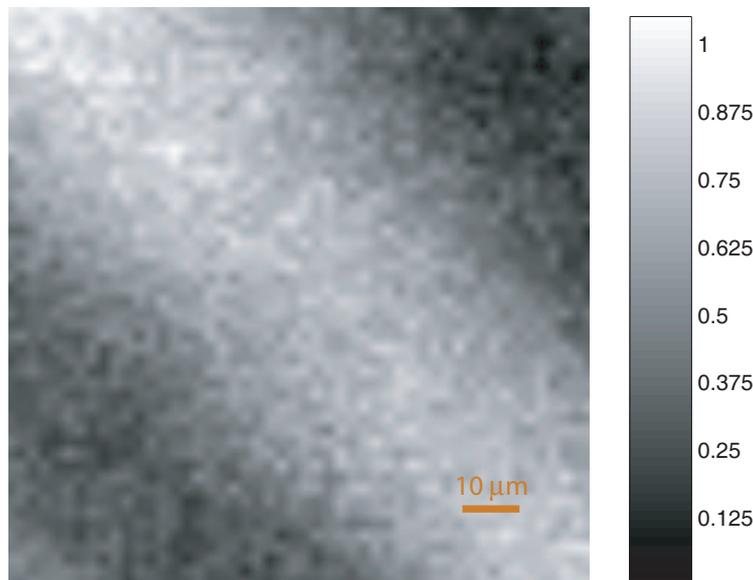


FIG. 3.12: Image THz d'un sourcil humain.

#### B.4 Conclusions

Les résultats précédents semblent ouvrir une voie prometteuse d'application qu'est la biologie pour notre instrument. Pourtant avant de s'attacher à trouver une application à notre instrument, il est important d'en faire le "bilan de compétences".

Le microscope est sans contact, non invasif, et il fonctionne à la fois dans le domaine THz et dans le domaine IR avec tout de même des performances légèrement différentes. Ses deux principaux atouts sont un contraste novateur et une résolution micrométrique. A ce stade, il y a trois orientations que nous pouvons donner à ce travail de recherche.

- La première consiste à faire de la physique de l'instrument, i.e. continuer à étudier des échantillons de principe afin de bien comprendre comment l'instrument fonctionne, quelle est l'origine du contraste et quel est le meilleur compromis signal/résolution ?
- La seconde consiste à trouver une ou plusieurs applications pour lesquelles l'utilisation de notre microscope se révélerait pertinente. A ce titre, l'orientation vers la biologie pourrait s'avérer prometteuse dans la mesure où cela permettrait de voir des objets biologiques opaques dans le visible. Que ce soit biologie végétale ou animale, il y a là un travail évident et conséquent de bibliographie et de recherche d'applications. Les équipes de recherche les plus avancées dans ce domaine s'orientent vers des imageries de surface notamment de la peau. Des entreprises cosmétiques ou pharmaceutiques pourraient alors être intéressées par l'utilisation de notre instrument. Dans tous les cas, la recherche d'une application doit se faire dans l'optique de voir ce qui est caché dans le visible et révélé dans le domaine THz.

- La troisième consiste à améliorer d’ores et déjà l’instrument en le couplant à un spectroscope THz. Les quelques entreprises qui commercialisent des imageurs THz ne s’y sont pas trompées, elles ont toutes développé des instruments couplant imagerie et spectroscopie THz. Si l’on décide de choisir cette orientation pour notre instrument, il semble nécessaire de changer la manière de détecter les ondes THz, et de développer par exemple une détection électro-optique, travail qui a déjà été initié mais qui n’a pas encore abouti à l’heure actuelle (Avril 2006). Ce couplage spectroscopie-imagerie ouvrira alors un grand nombre d’applications à explorer.

## C Mode collection

A partir du microscope optique THz de champ proche développé précédemment, nous avons voulu améliorer davantage la résolution, en implémentant le mode collection à ce microscope. Pratiquement cela a consisté à collecter l’information de champ proche à l’aide d’une pointe de tungstène (dont le rayon de courbure est inférieure à  $1 \mu m$ ). De cette manière, la résolution n’est plus fixée par la taille de la source mais la taille de la pointe ; on a alors accès à un microscope IR/THz de champ ultra-proche.

### C.1 Présentation

Dans la section A.2 du chapitre 3, nous avons présenté ce qu’était le mode collection de la microscopie optique de champ proche. Dans le domaine THz comme dans le domaine visible, le challenge est ici d’avoir suffisamment de signal THz émis en champ lointain par l’extrémité de la pointe. Essayons de mettre quelques chiffres sur le signal potentiellement diffusé par la pointe.

Tout d’abord, il faut savoir quelle est la taille du waist du faisceau incident, i.e. la taille de la source THz. Plaçons nous dans la situation a priori la plus favorable, celle pour laquelle l’efficacité d’émission est maximale, c’est à dire pour laquelle la taille du waist est voisine de la longueur d’onde moyenne. Cette hypothèse a priori pourra être remise en cause à condition d’étudier quantitativement la variation du signal THz émis en fonction de la taille du waist, cela permettrait de se placer dans les conditions idéales. Cependant si nous nous appuyons sur les résultats expérimentaux de Zhang et. al. [86], la variation du signal émis est en  $r^2$ , or si nous supposons que l’intensité diffusée par la pointe est proportionnelle au rapport de la surface de l’extrémité de la pointe sur la surface du waist, alors quelque que soit la focalisation, l’intensité émise est la même et ne dépend que de la surface de la pointe !

$$I_{diff} = \frac{S_{pointe}}{S_{waist}} I_{ref} \propto \frac{S_{pointe}}{\pi r^2} \cdot r^2 \quad (3.2)$$

Ce modèle repose sur une hypothèse forte, à savoir que la section efficace de diffusion par la pointe est égale à sa surface géométrique ; ce qui n’est certainement pas le cas, en particulier à cause de

---

[86] J. Z. Xu and X. C. Zhang. Optical rectification in an area with a diameter comparable to or smaller than the center wavelength of terahertz radiation. *Opt. Lett.*, 27(12) :1067–1069, 2002.

l'effet de pointe qui augmente la valeur du champ électrique aux alentours de la pointe et augmente donc le signal diffusé.

A partir de ce modèle géométrique, on peut néanmoins estimer le niveau de signal diffusé. En partant d'un rayon de courbure de l'extrémité de la pointe voisin de  $1 \mu m$ , et d'un waist de  $100 \mu m$  (on se place dans une situation où le rapport signal à bruit est maximal), l'intensité diffusée ne représente que  $\frac{1}{10^8}$ . Ce rapport est bien trop faible par rapport à notre rapport signal à bruit obtenu avec le bolomètre. Il faut donc envisager une autre technique de champ proche.

En revanche dans ce calcul, nous n'avons pas tenu compte de la géométrie en transmission du mode collection que nous voulons mettre en oeuvre. Dans cette géométrie, en champ lointain il y a une interférence entre le champ référence et le champ diffusé, qui donne au final un niveau d'intensité diffusée égale au millième de l'intensité référence. Cette valeur se rapproche très nettement de la valeur de notre rapport signal à bruit voisin de quelques centaines. En s'appuyant sur les effets de pointe, et les effets de résonance au niveau de la pointe et du levier qui peuvent avoir lieu dans le domaine THz <sup>[73]</sup>, on peut espérer collecter suffisamment de signal pour réaliser des images THz de champ proche avec des résolutions inférieures à  $1 \mu m$ , ce qui serait une performance inédite à ce jour.

## C.2 Description du montage

Le montage expérimental réalisé repose sur le précédent à ceci près que la partie collection et détection est un peu différente dans la mesure où le microscope en mode collection doit être couplé à un AFM (atomic force microscopy) pour pouvoir fonctionner. La figure 3.13 résume nos choix expérimentaux.

La partie AFM est constituée d'un ensemble de platines de translation x,y à base de câbles piézoélectriques très sensibles (résolution de  $2 nm$ ), d'un support de pointe monté sur une câle piézoélectrique (résolution de  $2 nm$ ), d'une pointe collée sur le support, et d'un ensemble diode laser-photodiode permettant de mesurer la position de la pointe. Ce montage expérimental a été très largement décrit dans la thèse de Samuel Grésillon et de Sébastien Ducourtieux<sup>[111,112]</sup>.

La partie collection et détection du champ proche nous a posé un problème supplémentaire, qui était absent dans la réalisation d'un tel microscope dans le visible. Dans le visible comme dans le domaine THz, la modulation de la pointe se fait à une fréquence voisine de sa fréquence de résonance (entre 3 et 6 kHz selon la taille du levier), mais dans le visible on dispose de détecteurs permettant, grâce à une détection synchrone à cette fréquence, de mesurer le signal de champ proche. Dans le domaine THz, l'utilisation du bolomètre rend impossible ou du moins difficile cette technique de

---

[73] H.-T. Chen, S. Kraatz, G.C. Cho, and R. Kersting. Identification of a resonant imaging process in apertureless near-field microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :267401–267403, Décembre 2004.

[111] S. Grésillon. *Microscopie en champ proche par transmission avec une sonde métallique : exaltation de champ et spectroscopie de nanoparticules*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Juillet 1999.

[112] S. Ducourtieux. *Spectroscopie de nanoparticules isolées : étude par microscopie optique en champ proche*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2001.

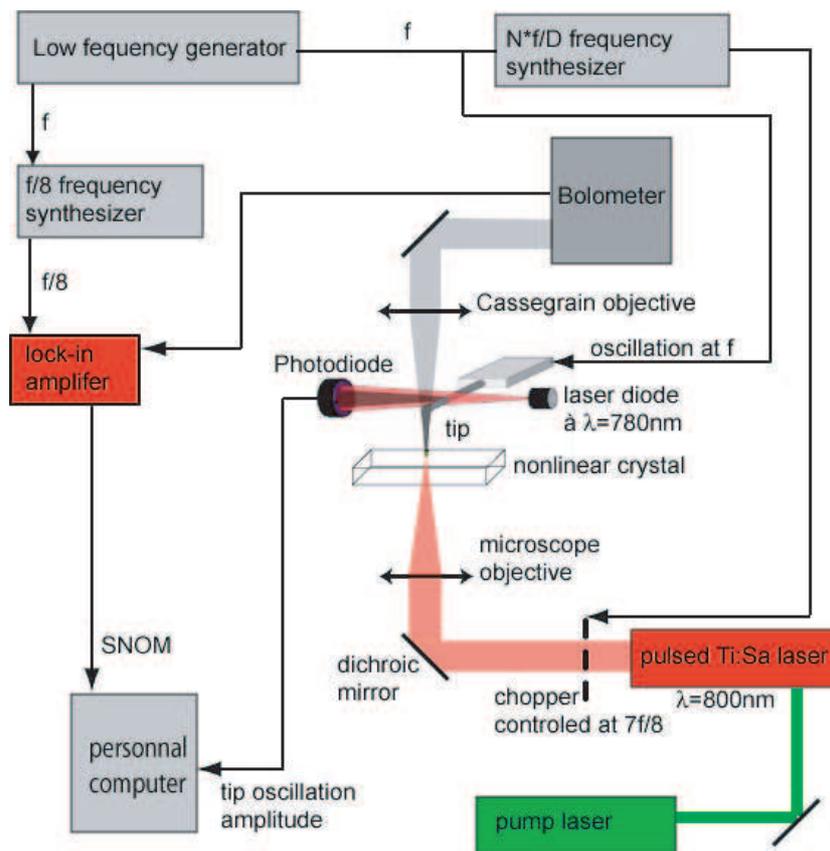


FIG. 3.13: Schéma expérimental du microscope optique de champ ultra-proche.

détection car la fréquence de coupure du bolomètre est de  $300\text{ Hz}$ , soit au moins dix fois moins que la fréquence à laquelle on voudrait faire la détection. Fonctionner de cette manière amènerait à perdre au moins un facteur 10 dans le signal collecté, car le bolomètre se comporte comme un filtre passe bas du premier ordre (voir section A.3). Comme le signal de champ proche est déjà très faible, il faut trouver une alternative à ce schéma de détection.

La solution de ce problème est venue d'une détection par double modulation, comme le montre la figure 3.13. La position de la pointe est modulé grâce à une cale piézoélectrique à une fréquence  $f$ , légèrement inférieure à la fréquence de résonance de la pointe. Le faisceau laser impulsionnel pompe incident est lui aussi modulé par un chopper mais à la fréquence  $\frac{7f}{8}$ . Ainsi, l'intensité référence est modulée à la fréquence  $f$  et l'intensité diffusée est modulée à la fréquence  $f$  et  $\frac{7f}{8}$ . La détection se fait alors à la fréquence différence de  $\frac{f}{8}$ . Le produit des deux cosinus induits par les deux modulations permet d'avoir un terme oscillant à la fréquence  $\frac{f}{8}$ , fréquence qui est inférieure à  $300\text{ Hz}$ , la fréquence de coupure du bolomètre.

### C.3 Résultats et difficultés

Avant de réaliser l'image THz d'échantillons, nous avons mené une étude préliminaire visant à étudier la nature du signal obtenu et nous nous sommes donc concentrés à faire des images du cristal de ZnTe nu. Cela nous a permis de mettre en place un protocole de réglage (voir complément de ce chapitre), et de mettre en évidence les difficultés majeures de ce genre d'expériences.

Rappelons que l'enjeu majeur est d'obtenir un signal THz de champ proche. Il y a donc deux points à vérifier : que le signal détecté par le bolomètre soit (1) de nature spectrale THz et (2) de champ proche. La mise en place de la double modulation nous assure que si un signal est détecté par le bolomètre, il est nécessairement de champ proche. En revanche, des photons visibles peuvent venir parasiter le signal de champ proche THz. C'est ce point précis qui a posé beaucoup de problèmes. En effet, les premiers résultats présentés ont été obtenus avec le bolomètre en position filtre 2 (bande passante comprise entre  $3\text{ THz}$  et  $21,5\text{ THz}$ ) mais sans filtre supplémentaire. Même si les résultats suivants (voir fig.3.14) sont très encourageants, il y a une incertitude sur la proportion de photons visibles et de photons THz.

Toutefois, cette figure permet de montrer la reproductibilité des mesures effectuées, puisque sur les trois images on retrouve aux mêmes endroits des veines présentant une chute de signal. Ce contraste provient d'une information optique de volume, comme le montre l'absence de contraste de l'image topographique de la même zone du cristal (voir figure 3.15).

La largeur de ces veines sont d'une centaine de nanomètres. Cette résolution sub-longueur d'onde (à la fois pour le THz et pour le visible) assure bien que les images obtenues sont issues d'une information champ proche. Il est à noter aussi que le rapport signal à bruit est ici très faible, et en tout cas inférieur à 10 (avec un cristal de ZnTe d'épaisseur  $500\text{ }\mu\text{m}$ ) ; cela va compliquer la recherche des filtres supplémentaires adéquats, permettant de n'isoler que la fraction THz du signal.

Une épaisseur de  $1\text{ mm}$  de polyéthylène blanc et une épaisseur de  $400\text{ }\mu\text{m}$  de polyéthylène noir nous ont permis de filtrer tous les photons visibles. Pour s'en convaincre plusieurs images à différentes

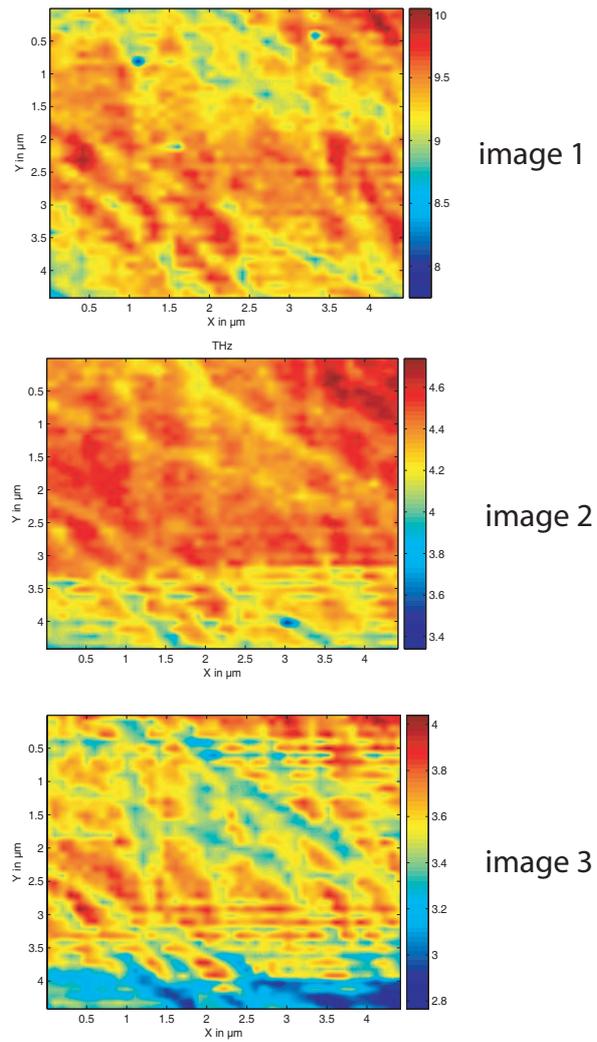


FIG. 3.14: Comparaison d'images champ proche THz obtenues successivement sur la même zone du cristal.

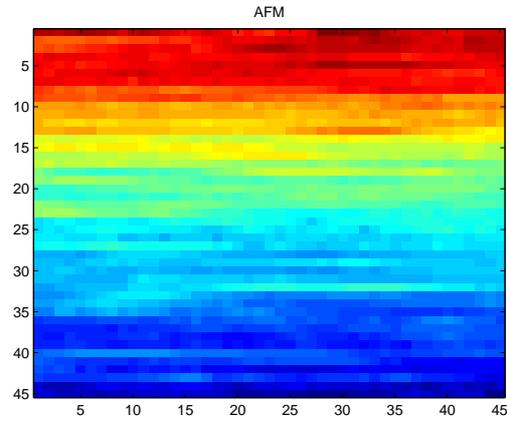


FIG. 3.15: Image topographique correspondant aux images optiques présentées plus haut. Il existe une dérive thermique responsable de la variation du niveau moyen local de l'image topographique et qui ne correspond pas à un contraste topographique réel.

puissances incidents ont été enregistrées, et l'évolution du signal moyen en fonction du carré de la puissance a été représentée sur la figure 3.16.

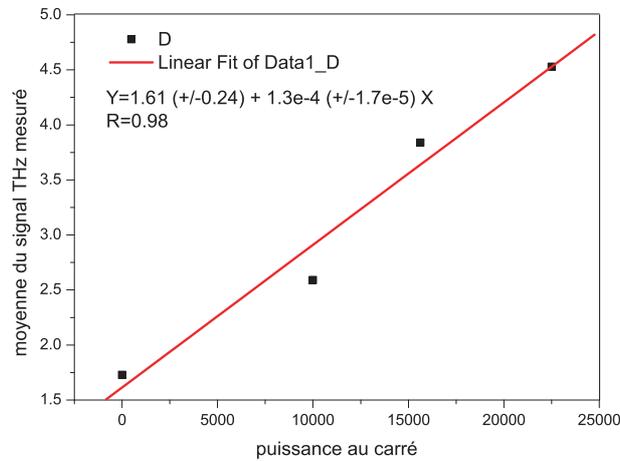


FIG. 3.16: Evolution de la valeur moyenne des pixels des images en fonction de la puissance incidente au carré.

La variation linéaire de ce signal en fonction du carré de la puissance incidente montre bien que le signal est dénué de photons visibles incidents. La valeur du signal moyen reste assez faible et est très peu supérieure au niveau de bruit ambiant. C'est vraiment cette très faible valeur de rapport signal à bruit qui limite encore notre technique. Travailler sur des cristaux de ZnTe plus épais permettrait d'augmenter l'intensité THz référence et par là même grâce à notre technique de détection homodyne de faire mieux ressortir le signal de champ proche THz.

En présence des filtres additionnels, nous avons recherché une zone sur le cristal qui présentait un contraste, un petit excroissement du cristal d'une taille voisine de  $1 \mu m$ . Les images sont présentées sur la figure 3.17.

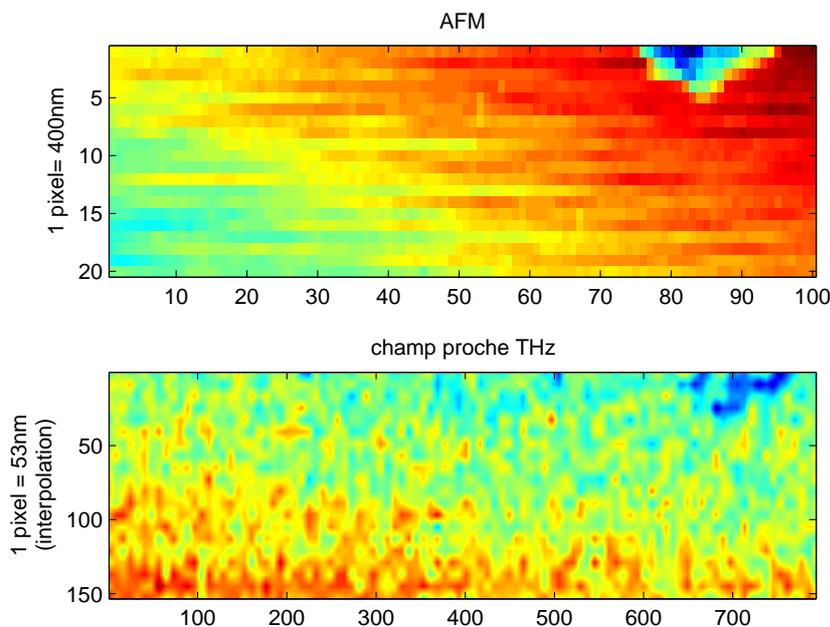


FIG. 3.17: (a) image AFM de la surface du cristal. (b) image champ proche THz de cette même surface

Le contraste observé en haut à droite des images est commun à l'image SNOM et l'image AFM et permet d'estimer une résolution au maximum égale à  $1 \mu m$ . Il reste désormais à déposer un échantillon sur le cristal et d'en réaliser une image AFM et une image champ proche THz simultanément. C'est que nous avons tenté avec des billes d'or déposées sur le cristal de ZnTe, mais les résultats obtenus n'ont pas été fructueux. Toutefois, nous pensons qu'il est important d'en parler car ils permettent de mettre en évidence les difficultés de ces manipulations, et de souligner les challenges futurs. Les billes d'or sont de diamètre moyen  $200 \text{ nm}$ , et se présentent sous la forme d'une solution aqueuse colloïdale. Elles sont déposées simplement sur le cristal non linéaire en attendant l'évaporation de l'eau dans une petite goutte déposée sur la surface du cristal de ZnTe. L'inconvénient de cette méthode est que la pointe a tendance en mode tapping à attraper les billes et à les balayer de la surface, comme le montre la figure 3.18. Il faudrait mieux déposer les billes d'or dans un polymère collant ces dernières fermement à la surface du cristal, mais faute de temps nous n'avons pas pu réaliser cette amélioration.

De plus, le réglage de l'AFM a posé de nombreux problèmes, notamment la recherche d'une bonne

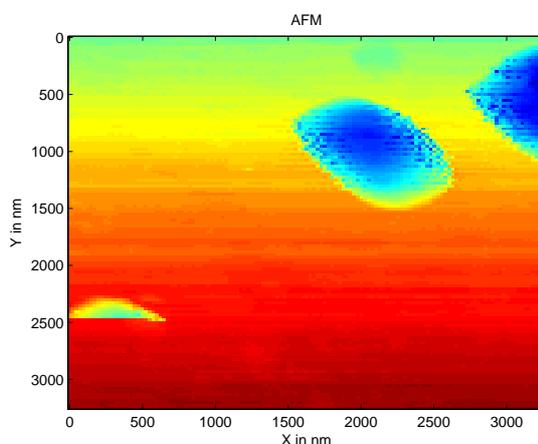


FIG. 3.18: Image AFM de billes d'or de diamètre moyen 200 nm.

stabilité de l'oscillation de la pointe a posé problème. Classiquement, le microscope est enfermé dans une cage mi-métal mi-plastique l'isolant de tout bruit acoustique, et des mouvements d'air. Mais comme le bolomètre est trop imposant pour tenir dans la cage, nous avons été obligé de la retirer, rendant l'AFM sensible à tous les bruits extérieurs (vibrationnels, atmosphériques et thermiques). Il a été dès lors impossible d'obtenir simultanément une image AFM stable et une image champ proche THz montrant un contraste dû aux billes. De plus la diode laser permettant de mesurer la position de la pointe et donc de contrôler son oscillation est tombée en panne en milieu de manipulation. Bref, pour y arriver, il est nécessaire de fabriquer une nouvelle cage plus grande et d'avoir du matériel de bonne qualité.

## D Conclusion de ce chapitre

Le but initial de ce travail de thèse était de réaliser un microscope optique de champ proche dans le domaine THz en deux temps. Le premier consistait à atteindre une résolution champ proche à partir d'un instrument fonctionnant en mode illumination, avec le concept original de source locale. Dans un deuxième temps, le travail consistait à atteindre une résolution ultra-champ proche en implémentant le mode collection avec sa pointe métallique au microscope précédent. La réalisation pratique de ces deux étapes clés a pu être réalisée de manière convaincante et originale durant ce travail de thèse.

Toutefois, de multiples points à améliorer ou étudier de manière plus exhaustive ont aussi été identifiés. Notamment, une optimisation du signal généré est nécessaire pour obtenir des images bien contrastées et de résolution sub-micronique. Le choix de la rectification optique comme mécanisme de source de rayonnement IR/THz s'est finalement révélé très efficace dans le mode illumination, mais a montré une certaine inadéquation dans le mode collection, dans la mesure où la rectification

optique met à disposition de nombreuses composantes spectrales de faible intensité, et que l'on ne cherche pas à développer une spectroscopie mais plutôt une optimisation du rapport signal à bruit. A ce titre, il me semble que le travail doit continuer dans ce mode collection dans deux directions. Dans l'état actuel du montage, l'ajout d'une cage de protection en plexiglas autour du microscope augmenterait notablement les chances d'obtenir des images de billes d'or de 200 *nm* résolues et contrastées dans le mode AFM et le mode optique. Cela constitue la première direction de travail pour ce domaine. Le deuxième point, plus prospectif, consiste à mettre au point une technique d'illumination plus performante et plus adaptée en terme de rapport signal à bruit. Une collaboration avec l'équipe scientifique du professeur Knapp de Montpellier est en cours pour l'utilisation d'un carcinotron comme source d'ondes THz.

Les deux instruments mis au point dans ce travail de thèse doivent aussi pouvoir être utilisés pour des applications ciblées. Plusieurs voies peuvent être envisagées :

- dans le domaine des semiconducteurs, la possibilité de visualiser une distribution spatiale surfacique de charges libres, comme l'a démontré récemment l'équipe de R. Kersting à Munich <sup>[113]</sup>.
- en biologie, une imagerie d'échantillons fins comme des coupes histologiques est clairement envisageable. Techniquement, il sera nécessaire de remplacer les lames et lamelles de verre par du quartz, mais ce matériel existe commercialement. Toutefois, pour ce champ d'application, l'ajout d'une spectroscopie THz serait un atout indiscutable et quasi nécessaire.
- le contrôle qualité ou sécurité de produits manufacturés avaient été envisagés dès l'apparition de l'imagerie THz, mais avaient été rapidement abandonnés devant le manque de débouchés. Cependant, aujourd'hui grâce aux récents progrès de l'imagerie champ proche THz, l'application à la sécurité semble constituer une ouverture pleine d'espoir.

---

[113] F. Buergens, R. Kersting, and H.-T. Chen. Terahertz microscopy of charge carriers in semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :112115, 2006.

---

# Caractérisation et modélisation

---

## Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Introduction</b>	<b>95</b>
<b>B</b>	<b>Caractérisation de la taille de la source</b>	<b>96</b>
<b>C</b>	<b>Point Spread Function</b>	<b>98</b>
C.1	Définition	98
C.2	Résultats et commentaires	99
<b>D</b>	<b>Etude du bruit</b>	<b>102</b>
<b>E</b>	<b>Influence de la diffraction</b>	<b>103</b>
E.1	Sur les images de tiges de tungstène	103
E.2	Sur les images de billes de silice	109
<b>F</b>	<b>Conclusion du chapitre</b>	<b>115</b>

---

## A Introduction

Ce chapitre est consacré aux études de modélisation des expériences, et aux caractérisations des microscopes.

La première partie de ce chapitre porte sur le travail qui a permis de caractériser le fonctionnement du microscope optique de champ proche en mode illumination. Le contrôle de la taille de la source, son rôle dans la résolution, la mesure de la fonction d'appareil du microscope et son application dans la déconvolution d'images et l'amélioration de la résolution font l'objet de ce chapitre.

La seconde partie concerne le travail de modélisation qui nous a permis de comprendre un peu plus la physique de l'instrument. La modélisation a essentiellement porté sur le microscope en mode illumination, puisque c'est ce dernier qui a donné le plus de résultats expérimentaux.

## B Caractérisation de la taille de la source

Nous avons vu dans le chapitre précédent que dans le montage de microscopie en mode illumination, la taille de la source locale IR/THz fixe la résolution. Il s'agit donc là d'un paramètre crucial. Par ailleurs, comme nous l'avons fait remarquer au chapitre 2, taille de source et efficacité de rayonnement sont étroitement liées au point qu'en l'état actuel de nos expériences, il n'est pas possible d'avoir une source THz, d'une taille inférieure à deux ou trois dizaines de microns et générant suffisamment de puissance pour être détectée. Dans le domaine IR, la limite semble être plutôt aux alentours du micron. Ces résultats nous ont poussé à développer une procédure de caractérisation de la taille de la source avant de réaliser une image.

Concrètement, nous avons mesuré la taille de la source locale en enregistrant le résultat d'une expérience type couteau. L'expérience consiste à déplacer le cristal non linéaire transversalement par rapport à l'axe optique du microscope jusqu'à l'extrémité du cristal, et enregistrer le signal correspondant à chaque position permet d'estimer la taille de la source locale IR/THz. La figure 4.1 montre une image THz d'une expérience de couteau, et la figure 4.2 résume les résultats dans les domaines IR et THz.

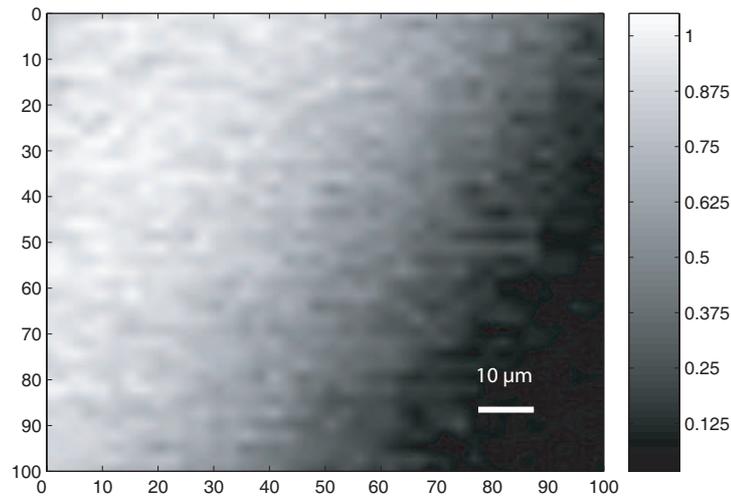


FIG. 4.1: Résultat de l'expérience de couteau dans le domaine THz sur un cristal de ZnTe d'épaisseur  $200 \mu m$ .

Dans les domaines IR et THz, nous avons utilisé le critère 10-90% pour évaluer la taille de la source. Dans le domaine IR, ce critère renvoie une valeur légèrement inférieure à  $5 \mu m$ , taille tout à fait compatible avec les résultats décrits au chapitre 3. Dans le domaine THz, le critère renvoie une valeur de  $35 \mu m$  pour la taille de la source, ce qui est compatible avec les résultats obtenus dans les

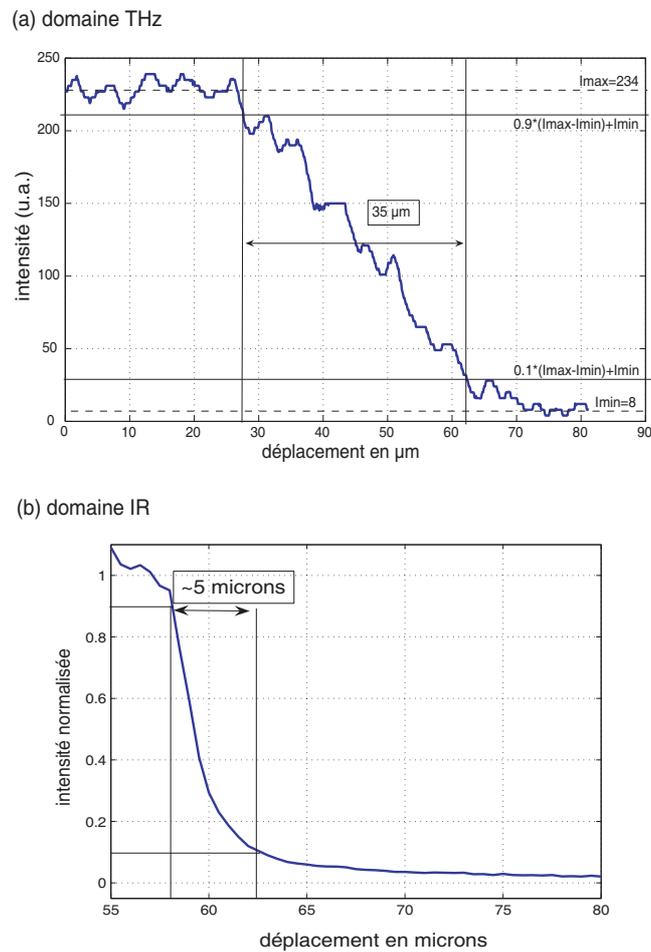


FIG. 4.2: (a) Profil dans l'image 4.1 du cristal de ZnTe dans le domaine THz. (b) Profil dans l'image 4.1 du cristal de ZnTe dans le domaine IR.

images de billes de silice (voir chapitre 3).

Dans notre microscope optique de champ proche en mode illumination, la connaissance de la taille de la source fixe la résolution accessible, il est donc indispensable de réaliser ce genre d'expériences avant de réaliser une image d'un échantillon. En prenant le problème dans l'autre sens, qui sera celui d'un futur utilisateur de notre microscope, suivant la nature de l'échantillon, et la longueur caractéristique  $L$  des détails que l'on cherche à caractériser, l'utilisateur veillera à accorder la taille de la source locale IR/THz sur cette grandeur caractéristique  $L$ . Il y a donc une véritable adaptabilité de notre microscope sur les applications futures visées.

## C Point Spread Function

Dans cette section, nous allons voir comment la mesure de la Point Spread Function (notée PSF par la suite) du microscope en mode illumination, conçu et réalisé pendant ce travail de thèse, a permis d'augmenter la résolution sub-longueur d'onde dans les images THz. Ce travail aurait pu être étendu au domaine IR, mais pour des raisons techniques (utilisation d'un objectif de focalisation de faible ouverture numérique, et absence de billes de silice de taille inférieure à  $5 \mu m$ ) il n'a pas été possible de pousser plus loin cette étude.

### C.1 Définition

La PSF (en français la traduction mot à mot est la fonction d'étalement d'un point, mais en pratique on traduirait plutôt par la réponse impulsionnelle) est un paramètre optique crucial. Elle décrit la répartition volumique en intensité ou en champ électrique de l'image d'un point source par un système optique à caractériser. Cette fonction prend en compte les effets de diffraction et les aberrations optiques induites par la propagation de la lumière à travers le système optique. En somme c'est une donnée primordiale pour caractériser un nouveau microscope. Mathématiquement, pour un éclairage incohérent spatialement (on qualifie alors le système optique de système linéaire en ce sens que si deux objets A et B sont imagés simultanément, l'image de ces deux objets est la somme de l'image obtenue à partir de l'objet A seul et de l'image de l'objet B seul), l'action de l'instrument optique peut s'écrire :

$$I(x, y) = \int_{-\infty}^{+\infty} O(x', y') PSF(x - x', y - y') dx' dy' \quad (4.1)$$

où  $O(x', y')$  est la répartition latérale en transmission et en intensité de l'objet,  $PSF(x, y)$  est la réponse impulsionnelle, et  $I(x, y)$  est la répartition latérale en intensité de l'image. L'image s'écrit donc comme le produit de convolution de l'objet par la PSF.

A partir de données récoltées (image et PSF), il est alors possible de réaliser une déconvolution et de récupérer l'information liée à l'objet ; information dénuée de toute distorsion induite par la propagation de la lumière dans l'instrument optique. Cette méthode numérique est souvent employée en astronomie ou en microscopie. Le point clé est alors la détermination théorique ou expérimentale de la PSF de l'instrument optique. Expérimentalement, il est très délicat d'avoir accès à la PSF, dans la mesure où il est nécessaire d'avoir un objet qui simule une distribution de Dirac (réponse impulsionnelle) i.e. dont la taille soit inférieure à la longueur d'onde d'illumination, et dans la mesure où la PSF dépend aussi de la position de l'objet par rapport aux optiques. Aussi la détermination expérimentale de la PSF serait plutôt une estimation de la PSF.

## C.2 Résultats et commentaires

Durant ce travail de thèse, nous avons réalisé des images de billes de silice de taille sub-longueur d'onde (voir chapitre 3). Ces objets sub-longueur d'onde sont adaptés pour l'estimation de la PSF du microscope de manière expérimentale. Et par la suite, les images obtenues dans le domaine THz nous ont permis de réaliser des déconvolutions améliorant le contraste et la résolution dans les images d'objets biologiques, à commencer par les images de sourcils humains. La figure 4.3 montre l'effet de la déconvolution sur une image d'un sourcil humain. La déconvolution a été réalisée avec le logiciel imageJ<sup>1</sup> suivant un algorithme itératif basé sur un filtre de Wiener [114].

Remarque sur le filtre de Wiener : "Dans l'ensemble des dégradations possibles d'une image, il existe une classe intéressante : les transformations linéaires. Dans ce cas, on suppose les dégradations invariantes spatialement ce qui permet d'écrire le modèle suivant :

$$g(x, y) = [h * f](x, y) + n(x, y) \quad (4.2)$$

où \* est l'opérateur produit de convolution, g désigne l'image à restaurer, f l'image initiale, h la réponse impulsionnelle du système linéaire modèle de la source de dégradation et n un bruit additif (le plus souvent on prend un bruit blanc gaussien) qui permet de modéliser tout ce qui n'est pas pris en compte par le système linéaire.

Les techniques réunies ici sont issues de l'étude des signaux et supposent le plus souvent un modèle continu-continu et donc induisent quelques problèmes lors du passage au traitement d'images discrètes. Un premier cas particulier est bien sûr l'absence du bruit additif n. En effet, dans ce cas, on peut réellement inverser le phénomène de dégradation grâce à la transformée de Fourier et surtout à sa propriété de transformation d'une convolution spatiale en un produit fréquentiel. On obtient alors :

$$G(u, v) = F(u, v).H(u, v) \quad (4.3)$$

où G (resp. F et H) désigne la transformée de Fourier de l'image g (resp. f et h). H est la fonction de transfert du système linéaire qui transforme l'image idéale f en image dégradée g. Si l'inversion de H est possible, alors on peut écrire :

$$F(u, v) = H^{-1}(u, v).G(u, v) \quad (4.4)$$

Le retour au domaine spatial se fait en appliquant la transformée de Fourier inverse. La fonction de transfert du filtre de restauration est donc  $1/H$ .

Même dans un cas idéal, calculer F n'est pas simple : en effet, H(u,v) peut être nul, ce qui conduit à des infinis ou des indéterminations si G(u,v) est également nul. C'est pourquoi on utilise non

---

<sup>1</sup>logiciel libre de traitement d'images disponible à l'adresse suivante <http://rsb.info.nih.gov/ij/>

pas  $1/H(u,v)$  mais une restriction, notée  $M(u,v)$ , de cette fonction à un domaine où le calcul est possible.

En présence du bruit  $n$ , il est également possible d'utiliser la transformée de Fourier. Sa propriété de linéarité donne :

$$G(u, v) = H(u, v).F(u, v) + N(u, v) \quad (4.5)$$

où  $N$  désigne la transformée de Fourier du bruit  $n$ . On obtient donc :

$$F(u, v) = \frac{G(u, v)}{H(u, v)} + \frac{N(u, v)}{H(u, v)} \quad (4.6)$$

Cette expression est plus complexe mais peut être utilisée si l'on fait des hypothèses restrictives sur la nature du bruit (le plus souvent blanc gaussien). Il existe de nombreuses approches de l'inversion par filtrage. En particulier, le filtre de Wiener ne caractérise pas le signal et le bruit par leur forme analytique mais par leurs propriétés statistiques. Ce filtre est théoriquement très bon car minimisant l'erreur entre  $f$  et  $g$  au sens des moindres carrés. En effet, cette mesure ne fait pas référence aux caractéristiques du système visuel. Le résultat peut donc paraître mauvais pour l'oeil humain. La fonction de transfert de ce filtre est donnée par :

$$M(u, v) = \frac{1}{H(u, v)} \cdot \frac{|H(u, v)|}{|H(u, v)| + \frac{P_n(u, v)}{P_f(u, v)}} \quad (4.7)$$

où  $P_n$  (resp.  $P_f$ ) est le spectre de puissance du bruit  $n$  (resp. de la scène  $f$ ). La forme multiplicative à deux termes de cette expression fait apparaître un terme modifiant la fonction de transfert théorique  $\frac{1}{H(u,v)}$  dans le but d'obtenir une restauration optimale (au sens des moindres carrés) en présence de bruit. Si le bruit est supposé blanc, alors  $P_n(u, v) = \text{constante}$ . Très souvent, on suppose que ces spectres de puissance sont à décroissance rapide et que le ratio  $P_n(u, v)/P_f(u, v)$  peut être approximé par une constante fonction de la variance des signaux. Si on peut estimer la variance du bruit, alors la variance du signal origine est obtenu par simple soustraction (si le bruit est additif) :  $V_f = V_g - V_n$ . L'estimation de la variance du bruit  $V_n$  n'est pas simple et nécessite l'emploi de contraintes très restrictives. Cependant une analyse en multirésolution de l'image  $g$  peut fournir des indications sur cette valeur si le bruit est gaussien additif." [115] Fin de la remarque sur le filtre de Wiener.

Le rapport signal à bruit passe alors de 13 à 40, notamment grâce à la réduction du bruit opérée pendant la déconvolution. Quant au gain en résolution il est voisin d'un facteur 5 comme le montre la figure 4.4 représentant les sections du sourcil dans l'image initiale et dans l'image déconvoluée. Ce qui est important de signaler, c'est l'amélioration de la résolution, alors que l'image initiale présentait déjà une résolution sub-longueur d'onde. L'ajout de ce traitement numérique a permis d'atteindre des résolutions de  $\lambda/33$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde moyenne d'illumination.

---

[115] S. Bres, J.M. Jolion, and F. Lebourgeois. *Traitement et Analyse des Images Numériques*. Hermès, 2003.

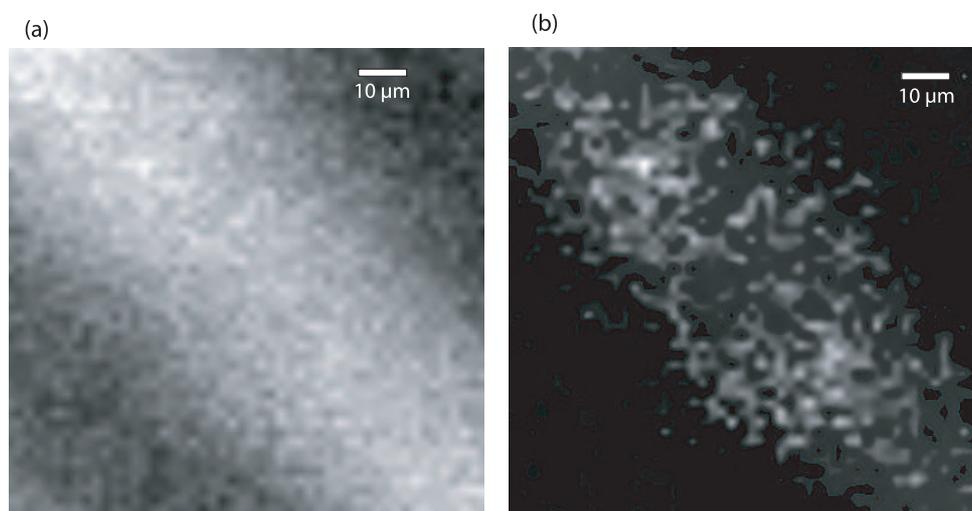


FIG. 4.3: (a) Image d'un sourcil humain. (b) Image déconvoluée du même sourcil humain.

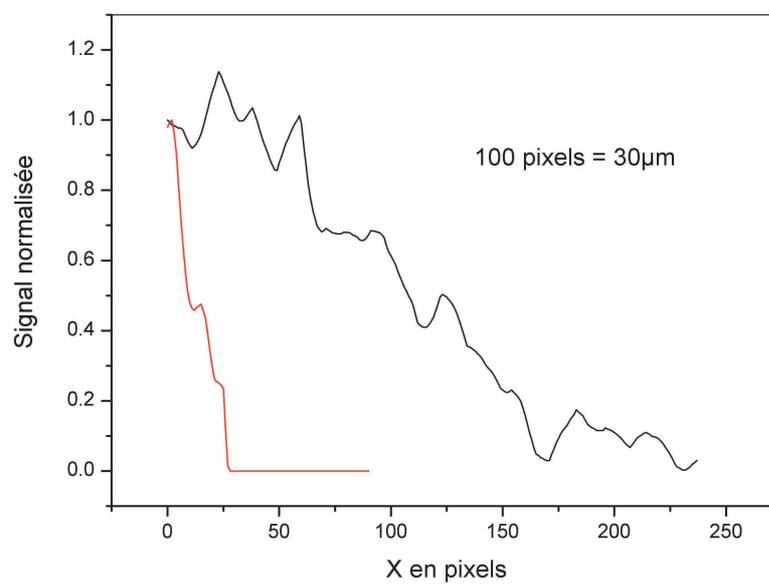


FIG. 4.4: Coupes transversales perpendiculaires à l'axe du sourcil réalisée dans l'image initiale du sourcil (en noir) et dans l'image déconvoluée du sourcil (en rouge)

Les limites de cette technique résident dans la mesure expérimentale de la PSF ; une amélioration du rapport signal à bruit de la PSF aura un effet positif sur la déconvolution d'images plus complexes et se traduira par une meilleure résolution dans les images déconvoluées.

Dans l'idéal, les travaux à mener consisteraient essentiellement à réaliser l'image de billes de silice plus petites avec un contraste plus élevé, mais comme nous l'avons déjà fait remarquer au chapitre 3, la diminution de la taille de la source locale entraîne une diminution du signal. De manière plus réaliste, je pense qu'il faut tendre vers l'utilisation de cristaux non linéaires plus fins (de quelques dizaines de microns) afin de s'affranchir des problèmes de diminution de l'efficacité de génération par rectification optique, et d'un objectif type Cassegrain plus ouvert. De manière plus drastique, nous pourrions envisager de produire les ondes THz différemment. En utilisant une antenne photoconductrice, il est possible de garder l'aspect génération d'une source locale in situ (avec en plus l'avantage que le faisceau pompe est directement filtré par l'antenne dont le support est en GaAs), et d'avoir une puissance THz émise plus importante que dans le cadre de la rectification optique. Une autre possibilité serait d'utiliser un carcinotron ou un laser à cascade quantique et d'éclairer l'objet en champ lointain. On perd alors la possibilité d'une microscopie optique de champ proche en mode illumination, mais la puissance THz disponible permet d'envisager une microscopie champ proche en mode collection. C'est d'ailleurs ce mode de fonctionnement (éclairage en champ lointain et collection locale par une pointe) qui prévaut actuellement dans les développements de microscopes optiques THz de champ proche.

## D Etude du bruit

Cette section est l'objet d'une étude succincte du type de bruit présent dans les images obtenues. Une étude expérimentale a permis de mettre en évidence un bruit systématique, que l'on a pu supprimer en travaillant à plus faible puissance incidente. Cette étude a consisté à enregistrer successivement la même image du cristal sans échantillon à plusieurs reprises. A partir de ces images, un traitement informatique a permis de tirer un signal moyen et un bruit moyen. Ce rapport signal à bruit est alors tracé en fonction de la racine carrée du nombre d'images, et est reporté sur la figure 4.5.

Pour la puissance  $P = 40$  mW, la variation linéaire du rapport signal à bruit en fonction de la racine carrée du nombre d'images moyennées est évidente comme le montre la valeur très proche de 1 du coefficient de corrélation. Cette variation linéaire montre que le bruit est statistique, ou autrement dit que la distribution de bruit est poissonnienne.

Pour la puissance  $P = 80$  mW, la variation linéaire est moins évidente que précédemment. Une autre source de bruit est certainement à l'origine de ce défaut. Nous pensons soit au problème d'endommagement du cristal non linéaire par une puissance lumineuse incidente trop forte soit à des effets de saturation. Néanmoins, ces résultats assurent qu'il n'y a pas de dérive thermique ou de bruit systématique dans les images obtenues précédentes pour le mode illumination, puisque la puissance incidente était inférieure à 50mW.

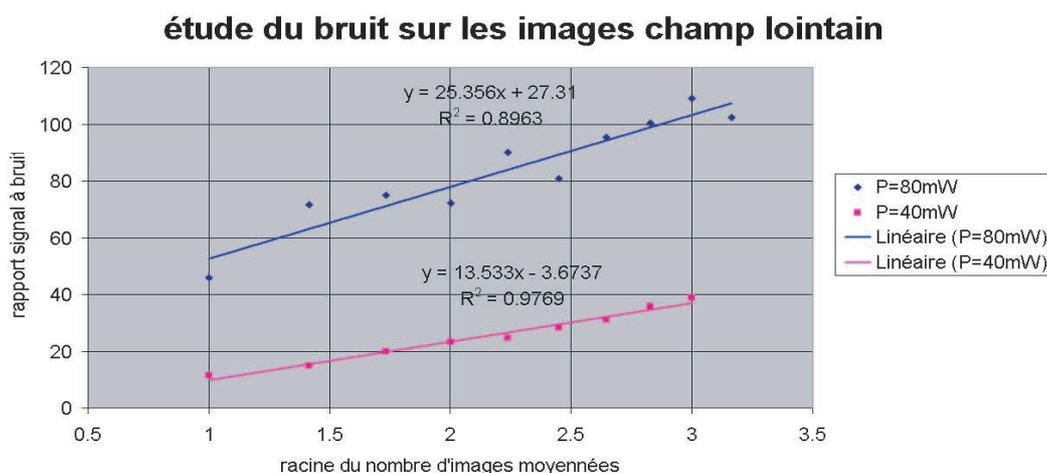


FIG. 4.5: Etude du bruit sur les images en champ lointain dans le montage en mode illumination en fonction de la puissance incidente

## E Influence de la diffraction

Après avoir caractérisé la source locale et la PSF du microscope, il nous a paru nécessaire d'étudier de manière quantitative le contraste des images. En particulier une étude poussée de l'effet de la diffraction dans la formation des images a été menée dans le cadre des images de tiges de tungstène et de billes de silice. Cette étude concerne le microscope optique de champ proche en mode illumination, qui a montré les résultats les plus surprenants en terme de dépendance du contraste optique à la nature de l'échantillon.

### E.1 Sur les images de tiges de tungstène

La figure 4.6 montre les profils tirés des images d'une tige de tungstène obtenues dans le domaine IR (fig.4.6.a) et le domaine THz (fig.4.6.b). Les deux images ont été réalisées avec une illumination locale. Les deux profils présentent des rebonds inattendus sur les côtés de la remontée du signal, ainsi qu'un léger rebond dans la zone d'ombrage uniquement visualisé dans l'image THz.

Nous avons essayé de comprendre ce comportement, aux premiers abords, étonnant, en développant un modèle basé sur la diffraction d'une onde plane par un cylindre conducteur.

La première étape de notre modèle consiste à utiliser la solution exacte aux équations de Maxwell de la diffraction d'une onde plane par un cylindre infini métallique [116]. Dans le calcul suivant, le métal est considéré parfait, hypothèse importante notamment pour les problèmes de conditions aux

[116] J.J. Bowman, T. B. A. Senior, and L. E. Uslenghi. *Electromagnetic and acoustic scattering by simple shapes*. Hemisphere Publishing Corporation, 1987.

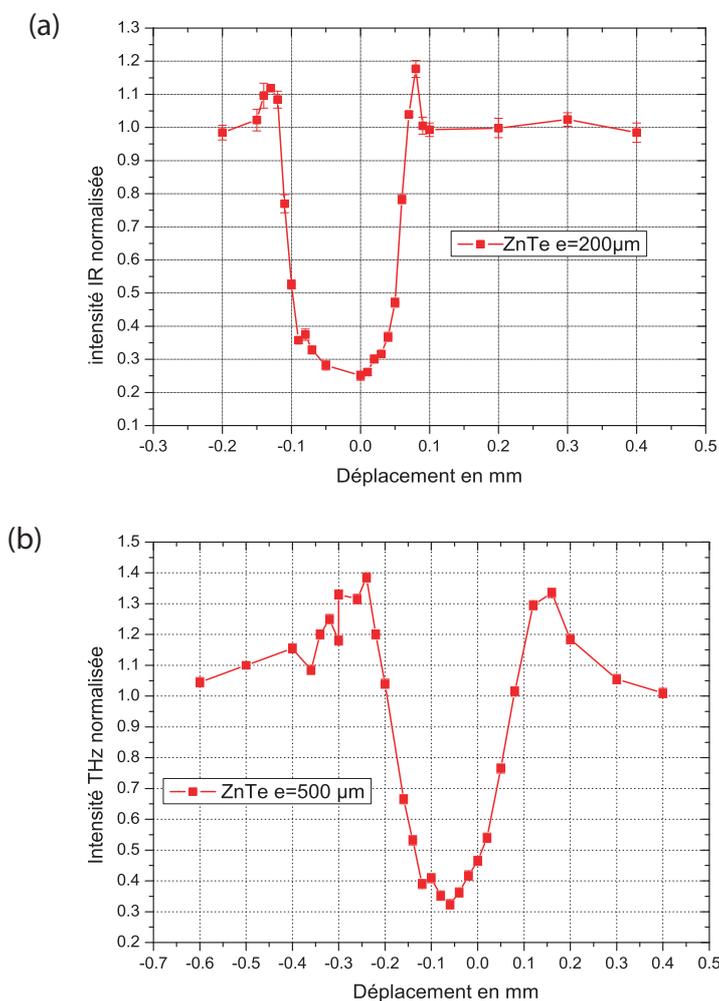


FIG. 4.6: (a) Coupe transversale réalisée dans l'image IR (mesurée par le détecteur MCT) d'une tige de tungstène de  $125 \mu\text{m}$  de diamètre. (b) Coupe transversale réalisée dans l'image THz (mesurée par le bolomètre en position filtre 2 et muni des filtres additionnels en polyéthylène blanc et noir) d'une tige de tungstène de  $125 \mu\text{m}$  de diamètre.

limites. Cette hypothèse se justifie très bien dans le domaine THz et un peu moins dans le domaine IR, dans la mesure où la fréquence de l'onde incidente est très inférieure à la fréquence plasma du métal, en l'occurrence du tungstène ( $\lambda_{\text{plasma}} = 1.7 \mu\text{m}$ ). Dans le modèle de l'électron élastiquement lié, le domaine de fréquences inférieures à la fréquence plasma définit un mode de réponse élastique de la part des électrons, qui vont alors osciller et émettre un rayonnement dipolaire à la même fréquence. Le champ électrique à l'intérieur du métal est alors nul.

Le cylindre est représenté sur la figure 4.7.a, l'axe du cylindre est pris suivant  $\mathbf{u}_y$ , et dans le modèle

on utilisera les coordonnées cylindriques  $(\rho, \phi, y)$ . Pour une onde plane incidente se propageant suivant  $\mathbf{u}_z$  et polarisée rectilignement suivant  $\mathbf{u}_x$ , les champs électrique et magnétique s'écrivent :

$$E_x^i = e^{-ikz}; B_y^i = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} e^{-ikz} \quad (4.8)$$

Et la solution exacte pour le champ électrique diffusé est :

$$E_x^s = - \sum_{n=0}^{+\infty} \varepsilon_n (-i)^n \frac{J_n(ka)}{H_n^{(1)}(ka)} H_n^{(1)}(k\rho) \cos n\phi \quad (4.9)$$

où  $J_n$  est la fonction de Bessel d'ordre  $n$ ,  $H_n^{(1)}$  est la fonction de Hankel du premier ordre et d'indice  $n$ ,  $\varepsilon$  est soit égal à 1 quand  $n=0$  ou égal à  $1/2$  quand  $n \geq 1$ , et  $a$  est le rayon du cylindre. Cette solution donne accès à la répartition du champ électromagnétique diffusé dans tout l'espace, à la fois dans la zone de champ proche et de champ lointain.

Dans la suite, nous avons adopté une géométrie 2D dans la modélisation de la diffraction par le cylindre. Cette hypothèse se retrouve dans plusieurs modèles d'optique de champ proche [117]. Le modèle se fait dans une coupe 2D perpendiculaire à l'axe du cylindre et parallèlement à l'axe de propagation de l'onde incidente (voir figure 4.7.a).

Le coeur de notre modèle est résumé schématiquement sur la figure 4.7.b. Le schéma est en deux parties, la première représente le montage expérimental et la seconde représente la traduction de ce montage dans le modèle développé ici.

- Montage expérimental au cours des expériences ayant abouti aux images présentées sur la figure 4.6, la source IR/THz est localisée dans le cristal non linéaire. Les ondes émises se propagent du cristal jusqu'au détecteur via un jeu de deux miroirs paraboliques réalisant une conjugaison optique entre la source locale et le détecteur (détecteur HgCdTe ou bolomètre).
- Schéma du modèle la géométrie de la source locale IR/THz est supposée gaussienne car le faisceau pompe est lui-même gaussien. C'est ce faisceau IR/THz gaussien qui est diffracté par le cylindre. Le calcul du champ électrique diffracté se fait dans le plan  $(x,z)$ , et plus précisément dans un hublot 2D définissant la zone de champ proche conjuguée avec le détecteur par les optiques de collection. Le résultat final est la somme du champ électrique diffracté et du champ électrique incident sur la surface du hublot 2D. Le cylindre est alors déplacé suivant la direction  $\mathbf{u}_x$ , pour chaque position on calcule le champ électrique total sur le hublot, et on reconstruit alors le profil de la tige de tungstène.

Ce calcul repose sur les trois principales hypothèses :

1. Le faisceau IR/THz est supposé gaussien. Numériquement il est exprimé comme une somme d'ondes planes pondérée suivant le vecteur d'onde des ondes planes. Pour chacune d'entre

---

[117] R. Carminati, A. Madrazo, M. NietoVesperinas, and J. J. Greffet. Optical content and resolution of near-field optical images : Influence of the operating mode. *J. Appl. Phys.*, 82(2) :501–509, 1997.

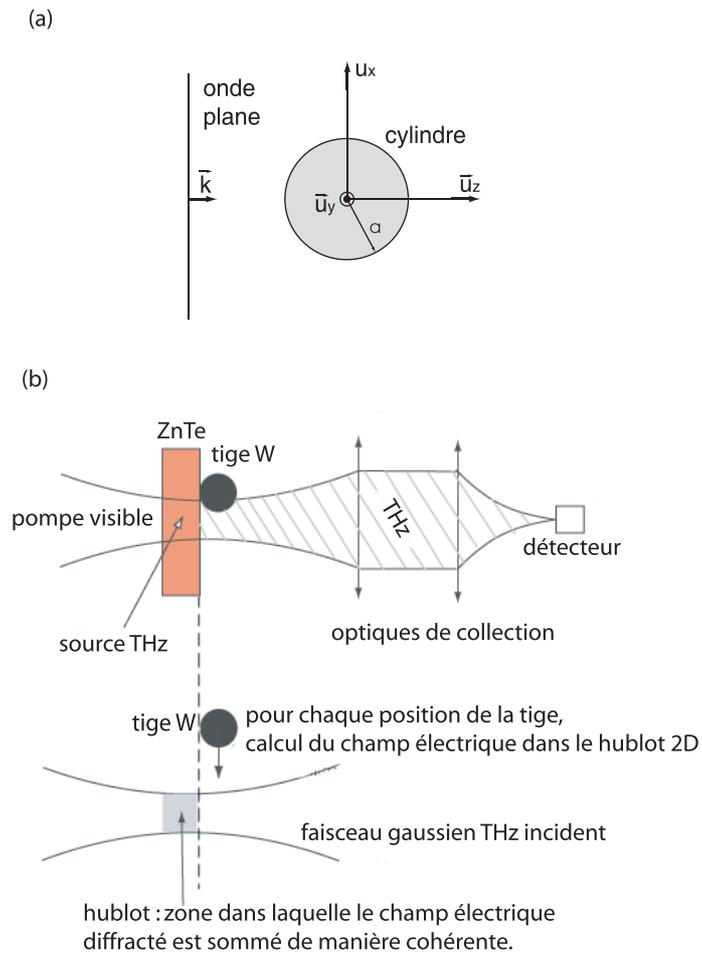


FIG. 4.7: (a) géométrie du modèle de diffusion d'une onde plane par un cylindre métallique (b) représentation schématique du montage expérimental et du modèle

elles, il existe une solution unique au champ diffracté par le cylindre <sup>[116]</sup>. Cette décomposition permet de mener le calcul du champ diffusé quelque que soit la position relative du faisceau gaussien et du cylindre, dans le plan  $(x,z)$ .

2. Le hublot 2D utilisé dans le calcul du champ diffracté correspond à la taille de la source locale, fixée à la fois par l'épaisseur du cristal et par la taille du waist de focalisation du faisceau pompe. Les dimensions du hublot sont ajustables par l'utilisateur, mais les meilleurs résultats que nous avons eus ont été obtenus en rentrant dans la taille du hublot les dimensions déterminées expérimentalement. La surface du hublot est échantillonnée en un réseau rectangulaire. Pour chaque noeud du réseau, l'amplitude du champ électrique incident et diffracté est calculé. Et, pour obtenir le champ électrique total on somme les champs électriques. Cette sommation cohérente s'explique par les interférences constructives entre les différents noeuds du réseau, dans la mesure où la taille du réseau est sub-longueur d'onde.
3. Le polychromatisme a été introduit dans le modèle, puisque le faisceau IR/THz possède un spectre large. Pour chaque longueur d'onde, nous avons calculé le champ électrique diffracté, et, pour obtenir l'intensité totale nous avons sommé les intensités provenant de chaque longueur d'onde, entre elles. Cette somme incohérente s'applique ici car les détecteurs sont très lents par rapport au taux de répétition du faisceau visible pompe et le terme d'interférences est nul entre tous les champs électriques émis pour chaque longueur d'onde. Dans ce modèle, la largeur de la bande spectrale ainsi que le poids respectif pour chaque longueur d'onde ont été choisis conformément aux résultats spectroscopiques expérimentaux (voir figures 2.16).

La figure 4.8 montre les comparaisons modèle expérience dans les domaines IR et THz. Dans les deux cas, l'accord est quasi parfait.

Dans le domaine IR et le domaine THz, le modèle donne à  $x=0\text{mm}$ , une forme de courbe plus arrondie que sur l'expérience. La forme plus pentue dans les résultats expérimentaux pourrait provenir de la diffusion de lumière de la part de petites irrégularités topographiques à la surface de la tige de tungstène.

Le petit rebond que l'on voit sur certains résultats expérimentaux au niveau du minimum de la courbe n'est pas bien expliqué dans les simulations présentées ici. Toutefois, la diffraction d'une seule onde plane par le cylindre montre dans la zone d'ombrage une apparition d'un petit signal, tout à fait similaire à ce que nous avons mesuré. Pour s'en convaincre, la figure 4.9 montre la cartographie du champ électrique total (diffracté et incident) dans le plan  $(x,z)$ , derrière la zone d'ombrage dû au cylindre, le signal n'est pas exactement nul.

En somme, l'accord globalement bon entre expérience et modèle nous permet de conclure que les effets de contraste observés dans les images de tiges de tungstène sont des manifestations de la diffraction. Le modèle que nous avons développé a le mérite d'expliquer nos résultats, à la fois dans le domaine THz et dans le domaine IR. Il est à noter que dans le domaine IR, le modèle numérique nécessite beaucoup plus de temps de calcul. En effet, d'après l'équation 4.9, le champ

---

[116] J.J. Bowman, T. B. A. Senior, and L. E. Uslenghi. *Electromagnetic and acoustic scattering by simple shapes*. Hemisphere Publishing Corporation, 1987.

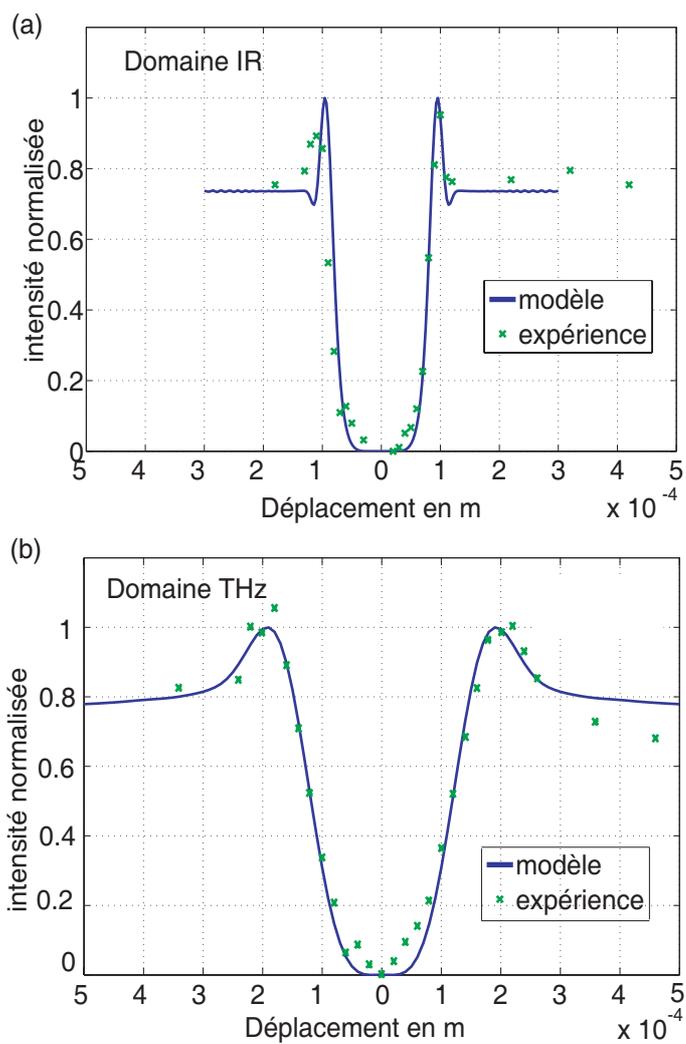


FIG. 4.8: (a) comparaison modèle expérience dans le domaine IR. Paramètres de la simulation :  $a = 65 \mu m$ , dimensions du hublot 2D =  $20 \mu m \times 30 \mu m$ , largeur du spectre =  $1931 THz$ . (b) comparaison modèle expérience dans le domaine THz. Paramètres de la simulation :  $a = 65 \mu m$ , dimensions du hublot 2D =  $20 \mu m \times 30 \mu m$ , largeur du spectre =  $0.33 THz$ .

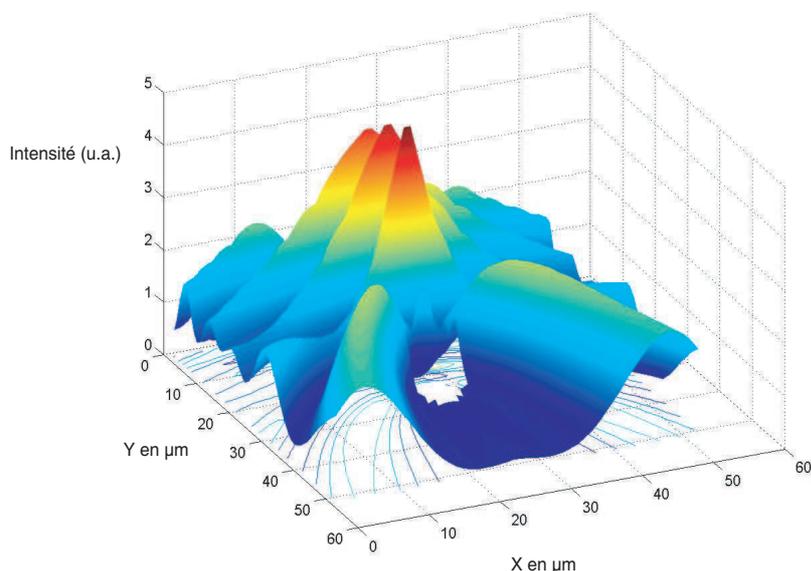


FIG. 4.9: Cartographie 2D du champ électrique total lors de la diffraction d'une onde plane par un cylindre métallique de rayon  $62.5 \mu m$

électrique est un développement en série, en fonction du terme  $(ka)^n$ . Dans le domaine THz,  $ka$  est petit devant 1, ce qui permet de s'arrêter au premier terme du développement pour obtenir une évaluation crédible du champ électrique diffracté. Ce n'est plus le cas dans le domaine IR, où il a fallu faire tourner la simulation pendant plusieurs heures avant d'avoir un résultat correct pour le champ électrique diffracté. Ces résultats ont d'ailleurs donné lieu à une publication dans le journal *Optics Communications* [118].

## E.2 Sur les images de billes de silice

### E.2.1 Diffusion de Mie

L'objectif de ce paragraphe est de comprendre pourquoi le contraste obtenu pour les images de billes de silice est différent de celui obtenu pour les images de tiges de tungstène. Expérimentalement, à part la nature de l'échantillon qui a été modifiée et la taille de la source locale, seul le jeu de miroirs paraboliques a été remplacé par un objectif type Cassegrain. L'explication provient donc soit de la nature de l'échantillon (forme géométrique, indice de réfraction, absorption) soit du système de collection IR/THz. Nous avons alors développé un code de simulation basé sur la différence de

---

[118] R. Lecaque, S. Grésillon, N. Barbey, R. Peretti, J.C. Rivoal, and C. Boccara. Thz near-field optical imaging by a local source. *Opt. Comm.*, 262 :125–128, 2006.

nature de l'échantillon et tenant compte aussi du système de collection. L'idée physique qui nous a guidée repose sur les résultats de la théorie de diffusion de Mie. Cette théorie de la diffusion dit que, à énergie incidente et indice de réfraction de l'objet diffusant constants, plus le rapport taille de l'objet diffusant sur longueur d'onde moyenne est grand, plus la diffusion de lumière se fait vers l'avant. Qualitativement, ce constat permet d'expliquer pourquoi le contraste des billes de silice est plus grand dans le domaine IR que dans le domaine THz.

Dans la suite de cette section, nous présentons donc le travail de simulation visant à expliquer la formation des images dans le microscope optique THz de champ proche en mode illumination. Concrètement, le paramètre d'étude est le rapport entre le niveau de signal maximal obtenu sur les images IR ou THz des billes de silice et le niveau de signal en l'absence de la bille. Pour mémoire, cette grandeur vaut 2 pour les images THz et environ 10 pour les images IR. L'estimation de ce paramètre dans la simulation s'est fait de la manière suivante.

Comme nous l'avons dit plus haut, le calcul repose les équations de la diffusion de Mie par une bille de silice<sup>[119]</sup> et les données concernant l'indice de réfraction ont été tirées du livre Palik<sup>[90]</sup>. Pour chaque domaine de fréquences (IR et THz), nous avons décomposé la simulation en deux parties ; la première rendant compte de la puissance IR ou THz collectée par le détecteur en absence de la bille et la seconde rendant compte de la puissance collectée en présence de la bille. Les deux étapes sont calculées pour une même énergie incidente, ce qui permet de comparer avec pertinence les deux configurations.

1. Pour la première étape, en l'absence de bille, nous avons considéré que la source IR ou THz se comportait comme un dipôle rayonnant (ce qui est différent du modèle précédent, mais se justifie dans la mesure où dans ce cas précis la focalisation était plus forte et le waist THz plus petit). En effet, la taille de la source est sub-longueur d'onde (hypothèse largement vérifiée dans le domaine THz, un peu moins dans le domaine IR où la taille de la source locale est voisine de la longueur d'onde moyenne à savoir  $10 \mu m$ ), et l'observation se fait en champ lointain c'est-à-dire à grande distance de l'échantillon : l'approximation dipolaire pour le domaine THz est donc parfaitement valable ici. De plus la différence d'indice de réfraction entre le cristal et l'air est grande (voisine de 3), aussi les ondes qui sortent du cristal sont émises dans un angle solide proche de  $2\pi$ .

$$\text{taille de source } (30\mu m) \ll \text{longueur d'onde moyenne } (300\mu m) \ll \text{distance d'observation} \\ \text{(de l'ordre du cm)}$$

Un diagramme de rayonnement angulaire a alors été généré à partir des équations du rayonnement dipolaire (en fait nous avons utilisé les équations de la diffusion de Mie dans l'approximation dipolaire). Seule une fraction de l'énergie diffusée est collectée par le microscope et enregistrée par le détecteur, et c'est l'objectif de microscope de type Cassegrain qui fixe

---

[119] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. J.Wiley & Sons, New York, 1983.

[90] E. D. Palik, editor. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1998.

l'ouverture numérique accessible. La fraction de signal collecté entre  $15 \Sigma$  et  $30 \Sigma$  correspond à 16 % du signal total émis dans tout l'espace.

2. Pour la seconde étape, en présence de la bille, le point clé ici est de savoir comment la bille de silice modifie le diagramme angulaire de rayonnement. Cette étape est donc à différencier suivant le domaine de fréquences que l'on considère.

– Le domaine THz

Cette sous-section est l'occasion de présenter les détails de la simulation, et de préciser les hypothèses avancées pour mener à bien les calculs. La géométrie utilisée pour n'importe quel domaine de fréquence est présentée dans le schéma suivant (fig.4.10).

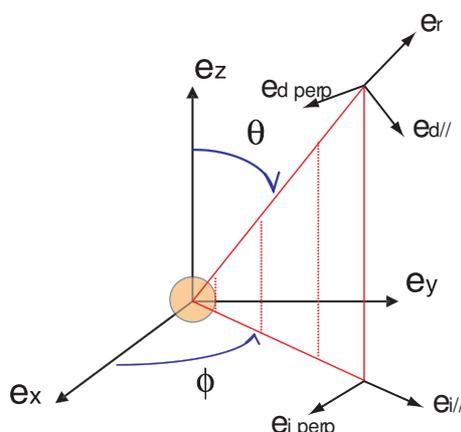


FIG. 4.10: Géométrie utilisée pour les simulations de la diffusion de Mie

L'angle  $\phi$  a été choisi égal à 0 et l'angle  $\theta$  varie de 0 à  $2 \cdot \pi$ . Le champ électrique diffusé peut s'écrire selon la théorie de Mie de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} E_{d\parallel} \\ E_{d\perp} \end{bmatrix} = \frac{e^{-ikr}}{-ikr} \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \begin{bmatrix} E_{i\parallel} \\ E_{i\perp} \end{bmatrix} \quad (4.10)$$

Les orientations de  $E_{d\perp}$  et  $E_{d\parallel}$  et  $E_{i\perp}$  et  $E_{i\parallel}$  sont précisées sur la figure 4.10. La matrice de diffusion est la clé du problème, et pour l'évaluer nous avons utilisé un algorithme écrit par L. Matzler<sup>[120]</sup>, disponible librement sur internet. La grandeur physique que nous avons tiré de ce calcul est l'intensité, soit en fait la somme des éléments diagonaux de la matrice de diffusion au carré.

Par ailleurs, le polychromatisme a aussi été introduit de manière similaire au modèle développé pour les images de tiges de tungstène. Pour chaque longueur d'onde, la matrice de diffusion a été calculée puis à partir de ses éléments diagonaux  $S_1$  et  $S_2$ , on a calculé l'intensité résultante. L'intensité totale est la somme de ces intensités. La sommation est donc

[120] C. Matzler. Matlab functions for mie scattering and absorption. Research Report 2002-08, Institut für Angewandte Physik, University of Bern - CH, Sidlerstrasse 5 CH-3012 Bern Schweiz, 2002.

incohérente pour la même raison que dans le modèle des tiges de tungstène. Cependant pour chaque longueur d'onde, la simulation de la diffusion de Mie nécessite la connaissance de l'indice de réfraction, or dans le domaine THz, cette information n'est pas facile à trouver. Aussi nous avons dû réduire le pas de discrétisation du spectre à 5 fréquences pour lesquelles la valeur de l'indice de réfraction est connue.

Enfin, il est important de noter que l'aspect focalisation du faisceau incident source n'a pas été introduit, essentiellement pour des raisons de temps et de difficultés techniques. En effet, l'introduction de plusieurs vecteurs d'onde fait aussi tourner le plan de diffusion (plan hachuré dans la figure 4.10), et par là-même les axes de la matrice de diffusion. Aussi pour obtenir l'intensité résultante pour un faisceau gaussien monochromatique, il faudrait appliquer une opération rotation à chaque matrice de diffusion, faisant apparaître des éléments non diagonaux. Le calcul de l'intensité résultante est donc beaucoup plus compliqué, sans toutefois être rédhibitoire.

Ceci dit, malgré les hypothèses simplificatrices évoquées plus haut, le raisonnement mené aboutit au diagramme angulaire de rayonnement suivant dans le domaine THz (voir figure 4.11). La forme de ce diagramme est dictée par la valeur de l'indice imaginaire de réfraction (à cause de la faible dispersion de la silice dans le domaine THz), aussi, pour une longueur d'onde donnée, si la partie imaginaire de l'indice de réfraction est grande, le diagramme présente une émission plutôt vers l'arrière, différente du résultat final. En fait, les éléments diagonaux de la matrice de diffusion qui dominent sont ceux obtenus pour des longueurs d'onde présentant un indice imaginaire très faible.

En tenant compte de l'ouverture numérique accessible du microscope, le signal effectivement collecté correspond à 31,2 % de toute l'énergie diffusée. Ce rapport est à comparer à celui obtenu sans la bille, qui est de 16 %. La partie collectée en présence de la bille correspond donc au double de celle collectée en absence de bille, résultat en parfait accord avec les résultats expérimentaux dans le domaine THz. En somme, bien que apparemment simpliste et partiel, ce modèle montre clairement que notre microscope en mode illumination est sensible à la nature de l'échantillon et à sa taille. De plus, pour les matériaux diélectriques (comme la silice, le cheveu, le sourcil), le microscope fonctionne en fond noir étant donné, que le contraste des images pour ces échantillons est positif. L'originalité et les performances de ce microscope nous ont poussé à publier ce travail à la fois théorique et expérimental (article en fin de rédaction Juillet 2006).

#### – Le domaine IR

Pour le domaine IR, la démarche logique reste exactement la même. Les données des indices de réfraction dans le domaine IR étant plus complètes, nous avons pu mener le calcul pour une dizaine de longueurs d'onde différentes entre 8 et 15  $\mu\text{m}$ . Le résultat final donne un diagramme angulaire de rayonnement présenté sur la figure 4.12.

En tenant compte de l'ouverture numérique accessible du microscope, le signal effectivement collecté correspond à 66 % de toute l'énergie diffusée. Ce rapport est à comparer à celui obtenu sans la bille, qui est de 16 %. Cela correspond à un facteur 4 d'"exaltation",

Domaine THz

Diffusion de Mie.

Somme incohérente de 5 longueurs d'onde (100, 125, 166, 250 et 500  $\mu\text{m}$ ).

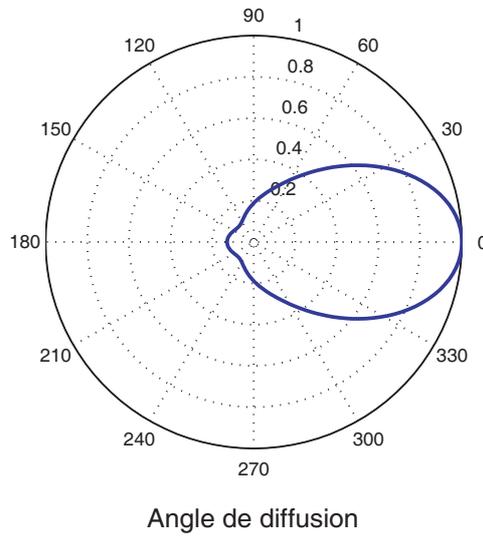


FIG. 4.11: Diagramme angulaire de rayonnement obtenu par diffusion de Mie de plusieurs ondes planes monochromatiques par une sphère de silice de 15  $\mu\text{m}$  de rayon, dans le domaine THz.

## Domaine IR

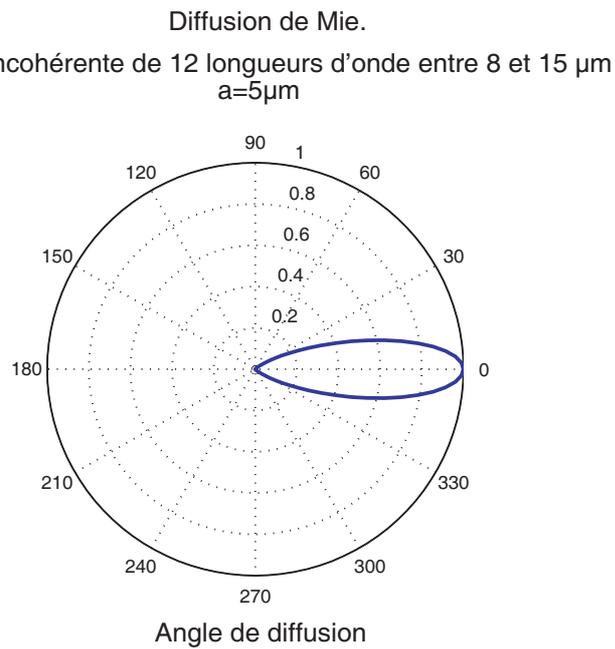


FIG. 4.12: Diffusion de Mie de plusieurs ondes planes monochromatiques par une sphère de silice de  $5 \mu\text{m}$  de rayon, dans le domaine IR. Cette simulation a été réalisée avec la même énergie incidente que pour la simulation dans le domaine THz.

légèrement différent du facteur 10 mesuré sur les images IR des billes de silice. Par rapport au domaine THz, le modèle est certes moins précis mais explique l'évolution THz-IR de manière tout à fait convenable. L'écart avec la réalité expérimentale peut venir de plusieurs points : il y a la faible validité de l'hypothèse rayonnement dipolaire pour évaluer le signal en absence de bille, la non prise en compte de l'aspect focalisation, l'absence de modélisation fine de la géométrie de la bille (qui peut avoir une influence étant donné le résultat obtenu sur la bille de silice trouée -figure 3.10-), et le fait que longueur d'onde et taille de bille sont très voisines dans les expériences du domaine IR.

Le tableau suivant résume les résultats obtenus d'après la simulation de la diffusion de Mie :

Domaine de fréquences	rapport expérimental du signal collecté sur le signal total émis	rapport théorique du signal collecté sur le signal total émis
IR	10	4,12
THz	2	1,95

## F Conclusion du chapitre

Ce chapitre nous a permis de faire une revue des caractéristiques et performances du microscope optique IR/THz de champ proche en mode illumination. On peut résumer ces différents points de la manière suivante :

- source locale IR/THz de taille variable, adaptable suivant l'échantillon à étudier,
- taille de la source IR/THz fixe la résolution latérale dans les images obtenues par balayage, que l'on peut obtenir expérimentalement par mesure de la partie latérale de la PSF,
- bruit aléatoire dans les images,
- microscopie de champ proche : résolution de  $30 \mu m$  dans le domaine THz, et de  $5 \mu m$  dans le domaine IR,
- amélioration possible des images par déconvolution,
- contraste dépendant de la nature de l'échantillon,
- pour les diélectriques, analogie avec microscopie sur fond noir,
- pour les métaux, analogie avec la microscopie sur fond clair,
- formation des images expliquée la diffraction, quelque soit la nature de l'échantillon.



---

## Conclusions et perspectives

---

Le désir d'étendre les techniques de microscopie optique en champ proche au domaine terahertz et la volonté de réaliser un instrument de mesure performant et efficace ont motivé ce travail de thèse. Au cours de ce travail, nous avons conçu et réalisé deux microscopes optiques THz de champ proche, l'un fonctionnant en mode illumination et l'autre en mode collection. Ces deux instruments ont démontré des performances inédites en terme de contraste et de résolution.

- Le premier instrument est simple dans sa conception et a montré une extrême sensibilité à la nature de l'échantillon à étudier. Il a été conçu pour un fonctionnement polyvalent. Il peut fonctionner à la fois dans le domaine IR et dans le domaine THz, présentant alors des performances légèrement différentes. Dans le domaine IR, la résolution ultime est de  $5 \mu m$ , tandis que dans le domaine THz la résolution est de  $30 \mu m$ . Dans les deux cas, la résolution est sub-longueur d'onde. Les limites de l'appareil se situent dans un compromis entre résolution et puissance émise. L'utilisation de la rectification optique comme système de génération des ondes IR/THz présente l'inconvénient majeur d'avoir un rendement faible, qui décroît quand la taille de la source de focalisation est sub-longueur d'onde.

Il est clair que cet instrument est le plus abouti, grâce notamment à la simplicité de mise en oeuvre. Cependant de nombreuses améliorations peuvent être envisagées afin d'améliorer ses performances. Tout d'abord, pour améliorer la résolution, l'utilisation d'un cristal plus fin limiterait certainement les problèmes de diminution de signal IR/THz quand la source est sub-longueur d'onde. A plus long terme, le changement de la méthode de génération peut se révéler efficace ; un carcinotron par exemple apporterait une grande puissance d'émission. Et s'il est accordable, un couplage avec une spectroscopie locale peut être envisagé. En terme d'amélioration de la PSF, l'utilisation d'un objectif de microscope en picarin <sup>1</sup> (matériau transparent à la fois dans les domaines THz et visible) fonctionnant en transmission pourrait se révéler efficace, d'autant plus que cela faciliterait la procédure de réglage d'alignement optique dans le microscope. Enfin,

---

<sup>1</sup><http://www.mtinstruments.com/>

pourquoi ne pas utiliser la génération in situ pour faire du microscope un endoscope : une fibre optique couplée à une lentille en picarin focalisant dans un cristal non linéaire que l'on pourrait approcher d'un échantillon. Cette idée ambitieuse nécessite de faire des essais préalables dans une géométrie de collection en réflexion.

- Le second instrument (THz ASNOM) devait permettre une amélioration intense de la résolution grâce à l'ajout d'un diffuseur métallique d'une dizaine à quelques centaines de nanomètres. Les premières images de la surface du cristal de ZnTe ont montré les grandes potentialités de cet instrument. Une résolution inférieure au micron dans le domaine THz a été mise en évidence avec ce microscope. Sa conception s'appuie sur celle du premier instrument en mode illumination. Mais sa réalisation et son utilisation sont beaucoup plus délicates que le précédent microscope : il s'agit bien d'une technique de microscopie à pointe.

Etant encore en plein développement, cette technique de microscopie est moins aboutie et c'est en cela qu'elle paraît encore plus prometteuse que la première. En effet, il n'est plus nécessaire d'avoir une source sub-longueur d'onde pour l'illumination, cela permet d'envisager donc l'utilisation de cristal plus épais, voire des cristaux non linéaires organiques comme le DAST, possédant des coefficients électro-optiques géants. Par ailleurs, le résultat de  $1 \mu m$  pour la résolution a été obtenu dans des conditions expérimentales difficiles, ni protection acoustique, ni protection vibrationnel du microscope, qui s'avère pourtant indispensable dans le domaine visible. Là encore, l'idée de changer de méthode de génération pourrait apporter quelque chose. Comme il n'est plus nécessaire d'avoir une source sub-longueur d'onde, l'idée d'utiliser une source plus puissante pourrait nous permettre de gagner un facteur 100 sur la puissance émise, facteur de gain qui se répercuterait à terme sur la résolution.

Grâce à ce travail, nous possédons donc aujourd'hui de sérieux atouts dans la course à la résolution dans le domaine de l'imagerie THz. Des industriels, des militaires et d'autres équipes de recherche publique sont actuellement en contact avec le laboratoire. Il est certain que le domaine THz est amené à se développer, et se diversifier ; dès lors je suis certain que le laboratoire d'Optique Physique a toutes les chances d'y apporter sa contribution.

---

# Annexes

---

## Sommaire

---

<b>A</b>	<b>Procédures de réglages des lasers</b>	<b>119</b>
<b>B</b>	<b>Détecteurs</b>	<b>120</b>
B.1	Caractéristiques techniques du bolomètre et du détecteur HgCdTe	121
B.2	Procédure de pompage du bolomètre	130
B.3	Procédure de refroidissement du bolomètre	130
<b>C</b>	<b>Procédures de réglages optiques pour microscope en mode collection</b>	<b>131</b>

---

## A Procédures de réglages des lasers

Réglages du mode impulsionnel du laser MIRA (procédure normale) :

1. Allumer le circuit de refroidissement à eau du laser (que l'on appellera par sa dénomination industriel par la suite, le chiller), et laisser l'équilibre thermique se mettre en place pendant 30 minutes. Veiller à avoir allumé aussi la climatisation pour un fonctionnement idéal du chiller.
2. Tourner la clé de mise sous tension du laser de pompe Verdi 10W. Régler la molette de puissance à la valeur souhaitée (jusqu'à 10W pour le MIRA). Attendre quelques minutes le régime stationnaire de fonctionnement. Ouvrir le shutter du Verdi, après avoir mis **des lunettes de protection** adéquates.
3. Maximiser la puissance en sortie du MIRA en tournant les vis des 4 miroirs d'entrée du MIRA. La visualisation de la puissance se fait grâce au contrôleur du MIRA relié à une photodiode silicium rapide.
4. Réduire alors la taille de la fente en sortie du MIRA jusqu'à diminuer d'un facteur 2 la puissance maximale obtenue auparavant.

5. Activer le mode impulsif en enclenchant l'interrupteur du contrôleur du MIRA qui fait osciller un système de deux lames réfléchissantes montées en tête à tête.
6. Ouvrir la fente afin d'augmenter la puissance en sortie, en veillant à ne pas trop l'ouvrir au risque de perdre le mode impulsif. La vérification de ce point se fait par l'intermédiaire d'un oscilloscope numérique de bande passante supérieure à 1GHz relié à la photodiode rapide.

Réglages du mode impulsif du laser femtosource (procédure normale) :

1. Allumer le chiller, et laisser l'équilibre thermique se mettre en place pendant 30 minutes. Veiller à avoir allumé aussi la climatisation pour un fonctionnement idéal du chiller.
2. Tourner la clé de mise sous tension du laser de pompe Verdi 10W. Régler la molette de puissance à la valeur souhaitée (jusqu'à 5W pour le femtosource, **pomper avec plus de 5W risque d'endommager le cristal de Ti :Sa du laser femtosource**). Attendre quelques minutes le régime stationnaire de fonctionnement. Ouvrir le "shutter" du Verdi, après avoir mis **des lunettes de protection** adéquate.
3. Maximiser la puissance en sortie du femtosource en modifiant l'orientation du miroir de pompe situé juste à la sortie du Verdi. Ce réglage est extrêmement sensible, il faut le faire avec le plus grand soin. Modifier alors la position du cristal en tournant la vis située sur le côté de la cavité du femtosource. Enfin modifier l'orientation du miroir de sortie du laser. Ces trois réglages doivent être itératifs jusqu'à stabilisation de la puissance optique laser à son maximum (généralement autour de 600mW). La visualisation de la puissance de sortie se fait avec un puissance-mètre placé à la sortie du laser.
4. Le passage en mode impulsif se fait par la visualisation du spectre du laser, avec le spectromètre à fibre optique déjà évoqué plus haut. Tourner très légèrement la vis modifiant la position du cristal dans la cavité, puis appuyer sur le bouton situé à côté de cette vis, bouton qui déplace un des miroirs de fin de cavité et qui permet de lancer le mode impulsif.
5. Recommencer le réglage 4 jusqu'à obtenir un mode impulsif stable.

## B Détecteurs

**B.1** Caractéristiques techniques du bolomètre et du détecteur HgCdTe



**BOLOMETER CHARACTERISTICS**

DATE TESTED: 1/29/98

UNIT#: 2777  
 AREA: 2.5mm diameter diamond  
 FILTER: 100 cm-1  
 TEMP. [K]: 4.2

<b>G</b> [ $\mu$ W/K]=	16.78
<b>Ro</b> [Mohm]=	18.0
<b>S</b> [V/W]=	2.77E+05
<b>NEP</b> [W/Hz <sup>1/2</sup> ]=	1.06E-13

**DC LOAD CURVE DATA**

Vbias[V]	Vs[V]	Eb [V]	Ib [ $\mu$ A]
0.0	0.667	0.000	0.000
1.0	1.310	0.643	0.036
2.0	1.908	1.241	0.076
4.0	2.928	2.261	0.174
6.0	3.748	3.081	0.292
8.0	4.411	3.744	0.426
10.0	4.962	4.295	0.571
12.0	5.423	4.756	0.724
14.0	5.806	5.139	0.886
16.0	6.137	5.470	1.053
18.0	6.421	5.754	1.225
20.0	6.664	5.997	1.400
25.0	7.144	6.477	1.852
30.0	7.489	6.822	2.318
35.0	7.739	7.072	2.793
40.0	7.921	7.254	3.275

**R-load [Mohm]**

10

**NOISE: Vn [nV/Hz<sup>1/2</sup>]**

**FREQUENCY**

BIAS [ $\mu$ A]	20 Hz	80 Hz	200 Hz
2.25	32.5	29.2	28.3

**FREQUENCY RESPONSE**

f [Hz]	OUTPUT [% DC]
20	100
100	100
200	100
300	97
400	91
500	86

FIG. 6.2: Caractéristiques physiques et électriques du bolomètre.

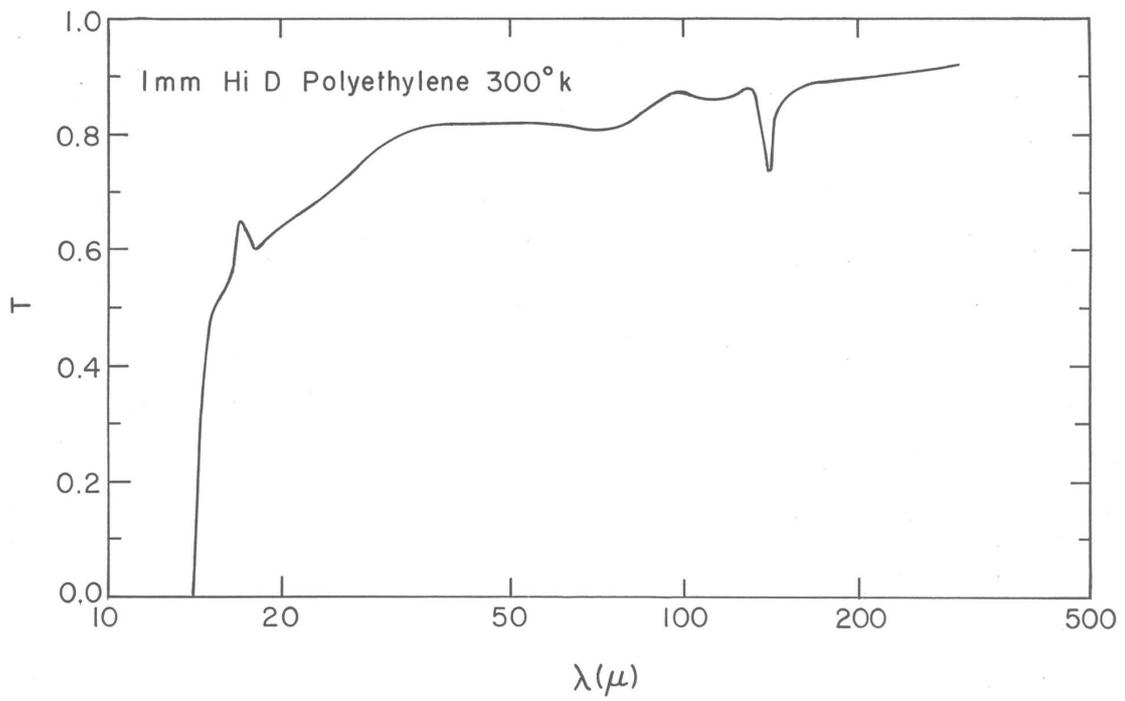


FIG. 6.3: Spectre de la fenêtre optique en polyethylene blanc du bolomètre.

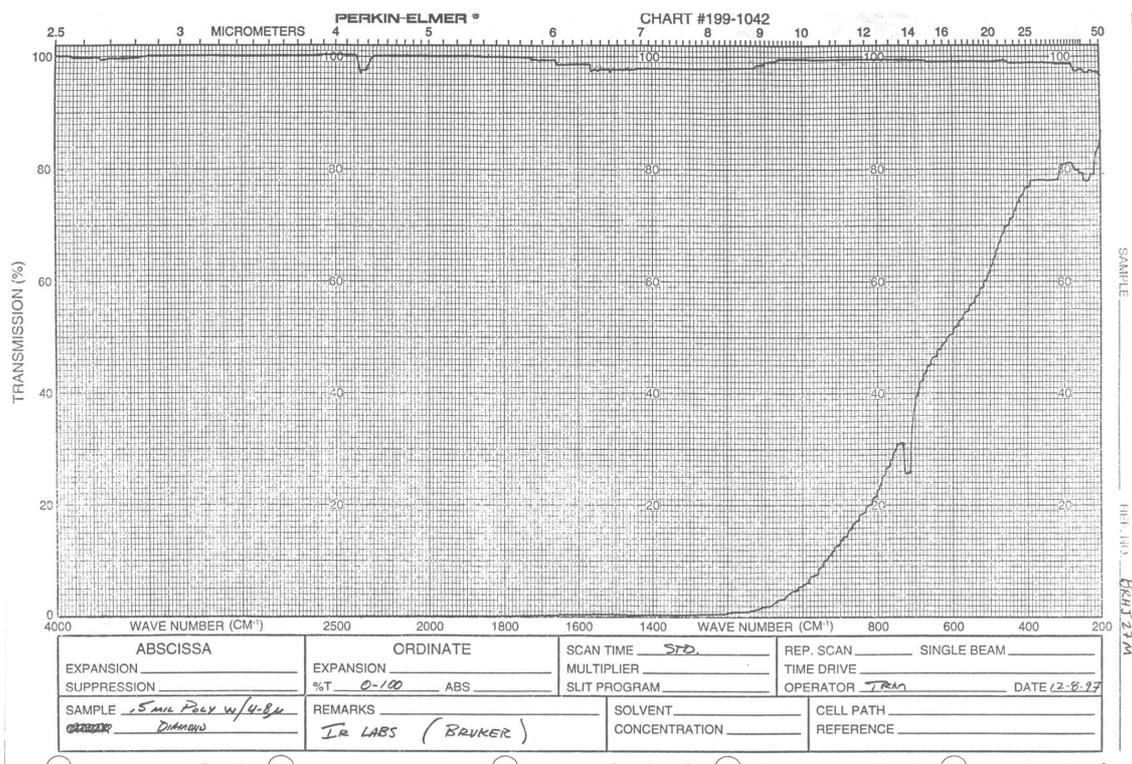


FIG. 6.4: Spectre en transmission du filtre 1 du bolomètre.

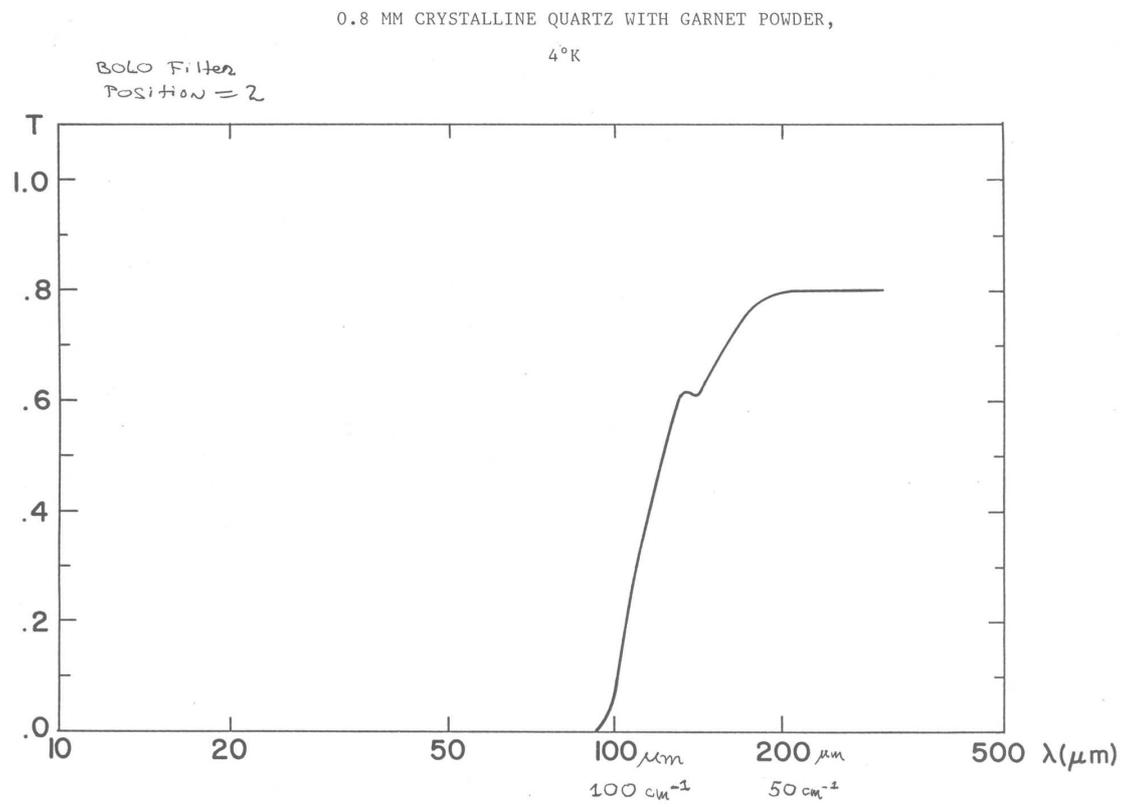


FIG. 6.5: Spectre en transmission du filtre 2 du bolomètre.

### LN-6C PREAMPLIFIER

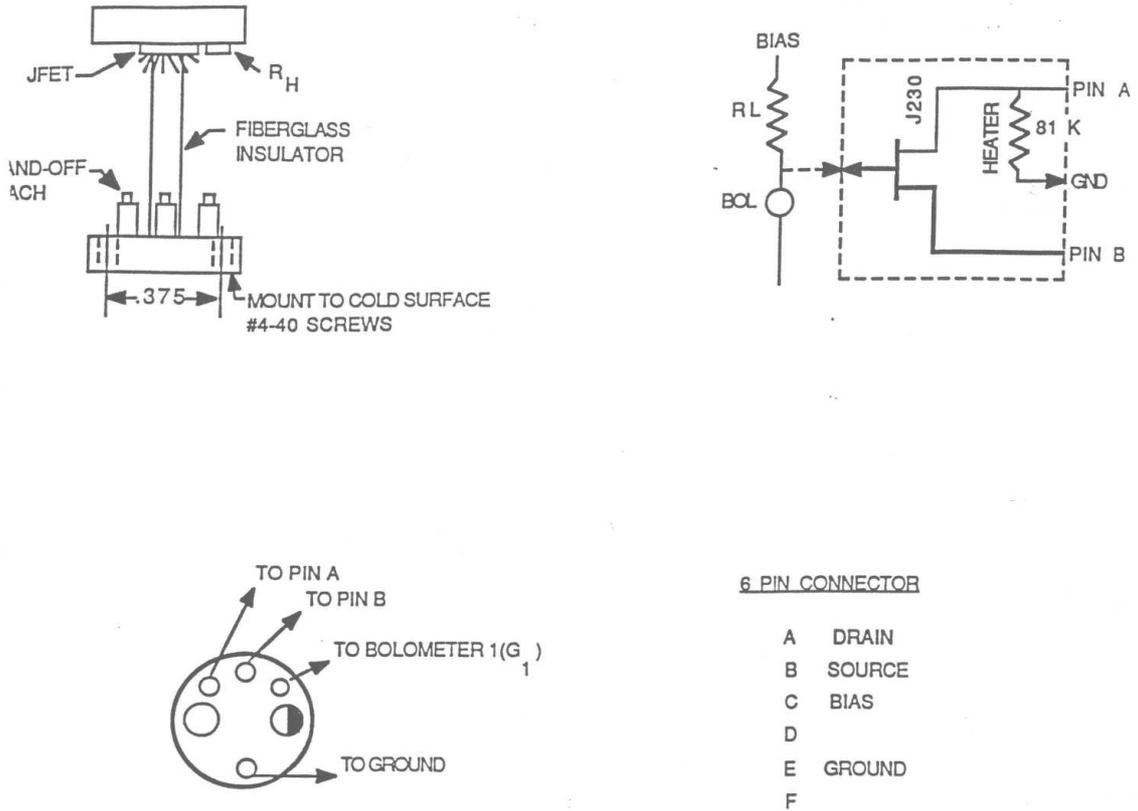
The LN-6C preamplifier is a low-noise voltage amplifier employing remote first stage electronics. By placing the first amplifier stage near the detector on the cold surface, microphonic and excess input capacitance are greatly reduced. This preamplifier is ideally suited to Infrared thermal sensors such as bolometers operating from 0.3K to 4.2K at very high impedance. The J230 JFET remote amplifier along with its thin film heater are mounted on a thin-wall fiberglass thermal insulator, allowing 77K operation of the FET even when the module is mounted to a low-temperature cold plate. Power dissipation to the cold surface is less than 1mW. The system load resistor is thermally sunk to the liquid Helium surface to minimize its Johnson noise, and a small (#40) constantan wire connects it to the remote amplifier module. Bias on the detector is conveniently switched from the preamplifier enclosure and a BIAS TEST BNC jack allows monitoring of the applied bias as well as providing an input for external bias. Load curves can be measured conveniently at test points provided on the side of the box. Power is supplied by two internal 9 volt batteries and continuous operation up to 100 hours is standard.

### SPECIFICATIONS

First Stage	Remote at cold surface
Voltage Gain	200/1000 $\pm 5$ percent (switched)
Input Impedance	$>1 \times 10^{13} \Omega$
Output Impedance	$<500$ ohms
Frequency Response	0.75Hz to 30 KHz
Maximum Output	$\pm 7V$
Power Requirements	$\pm 9V$ (Batteries included) @ $\pm 3mA$
Shorted Input Noise	$<5nV/Hz^{1/2}$
Bias Voltage	Switched, to suit application
Size	6 1/2" x 3" x 4" wide
Weight	Approx. 2 pounds

FIG. 6.6: Caractéristiques électriques du circuit préamplificateur du bolomètre

LN-6/C COLD MODULE



Notes for Installation

1. Use Constantan or Manganin wire (#30 or smaller) to connect module to connector.
2. Load resistor should be mounted on cold surface as close as possible to detector.
3. The  $G_1$  lead from cold module to junction of  $R_L$  & Det should be kept as short as possible. Cement this lead to the cold surface to avoid microphonics.

FIG. 6.7: Schéma de la jonction préamplificateur-résistance bolométrique

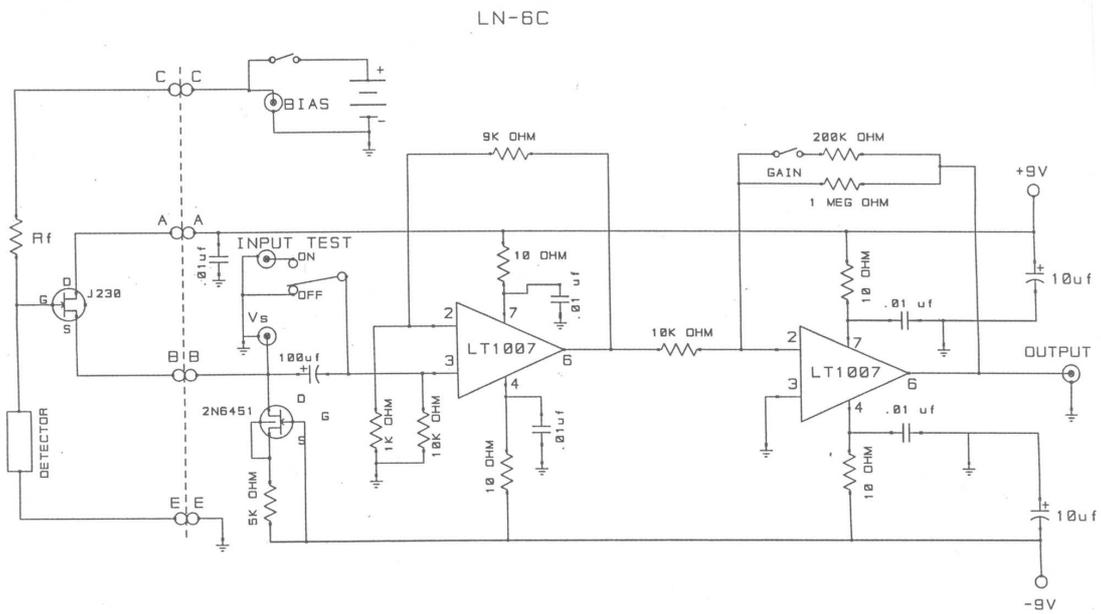


FIG. 6.8: Schéma électrique équivalent du bolomètre.

## B.2 Procédure de pompage du bolomètre

Préliminaires :

Le bolomètre est chaud (température ambiante).

- s’assurer que le filtre est en position 2 avant de pomper.
- S’assurer que le robinet du bolomètre est fermé.

La mise en marche des pompes primaire et secondaire dépend du type de pompe utilisée.

1. Pompage de la pompe à huile disponible dans l’atelier du laboratoire d’optique :
  - s’assurer que la vanne noire de la pompe secondaire est fermée, et que la vanne blanche est en position S.
  - installer le bolomètre au niveau de la chambre de pompage.
  - tourner la vanne blanche en position P. Un vide primaire s’installe dans la chambre. (15 minutes)
  - une fois ce vide primaire fait, remettre la vanne blanche en position S, et tourner la vanne noire (position ouverte) afin de faire maintenant un vide secondaire dans la chambre.
  - laisser une dizaine de minutes.
  - ouvrir lentement le robinet du bolomètre. On observe alors une remontée de la pression, puis la pompe fait son effet et le vide se réinstalle.
2. Débranchement du bolomètre :
  - une fois le vide désiré atteint (vide limite de la pompe  $5.10^{-7}$  mbar), fermer le robinet du bolomètre pour l’isoler de la chambre.
  - fermer la vanne noire reliant la chambre à la pompe secondaire.
  - ouvrir la soupape de la chambre afin de rétablir la pression atmosphérique dans la chambre.
  - dévisser, et retirer le bolomètre.

## B.3 Procédure de refroidissement du bolomètre

Le bolomètre est chaud mais on a fait le vide au préalable.

Préliminaires : s’assurer que la partie électronique du bolomètre est alimentée par deux piles 9V, et que le bouton power est en position on. (ce n’est pas critique, il suffit juste d’allumer le bolomètre avant de mettre l’hélium liquide dans le cryostat).

1. Refroidissement à l’azote liquide des deux vases :
  - Commencer par remplir d’azote le vase à hélium (IMPORTANT), puis après remplir le vase à azote. Cette pré-thermalisation évite de coincer des bouchons de glace dans le vase à hélium.
  - Laisser thermaliser une quinzaine de minutes.
  - Enlever l’azote liquide présent dans le vase à hélium, au moyen d’un courant d’azote gazeux. Le point clé ici est de monter sur le vase à hélium une canne étanche permettant, par un embout d’amener l’azote gazeux et, par un deuxième embout l’échappement de l’azote venant du vase.

2. Refroidissement à l'hélium liquide du vase à hélium.
  - Enlever l'azote gazeux du vase à hélium avec l'hélium gazeux d'une bouteille annexe Air liquide<sup>TM</sup>.
  - Enfoncer délicatement et progressivement la canne dans la bouteille d'hélium liquide, jusqu'à toucher le haut du liquide dans la bouteille (une forte surpression apparaît alors).
  - Vérifier que de l'hélium liquide sort de l'autre côté de la canne (petite plume blanche), et insérer l'autre extrémité de la canne dans le vase à hélium du bolomètre.
  - La fin du remplissage est délicate à détecter. Le plus souvent, quand le cryostat du bolomètre est plein, une grande gerbe de fumée blanche, avec au centre une plume blanche, apparaît, signalant la fin du remplissage.
3. Attention : si il y a une trop grande surpression, ne pas hésiter à ouvrir la vanne rouge de la bouteille pour baisser la pression.

## C Procédures de réglages optiques pour microscope en mode collection

Quelque soit le détecteur utilisé, la procédure de réglages reste globalement la même.

- La toute première chose à faire est une approche grossière de l'échantillon par rapport à la pointe, en déplaçant la platine sur laquelle repose le cristal non linéaire.
- Le réglage suivant consiste à réaliser l'alignement entre les axes optiques de l'objectif de focalisation ( $NA = 0,2 \text{ et } \times 10$ ) et l'objectif Cassegrain de collection. Ce réglage se fait en superposant l'image du diaphragme de champ de l'éclairage Kohler passant par l'objectif Cassegrain et par l'objectif de focalisation, et le spot laser.
- L'approche fine de l'échantillon par rapport à la pointe peut alors commencer en présence de l'éclairage laser. En effet, la présence du laser (puissance voisine de 100mW) entraîne une forte dilatation de la tige de tungstène pouvant aller jusqu'à plusieurs microns. (d'ailleurs cela peut paraître étrange dans la mesure où le calcul de dilatation thermique suivant montre que la pointe s'échauffe de 1000K ! Dans un modèle à une dimension, on peut prendre le coefficient de dilatation thermique du tungstène trouvé sur internet dans les annales de concours de centrale <sup>1</sup> :

$$\text{dilatation\_coefficient} = \alpha = \frac{1}{l} \frac{\delta l}{\delta T} = 4,5 \cdot 10^{-6} K^{-1} \quad (6.1)$$

La variation de longueur est estimée de la manière suivante. Sans laser, on se met au contact. On éclaire alors la pointe, et l'amplitude tombe alors à 0 ; il faut alors descendre la platine de l'échantillon de  $5 \mu m$  pour retrouver une amplitude d'oscillation de la pointe identique au seuil initial. sachant que la longueur du coude de la tige de tungstène est de  $1,5 mm$ , la variation de température est donc égale à

<sup>1</sup><http://centrale-supelec.scei-concours.org/CentraleSupélec/2000/MP/sujets/phys.pdf>

$$\frac{\delta l}{l} = \frac{5 \cdot 10^{-6}}{1,5 \cdot 10^{-3} \cdot 4,5 \cdot 10^{-6}} = 10^3 K \quad (6.2)$$

Ce résultat paraît élevé mais il reste réaliste car donnant une température inférieure à la température de fusion du tungstène ( $T_{fusion} = 3695 K$ ). Il peut aussi y avoir un effet bilame, mais nous n'avons pas poussé plus loin l'étude qui serait très intéressante.

- l'approche fine de la pointe est réalisée, il faut alors maintenant chercher à optimiser le signal de champ lointain THz. Pour ce faire, on met en place une simple modulation du faisceau laser par le chopper à 300 Hz. Le signal ainsi collecté par le bolomètre est maximisé en modifiant dans cet ordre
  - miroir d'entrée du microscope
  - position X, Y, et Z de l'objectif de focalisation
  - position Z de l'objectif Cassegrain
  - position X et Y du bolomètre

Ce réglage est récursif évidemment. Avec le bolomètre ce réglage se fait en présence de filtres additionnels polyéthylène blanc et noir. A ce stade nous avons enregistré plusieurs approches de pointe, sur la figure 6.9 est représentée une approche de pointe typique.

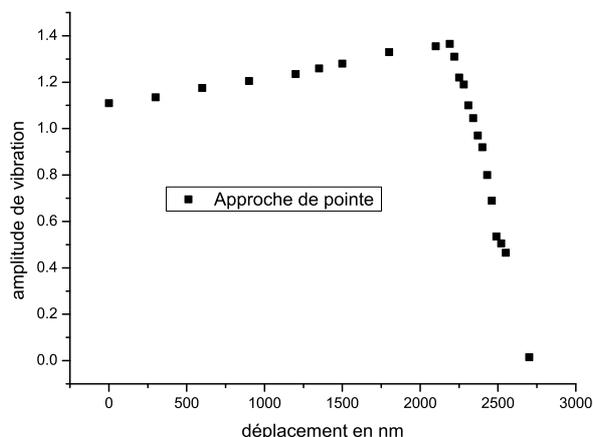


FIG. 6.9: Variation de l'amplitude d'oscillation de la pointe lors d'une approche de pointe.

- Quand on utilise le bolomètre, on peut passer à ce réglage intermédiaire dont je ne saurais évaluer la pertinence. Il s'agit d'optimiser le signal champ proche visible, i.e. le signal collecté par le bolomètre sans filtre additionnel et en présence de la double modulation. Ce réglage est néanmoins indispensable, car souvent en mettant les filtres additionnels, il n'y a plus de signal. On cherche alors à optimiser ce signal en jouant sur les différents vis de réglages proposées plus haut.
- On passe alors à l'optimisation du signal de champ proche THz soit en utilisant une simple modulation par la pointe pour le détecteur HgCdTe, soit en utilisant une double modulation

### *C. PROCÉDURES DE RÉGLAGES OPTIQUES POUR MICROSCOPE EN MODE COLLECTION*133

pointe chopper pour le bolomètre. Dans les deux cas, on réalise à nouveau le réglage récursif proposé plus haut. Pour être plus efficace à cette étape, il est recommandé de faire ce réglage pour plusieurs puissances d'entrée.



---

## Bibliographie

---

- [1] H. Rubens and B.W. Snow. On the refraction of rays of great wavelength in rock salt, and fluorite. *Phil. Mag.*, 35 :35–45, 1894.
- [2] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich. Optical rectification. *Phys. Rev. Lett.*, 9(11) :446–448, december 1962.
- [3] D. H. Auston. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon. *Appl. Phys. Lett.*, 26(3) :101–103, 1975.
- [4] T. Yajima and N. Takeuchi. Far-infrared difference frequency generation by picosecond laser pulses. *Jap. Journ. Appl. Phys.*, 9 :1361–1371, 1970.
- [5] J. R. Morris and Y. R. Shen. Far-infrared generation by picosecond pulses in electro-optical materials. *Opt. Comm.*, 3(2) :81–84, 1971.
- [6] K. H. Yang, P. L. Richards, and Shen Y. R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in linbo3. *Appl. Phys. Lett.*, 19 :320, 1971.
- [7] D. H. Auston, A. M. Glass, and P. LeFur. Tunable far-infrared generation by difference frequency mixing of dye lasers in reduced (black) lithium niobate. *Appl. Phys. Lett.*, 23(1) :47, 1973.
- [8] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith. Picosecond photoconducting hertzian dipoles. *Appl. Phys. Lett.*, 45 :284, 1984.
- [9] D. H. Auston and M. C. Nuss. Electro-optic generation and detection of femtosecond electrical transients. *IEEE J. Quan. Elec.*, 24 :184–197, 1988.
- [10] X.-C. Zhang, Y. Jin, K. Yang, and L. J. Schowalter. Resonant nonlinear susceptibility near the gaas band gap. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :2303–2306, 1992.
- [11] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander. Terahertz optical rectification from (110) zincblende crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 64(11) :1324–1326, 1994.
- [12] B. B. Hu, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith. Free-space radiation from electro-optic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 56 :506–508, 1990.

- [13] X. C. Zhang, X. F. Ma, Y. Jin, T. M. Lu, E. P. Boden, P. D. Phelps, K. R. Stewart, and C. P. Yakymyshyn. Terahertz optical rectification from a nonlinear organic-crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 61 :3080–3082, October 1992.
- [14] A. Schneider, I. Biaggio, and P. Gunter. Optimized generation of thz pulses via optical rectification in the organic salt dast. *Opt. Comm.*, 224(4-6) :337–341, 2003.
- [15] A. Nahata, D. H. Auston, C. J. Wu, and J. T. Yardley. Generation of terahertz radiation from a poled polymer. *Appl. Phys. Lett.*, 67(10) :1358–1360, 1995.
- [16] A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin, and A. Migus. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the midinfrared by optical rectification of 15 fs light-pulses at 100 mhz repetition rate. *Appl. Phys. Lett.*, 67(20) :2907–2909, 1995.
- [17] P. Y. Han, G. C. Cho, and X. C. Zhang. Broad band mid-infrared thz pulse : Measurement technique and applications. *J. Non. Opt. Phys.*, 8(1) :89–105, 1999.
- [18] P. Y. Han and X. C. Zhang. Coherent, broadband midinfrared terahertz beam sensors. *Appl. Phys. Lett.*, 73(21) :3049–3051, 1998.
- [19] T. Armand, V. Blanchet, A. Bonvalet, E. Constant, B. Couillaud, A. Ducasse, B. Girard, C. Hirlimann, M. Joffre, X. Marie, E. Mével, J. Oberlé, C. Rullière, F. Salin, and L. Sarger. *Femtosecond Laser Pulses*. Springer, 2003.
- [20] P. Lefur and D. H. Auston. Kilovolt picosecond optoelectronic switch and pockels cell. *Appl. Phys. Lett.*, 28(1) :21–23, 1976.
- [21] Z. Piao, M. Tani, and K. Sakai. Carrier dynamics and terahertz radiation in photoconductive antennas. *J. J. Appl. Phys.*, 39 :96–100, 2000.
- [22] D. Dragoman and M. Dragoman. Terahertz fields and applications. *Prog. Quan. Elec.*, 28(1) :1–66, 2004.
- [23] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and Y. Cho. Quantum cascade lasers. *Science*, 264 :553–556, 1994.
- [24] J. Faist, F. Capasso, C. Sirtori, D.L. Sivco, J. N. Bailargeon, A.L.Hutchinson, and A.Y. Cho. High power mid infrared qcl operating above room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 68 :3680–3682, 1996.
- [25] J. Faist, F. Capasso, D.L. Sivco, A.L.Hutchinson, and A.Y. Cho. Short wavelength ( $\lambda$  3.4 microns) quantum cascade laser based on strained compensated ingaas-alinas. *Appl. Phys. Lett.*, 72 :680–682, 1998.
- [26] C. Sirtori, P. Kruck, S. Barbieri, P. Collot, J. Nagle, M. Beck, J. Faist, and U. Oesterle. Gaas/alxga(1-x)as quantum cascade lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 73 :3486–3488, 1998.
- [27] J. Faist, L. Ajili, G. Scalari, M. Giovannini, M. Beck, M. Rochat, H. Beere, G. Davies, E. H. Linfield, and D. Ritchie. Terahertz quantum cascade lasers. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 362 :215–231, 2004.

- [28] M. Rochat, J. Faist, M. Beck, U. Oesterle, and M. Illegems. Far-infrared electroluminescence in a quantum cascade structure. *Appl. Phys. Lett.*, 73 :3724–3726, 1998.
- [29] P. Grivet and N. Bloembergen, editors. *Proceedings of the 3rd International Conference on Quantum Electronics*, volume 2. Columbia Univ. Press. New York, 1964.
- [30] E. R. brown, F.W. Smith, and K. A. McIntosh. Coherent millimeter wave generation by heterodyne conversion on lt gaas photoconductors. *J. Appl. Phys.*, 73 :1480–1484, 1993.
- [31] E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis. Photomixing up to 3.8thz in lt gaas. *Appl. Phys. Lett.*, 66 :285–287, 1995.
- [32] K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahon, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz. Terahertz photomixing with diode lasers in low-temperature-grown gaas. *Appl. Phys. Lett.*, 67(26) :3844–3846, 1995.
- [33] S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai. Generation of coherent terahertz radiation by photomixing in dipole photoconductive antennas. *Appl. Phys. Lett.*, 70(5) :559–561, 1997.
- [34] E. R. Caley and J. F. C. Richards. *Theophrastus on Stones*. The Ohio State University, 1956.
- [35] S. B. Lang. Pyroelectricity : from ancient curiosity to modern imaging tool. *Phys. Today*, 58 :31–36, 2005.
- [36] S. P. Langley. *Nature*, 25 :14, 1881.
- [37] T. L. Hwang, S. E. Schwarz, and D. B. Rutledge. Microbolometers for infrared detection. *Appl. Phys. Lett.*, 34 :11, 1979.
- [38] M. J. Griffin and W. S. Holland. The influence of background poqer on the performance of an ideal bolometer. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 9(10) :861–875, 1988.
- [39] P. L. Richards. Bolometers for infrared and millimeter waves. *J. Appl. Phys.*, 76(1) :1–24, 1994.
- [40] H. Kraus. Superconductive bolometers and calorimeters. *Supercond. Sci. Technol.*, 9 :827–842, 1996.
- [41] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Statistical Physics*. Pergamon Press, 1980.
- [42] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Elsevier Science, Second Edition, 2003.
- [43] Q. Wu and X. C. Zhang. Free-space electrooptic sampling of terahertz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 67(24) :3523–3525, 1995.
- [44] J. A. Valdmanis, G. A. Mourou, and C. W. Gabel. Subpicosecond electrical sampling. *IEEE J. Quan. Elec.*, 19(4) :664–667, 1983.
- [45] L.Duvillaret, S. Rialland, and J.-L. Coutaz. Electro-optic sensors for electric field measurements. i. theoretical comparison among different modulation techniques. *JOSA B*, 19(11) :2962, 2002.

- [46] C. Fattering and D. Grischkowsky. Point source terahertz optics. *Appl. Phys. Lett.*, 53(16) :1480, October 1988.
- [47] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer, J. B. Stark, Q. Wu, X. C. Zhang, and J. F. Federici. Coherent terahertz radiation detection : Direct comparison between free-space electro-optic sampling and antenna detection. *Appl. Phys. Lett.*, 73(4) :444–446, 1998.
- [48] W. D. Chen, G. Mouret, J. Burie, and D. Boucher. Detection of carbon dioxide in air using difference-frequency generation based infrared spectrometer. *Int. J. Inf. Milli. Wav.*, 19 :409–417, 1998.
- [49] G. Grüner. *Millimeter and Submillimeter Wave Spectroscopy of Solids*. Springer, 1998.
- [50] S. E. Ralph and D. Grischkowsky. Thz spectroscopy and source characterization by optoelectronic interferometry. *Appl. Phys. Lett.*, 60(9) :1070–1072, March 1992.
- [51] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, and Ch. Fattering. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *JOSA B*, 7(10) :2006–2015, 1990.
- [52] K. P. Cheung and D. H. Auston. Excitation of coherent phonon polaritons with femtosecond optical pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :2152, 1985.
- [53] K. P. Cheung and D. H. Auston. A novel technique for measuring far-infrared absorption and dispersion. *Infrared Phys.*, 26 :23–27, 1986.
- [54] D. M. Middleman, M. Gupta, R. Neelamani, R. G. Baraniuk, J. V. Rudd, and M. Koch. Recent advances in terahertz imaging. *Appl. Phys. B*, 68(6) :1085–1094, 1999.
- [55] B. B. Hu and M. C. Nuss. Imaging with thz waves. *Opt. Lett.*, 20 :1716–1718, 1995.
- [56] D. M. Middleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss. T-ray imaging. *IEEE J. Sel. Top. Quan. Elec.*, 2(3) :679–692, 1996.
- [57] Q. Wu, T. D. Hewitt, and X. C. Zhang. Two-dimensional electro-optic imaging of thz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 69(8) :1026–1028, 1996.
- [58] Z. P. Jiang and X. C. Zhang. Single-shot spatiotemporal terahertz field imaging. *Opt. Lett.*, 23(14) :1114–1116, 1998.
- [59] Z. P. Jiang and X. C. Zhang. Terahertz imaging via electrooptic effect. *IEEE Trans. Micro. Th. Tech.*, 47(12) :2644–2650, 1999. résumé de trois montages expérimentaux : balayage à un point, image avec caméra CCD, image avec système chirpé.
- [60] E. Pickwell, B. E. Cole, A. J. Fitzgerald, M. Pepper, and V. P. Wallace. In vivo study of human skin using pulsed terahertz radiation. *Phys. Med. Bio.*, 49(9) :1595–1607, 2004.
- [61] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer. Progress towards two-dimensional biomedical imaging with thz spectroscopy. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3841–3846, 2002.
- [62] P. Knobloch, C. Schildknecht, T. Kleine-Ostmann, M. Koch, S. Hoffmann, M. Hofmann, E. Rehberg, M. Sperling, K. Donhuijsen, G. Hein, and K. Pierz. Medical thz imaging : an investigation of histo-pathological samples. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3875–3884, 2002.

- [63] P. H. Bolivar, M. Brucherseifer, M. Nagel, H. Kurz, A. Bosserhoff, and R. Buttner. Label-free probing of genes by time-domain terahertz sensing. *Phys. Med. Bio.*, 47 :3815, 2002.
- [64] P. Dumas and L. Miller. Biological and biomedical applications of synchrotron infrared microspectroscopy. *J. Bio. Phys.*, 29 :201, 2003.
- [65] D. M. Mittleman, S. Hunsche, L. Boivin, and M. C. Nuss. T-ray tomography. *Opt. Lett.*, 22(12) :904–906, 1997.
- [66] J. L. Johnson, T. D. Dorney, and D. M. Mittleman. Interferometric imaging with terahertz pulses. *IEEE J. Sel. Top. Quan. Elec.*, 7(4) :592–599, 2001. THz OCT.
- [67] S. Hunsche, M. Koch, I. Brener, and M. C. Nuss. Thz near-field imaging. *Opt. Comm.*, 150(1-6) :22–26, 1998.
- [68] O. Mitrofanov, I. Brener, R. Harel, J. D. Wynn, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and J. Federici. Terahertz near-field microscopy based on a collection mode detector. *Appl. Phys. Lett.*, 77(22) :3496–3498, 2000.
- [69] J. F. Federici, O. Mitrofanov, M. Lee, J. W. P. Hsu, I. Brener, R. Harel, J. D. Wynn, L. N. Pfeiffer, and K. W. West. Terahertz near-field imaging. *Phys. Med. Bio.*, 47(21) :3727–3734, 2002.
- [70] Q. Chen, Z. P. Jiang, G. X. Xu, and X. C. Zhang. Near-field terahertz imaging with a dynamic aperture. *Opt. Lett.*, 25(15) :1122–1124, 2000.
- [71] N. C. J. van der Valk and P. C. M. Planken. Electro-optic detection of subwavelength terahertz spot sizes in the near field of a metal tip. *Appl. Phys. Lett.*, 81(9) :1558–1560, 2002.
- [72] K. L. Wang, D. M. Mittleman, N. C. J. van der Valk, and P. C. M. Planken. Antenna effects in terahertz apertureless near-field optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 85(14) :2715–2717, 2004.
- [73] H.-T. Chen, S. Kraatz, G.C. Cho, and R. Kersting. Identification of a resonant imaging process in apertureless near-field microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :267401–267403, Décembre 2004.
- [74] G. C. Cho, H.-T. Chen, S. Kraatz, Karpowicz N., and Kersting R. Apertureless terahertz near-field microscopy. *Semiconductor Science and Technology*, 20 :S286–s292, July 2005.
- [75] C. Fabre, A. Aspect, and G. Grynberg. *Introduction aux lasers et a l'optique quantique*. Ellipses, 1997.
- [76] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena : Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale*. Academic Press, Boston, 1996.
- [77] Sextant. *Optique experimentale*. Hermann, 1997.
- [78] D. A. Roberts. Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinearoptical crystals : a plea for standardization of nomenclature and conventions. *IEEE J. Quan. Elec.*, 28 :2057, 1992.

- [79] T. Skauli, K. L. Vodopyanov, T. J. Pinguet, A. Schober, O. Levi, L. A. Eyres, M. M. Fejer, J. S. Harris, B. Gerard, L. Becouarn, E. Lallier, and G. Arisholm. Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned gaas and demonstration of highly efficient second-harmonic generation. *Opt. Lett.*, 27 :628, 2002.
- [80] J. S. Aitchison, C. J. Hamilton, M. W. Street, N. D. Whitbread, D. C. Hutchings, J. H. Marsh, G. T. Kennedy, and W. Sibbett. Control of the second- and third-order nonlinearities in gaas/algaas multiple quantum wells. *Pure Appl. Opt.*, 7 :327–333, 1998.
- [81] H. P. Wagner, M. Kuhlnet, W. Langbein, and J. M. Hvam. Dispersion of the second-order nonlinear susceptibility in zn<sub>1-x</sub>te, zn<sub>1-x</sub>se, and zn<sub>1-x</sub>s. *Phys. Rev. B*, 58 :10494, 1998.
- [82] F. Pan, G. Knopfle, Ch. Bosshard, S. Follonier, R. Spreiter, M. S. Wong, and P. Gu nter. Electro-optic properties of the organic salt 4-n,n-dimethylamino-48-n8-methyl-stilbazolium tosylate. *Appl. Phys. Lett.*, 69 :13, 1996.
- [83] P. Y. Han, M. Tani, F. Pan, and X. C. Zhang. Use of the organic crystal dast for terahertz beam applications. *Opt. Lett.*, 25(9) :675–677, 2000.
- [84] W. D. Lawson, S. Nielsen, E. H. Putley, and A. S. Young. Preparation and properties of hgte and mixed crystals of hgte-cdte. *J. Phys. Chem. Solids*, 9(3-4) :325–329, Mars 1959.
- [85] P. Norton. Hg<sub>1-x</sub>cd<sub>x</sub>te infrared detectors. *Opto-electronic review*, 10 :159, 2002.
- [86] J. Z. Xu and X. C. Zhang. Optical rectification in an area with a diameter comparable to or smaller than the center wavelength of terahertz radiation. *Opt. Lett.*, 27(12) :1067–1069, 2002.
- [87] G. L. Dakovski, B. Kubera, and J. Shan. Localized terahertz generation via optical rectification in zn<sub>1-x</sub>te. *JOSA B*, 22(8) :1667–1670, 2005.
- [88] V. Y. Gaivoronskii, M. M. Nazarov, D. A. Sapozhnikov, E. V. Shepelyavyi, S. A. Shkel'nyuk, A. P. Shkurinov, and A. V. Shuvaev. Competition between linear and nonlinear processes during generation of pulsed thz radiation in a zn<sub>1-x</sub>te crystal. *Quantum Electronics*, 35 :407–414, 2005.
- [89] J. L. Reno and E. D. Jones. Determination of the dependence of the band gap energy on composition cd<sub>1-x</sub>zn<sub>x</sub>te. *Phys. Rev. B*, 45 :1440, 1992.
- [90] E. D. Palik, editor. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1998.
- [91] Q. Chen and Z.-C. Zhang. Polarization modulation in optoelectronic generation and detection of terahertz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :3435, 1999.
- [92] A. Bonvalet. *Spectroscopie infrarouge femtoseconde : étude, développement et applications*. PhD thesis, Laboratoire Optique et Biosciences, Ecole Polytechnique, 1997.
- [93] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X.-C. Zhang. Distorsion of thz pulses in electro-optic sampling. *JOSA B*, 15 :1795, 1998.

- [94] R. Huber, A. Brodschelm, T. Tauser, and A. Leitenstorfer. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 thz. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :3191–3193, 2000.
- [95] R. Carminati. *Analyse de la formation des images en optique de champs proche*. PhD thesis, EM2C Ecole Centrale Paris, 1996.
- [96] A. J. den Dekker and A. van den Bos. Resolution : a survey. *J. Opt. Soc. Am. A*, 14 :547–557, 1997.
- [97] W. V. Houston. A compound interferometer for fine structure work. *Phys. Rev.*, 29 :478, 1927.
- [98] E. H. Synge. A suggested method for extending the microscopic resolution into the ultramicroscopic region. *Phil. Mag.*, 6 :356, 1928.
- [99] E. A. Ash and G. Nicholls. Super-resolution aperture scanning microscope. *Nature*, 237(5357) :510–512, 1972.
- [100] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 49(1) :57, 1982.
- [101] G. Binnig, C.F. Quate, and C.H. Gerber. Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 56(9) :930–933, 1986.
- [102] D.W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz. Optical stethoscopy : image recording with resolution  $\lambda/20$ . *Appl. Phys. Lett.*, 44 :651–653, 1984.
- [103] E. Betzig, A. Lewis, A. Harootunian, M. Isaacson, and E. Kratschmer. Near-field scanning optical microscopy (nsom), development and biophysical applications. *Biophysical Journal*, 49 :269–279, 1986.
- [104] E. Betzig, M. Isaacson, and A. Lewis. Collection mode near-field scanning optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 51 :2088, 1987.
- [105] E. Betzig and R.J. Chichester. Single molecules observed by near-field scanning optical microscopy. *Science*, 262 :1422–1425, 1993.
- [106] A.C. Boccara. *Contrat MRT n°88 PO 249 France*, 1988.
- [107] H.K. Wickramasinghe and C.C. Williams. *U.S. Patent n° 947 034*, 1990.
- [108] S. Ducourtieux, V.A. Podolskiy, S. Grésillon, S. Buil, B. Bernini, P. Gadenne, A.C. Boccara, J.-C. Rivoal, W.D. Bragg, K. Banerjee, V.P. Safonov, V.P. Drachev, Z.C. Ying, A.K. Sarychev, and V.M. Shalaev. Near-field optical studies of semicontinuous metal films. *Phys. Rev. B*, 64(16) :165403, 2001.
- [109] B. Knoll and F. Keilmann. Near-field probing of vibrational absorption for chemical microscopy. *Nature*, 399 :134–137, 1999.
- [110] N. Hayazawa, A. Tarun, Y. Inouye, and S. Kawata. Near-field enhanced raman spectroscopy using side illumination optics. *J. Appl. Phys.*, 92(12) :6983–6986, 2002.

- [111] S. Grésillon. *Microscopie en champ proche par transmission avec une sonde métallique : exaltation de champ et spectroscopie de nanoparticules*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Juillet 1999.
- [112] S. Ducourtieux. *Spectroscopie de nanoparticules isolées : étude par microscopie optique en champ proche*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2001.
- [113] F. Buergens, R. Kersting, and H.-T. Chen. Terahertz microscopy of charge carriers in semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :112115, 2006.
- [114] R.C. Gonzales and R. E. Woods. *Digital Image Processing*. Prentice Hall, 2002.
- [115] S. Bres, J.M. Jolion, and F. Lebourgeois. *Traitement et Analyse des Images Numériques*. Hermès, 2003.
- [116] J.J. Bowman, T. B. A. Senior, and L. E. Uslenghi. *Electromagnetic and acoustic scattering by simple shapes*. Hemisphere Publishing Corporation, 1987.
- [117] R. Carminati, A. Madrazo, M. NietoVesperinas, and J. J. Greffet. Optical content and resolution of near-field optical images : Influence of the operating mode. *J. Appl. Phys.*, 82(2) :501–509, 1997.
- [118] R. Lecaque, S. Grésillon, N. Barbey, R. Peretti, J.C. Rivoal, and C. Boccara. Thz near-field optical imaging by a local source. *Opt. Comm.*, 262 :125–128, 2006.
- [119] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. J.Wiley & Sons, New York, 1983.
- [120] C. Matzler. Matlab functions for mie scattering and absorption. Research Report 2002-08, Institut für Angewandte Physik, University of Bern - CH, Sidlerstrasse 5 CH-3012 Bern Schweiz, 2002.



## Résumé

Le domaine terahertz ou THz (0.1 THz à 10 THz) connaît depuis une dizaine d'années un fort développement technologique et applicatif. En effet, l'introduction de sources continues et impulsionnelles puissantes, cohérentes, fiables et robustes a montré le potentiel de cette thématique de recherche dans des domaines aussi variés que l'optique théorique, la détection de polluants et substances toxiques, ou l'imagerie biomédicale. L'imagerie THz, notamment, possède un fort pouvoir attractif, grâce à ses photons non invasifs et non destructifs. Mais la diffraction limite la résolution à une valeur voisine de la longueur d'onde (300 microns environ). Il existe néanmoins des techniques dites de champ proche optique, permettant de dépasser cette limite. Ce que nous avons réalisé durant ce travail de thèse a été de combiner le contraste novateur lié au domaine THz, aux techniques performantes et super-résolvantes de la microscopie optique de champ proche.

Dans un premier temps, nous avons développé une source IR/THz large bande, compacte, et polyvalente, dont la méthode de génération est la rectification optique. La source IR/THz locale sub-longueur d'onde éclaire in situ un échantillon placé juste après le cristal. Plusieurs échantillons métalliques et diélectriques ont alors été imagés mettant en évidence une résolution sub-longueur d'onde dans le domaine THz. Parallèlement, une étude théorique a permis de comprendre les mécanismes de formation des images dans le microscope.

Dans un second temps, une autre version du microscope optique de champ proche, fonctionnant dans un mode dit sans ouverture a aussi été élaboré. Cette configuration a permis d'atteindre une résolution inférieure au micron dans le domaine THz, grâce à l'utilisation d'une pointe métallique comme diffuseur des ondes évanescentes. Cette technique de microscopie à pointe, couplée à une microscopie à force atomique fournit alors un double contraste optique et topographique.

### Mots Clefs

- Terahertz
- Microscopie optique de champ proche
- Rectification optique
- Diffraction
- Impulsions femtosecondes