



**HAL**  
open science

# Polarisation des impulsions térahertz et développement de l'imagerie par réflexion interne totale pour l'étude d'objets d'intérêt biologique

Antoine Wojdyla

► **To cite this version:**

Antoine Wojdyla. Polarisation des impulsions térahertz et développement de l'imagerie par réflexion interne totale pour l'étude d'objets d'intérêt biologique. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT: . pastel-00652969

**HAL Id: pastel-00652969**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00652969>**

Submitted on 16 Dec 2011

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

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



## THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

Spécialité : *Physique*

par

**Antoine WOJDYLA**

Titre :

**POLARISATION DES IMPULSIONS TÉRAHERTZ ET  
DÉVELOPPEMENT DE L'IMAGERIE PAR RÉFLEXION INTERNE  
TOTALE POUR L'ÉTUDE D'OBJETS D'INTÉRÊT BIOLOGIQUE**

effectuée au Laboratoire d'Optique et Biosciences  
et soutenue publiquement le 17 Novembre 2011

devant le jury composé de :

M. Antonello DE MARTINO,	LPICM, Palaiseau	Président
Mme Juliette MANGENEY	IEF, Orsay	Rapporteur
M. Jean-François LAMPIN	IEMN, Villeneuve d'Ascq	Rapporteur
Mme Marie-Pierre FONTAINE-AUPART	ISMO, Orsay	Examineur
M. Robin BOCQUET	LCPA, Dunkerque	Examineur
M. Guilhem GALLOT	LOB, Palaiseau	Directeur de thèse



À Paul et Gilbert,  
mes deux lumières.



# Remerciements

La thèse a été pour moi une période de joie, autant pour le plaisir que j'ai pu éprouver à exercer les sciences par la pratique que grâce à la rencontre de personnes formidables avec qui j'ai pu discuter, débattre, râler et rêver.

Aussi, c'est dans ces lignes que je veux exprimer —librement et sincèrement— ma gratitude à l'égard de personnes qui me sont chères.

Je veux tout d'abord remercier les membres de mon jury de thèse, Antenello De Martino, Juliette Mangeney, Jean-François Lampin, Marie-Pierre Fontaine-Aupart et Robin Bocquet, de m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury de thèse, mais également pour leur lecture minutieuse du présent manuscrit, la subtilité de leurs questions et les riches conversations que j'ai pu entretenir avec eux à l'occasion de conférences.

Un grand merci à Guilhem, mon directeur de thèse qui m'a accueilli de la meilleure façon possible ; il a su me donner sa confiance tout en sachant très exactement comment me remettre dans le droit chemin lorsque je divaguais. Merci également à Alexander, qui m'a aidé à faire mes gammes THz, et dont l'humour acerbe masque si bien la grande générosité.

Je veux remercier tous les membres du Laboratoire d'Optique et Biosciences, avec qui j'ai partagé trois années formidables et qui me laissent la tête pleine de science et de passion : Jean-Louis Martin pour son accueil au sein du laboratoire, Jean-Marc, pour la confection des nombreux éléments nécessaires à la réalisation de mes travaux de thèse (et qui a bien voulu vêtir une casquette d'opticien à quelques occasions), Xavier et Isabelle pour leur aide tout au long de ma thèse, Rivo pour la révision de quyen, ainsi qu'à Laure et Christelle qui ont permis que tout se déroule sans accroc aucun.

Merci à Cédric, Marten et Ursula d'avoir fait naître en moi une passion pour le Tirol de nuit.

Pour leurs qualités scientifiques, leur bienveillance et les nombreuses pistes qu'ils m'ont permis de débroussailler, je veux remercier Adeline, Emmanuel, François, Manuel et Marie-Claire.

Merci à Paul et Silvan, Delphine et Nicolas de m'avoir fait partager les fruits de leur recul sur les sciences et qui m'ont permis de ne faire attention qu'aux nombreux aspects positifs. Merci à Lucille pour la reprise du Cinéclob, ainsi qu'aux autres thésards du laboratoire pour leur jovialité : Laura l'italienne et Laura l'espagnole, Mai-Thu, Markus et Rachid.

Merci à mes collègues de bureau Ivan, Pierre, Stéphane et Thibault pour leur bonne humeur et leur tolérance quant à mes moments de freestyle. Un très grand Merci à Guillaume, pour ces innombrables heures passées à discuter de science et de société(s) dans le bureau, en salle de réunion, dans les wagons de RER et aux tables des bistrots. Je mesure combien son aide a été précieuse pour fixer certaines idées et pour ouvrir de nouvelles voies.

Une thèse en science physique serait très dure à assumer sans financement, et je veux remercier la Région Ile de France pour m'avoir soutenu durant ma thèse et pour son action salutaire dans le domaine des sciences.

J'ai durant cette thèse eu l'occasion d'enseigner dans le cadre d'un monitorat à l'IFIPS/Polytech' Paris-Sud, grâce à la bienveillance de Patrice de Carné, et j'ai eu l'occasion de collaborer avec Cedric Bernez, Bruno Viaris et surtout Pierre Tardiveau que je tiens à tous remercier pour la confiance qu'il m'ont accordé, ainsi qu'Oussama avec qui j'ai pu partager les joies de l'enseignement.

J'ai par ailleurs eu la chance d'encadrer deux étés durant des stagiaires américains, Alexander Fisher et Hilary Jacks, des personnes formidables qui ont transformé la vision franchouillarde que j'avais des américains, et avec qui travailler fut un réel plaisir.

Je veux profiter de ce temps qui m'est donné pour dresser un hommage aux professeurs qui m'ont permis d'organiser mes pensées et pour qui j'ai un respect immense : Mmes et MM. Bichara, Cecere, Huard, Kakouridis, Lequime, Milleur, Prestel, Réfregier, Villard, et bien d'autres encore.

Merci à mes parents, d'outremer et d'ici, qui m'ont permis de réaliser et d'être tout ce dont j'avais envie : vivre dans la science et en laisser perdurer l'ivresse.

Le domaine térahertz n'aime pas l'eau et s'apparente parfois à désert aride<sup>1</sup> ; j'ai eu la fortune de pouvoir l'arpenter en compagnie de Julien, un type un peu cinglé comme moi. Souvent nous nous sommes demandé : "Cette voie est-elle la bonne ?". Comme nous sommes tous deux arrivés à destination, il semblerait que oui... Merci, merci à toi, merci !

Mes derniers remerciements vont à Virginie, joli petit oiseau dont les pioupious ont fait de moi un tigre bondissant, et de nous les monarques d'un monde de bisounours.

Merci à tous, c'était impec !

---

1. un peu comme dans le film "Gerry", sauf qu'à la fin, les deux s'en sortent bien !

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Le domaine térahertz</b>	<b>13</b>
1.1	Situation du domaine térahertz . . . . .	15
1.2	Principaux domaines d'application des ondes térahertz . . . . .	17
1.2.1	Spectroscopie . . . . .	17
1.2.2	Astronomie . . . . .	18
1.2.3	Télécommunications . . . . .	18
1.2.4	Sécurité . . . . .	19
1.2.5	Imagerie et conservation . . . . .	20
1.2.6	Métamatériaux, cristaux photoniques et plasmons-polaritons de surface . . . . .	20
1.2.7	Physique picoseconde . . . . .	20
1.2.8	Applications industrielles . . . . .	21
1.3	Génération et détection dans le domaine térahertz . . . . .	21
1.3.1	Les sources de rayonnement térahertz . . . . .	21
1.3.2	Détection du rayonnement térahertz . . . . .	24
1.4	Éléments théoriques . . . . .	26
1.4.1	Équations de Maxwell . . . . .	27
1.4.2	Équations constitutives du milieu . . . . .	27
1.4.3	Transformée de Fourier . . . . .	28
1.4.4	Signal analytique et transformée de Hilbert . . . . .	31
<b>2</b>	<b>Les impulsions térahertz</b>	<b>33</b>
2.1	Génération et détection par photo-commutation . . . . .	35
2.1.1	Anatomie d'une impulsion térahertz . . . . .	38
2.1.2	Analyse du système . . . . .	39
2.1.3	Conclusion sur la caractérisation des systèmes de spectroscopie par domaine temporel . . . . .	50
2.2	Spectroscopie . . . . .	50
2.2.1	Mesure de spectres . . . . .	51
2.3	Les matériaux du domaine THz . . . . .	55
2.3.1	Les plastiques . . . . .	55
2.3.2	Les liquides . . . . .	56
2.3.3	Les verres et les cristaux . . . . .	57
2.3.4	Les semi-conducteurs . . . . .	57
2.3.5	Les composants optiques pour le domaine THz . . . . .	57
2.4	Phase des impulsions térahertz . . . . .	58

2.4.1	Phase spectrale . . . . .	58
2.4.2	Phase temporelle . . . . .	59
2.4.3	Phase Porteuse-Enveloppe (CEP) . . . . .	61
2.4.4	Chirp intrinsèque d'une impulsion térahertz . . . . .	67
<b>3</b>	<b>Polarisation des impulsions térahertz</b>	<b>71</b>
3.1	La polarisation . . . . .	73
3.1.1	Les états de polarisation remarquables . . . . .	74
3.1.2	Formalismes mathématiques . . . . .	76
3.1.3	Manifestation des effets de la polarisation . . . . .	81
3.1.4	Polariser une onde monochromatique . . . . .	84
3.2	Détection des deux composantes de polarisation dans le domaine THz . . . . .	85
3.3	Polariser rectilignement une impulsion Terahertz . . . . .	89
3.3.1	Coefficients de Fresnel et angle de Brewster . . . . .	89
3.3.2	Influence de l'orientation d'un wafer en silicium sur une impulsion térahertz . . . . .	92
3.3.3	Polariseur linéaire achromatique . . . . .	94
3.4	Polariser circulairement une impulsion THz . . . . .	98
3.4.1	Réflexion interne totale . . . . .	99
3.4.2	Prisme quart d'onde achromatique . . . . .	103
3.4.3	Étude du prisme quart d'onde en rotation . . . . .	103
3.4.4	Analyse complémentaire des états de polarisation dans le domaine temporel . . . . .	109
3.5	Discussion et conclusion du chapitre . . . . .	112
<b>4</b>	<b>Imagerie térahertz et application à biologie</b>	<b>115</b>
4.1	Intérêt de l'imagerie dans le domaine térahertz . . . . .	117
4.2	Imagerie à l'aide d'impulsions THz résolues en temps . . . . .	119
4.2.1	Imagerie en transmission . . . . .	120
4.2.2	Imagerie en réflexion . . . . .	122
4.2.3	Extraction des contrastes . . . . .	127
4.2.4	Traitement et filtrage . . . . .	129
4.3	Les limitations des procédés d'imagerie . . . . .	130
4.3.1	Critère de Rayleigh . . . . .	130
4.3.2	Temps d'acquisition . . . . .	131
4.4	L'imagerie térahertz en biologie . . . . .	131
4.4.1	L'absorption de l'eau . . . . .	132
4.4.2	Contraste ionique . . . . .	134
4.4.3	Comparaison de la sensibilité aux ions en solution des différentes modalités d'imagerie . . . . .	135
4.5	Imagerie par réflexion interne totale . . . . .	136
4.5.1	Configuration pour la réflexion interne totale . . . . .	137
4.5.2	Onde évanescente . . . . .	137
4.5.3	Focalisation du faisceau térahertz à travers une interface . . . . .	139
4.5.4	Mobilité de l'échantillon et pastille de silicium . . . . .	141
4.5.5	Étude d'un objet de phase : la croix gravée sur de l'aluminium . . . . .	142
4.5.6	Étude d'un objet menant à une réflexion interne atténuée : une goutte d'eau . . . . .	143
4.5.7	Spectroscopie par réflexion totale atténuée . . . . .	144

4.5.8	Concentrations en ions dans les cellules et échanges avec le milieu extérieur . . . .	147
4.5.9	Nerf sciatique de grenouille . . . . .	147
4.5.10	Imagerie de couche cellulaire . . . . .	149
4.5.11	Résolution longitudinale du procédé d'imagerie par réflexion interne totale . . . .	149
4.5.12	Conclusions et perspectives . . . . .	153
<b>A</b>	<b>Modélisation numérique d'une impulsion THz</b>	<b>159</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>162</b>



# Introduction

L'étude de la matière au travers de ses interactions avec la lumière est depuis longtemps pour l'homme un moyen privilégié de comprendre le monde qui l'entoure, que ce soit à l'œil nu ou au travers d'un microscope. Elle permet d'analyser ce qui compose la matière et de comprendre comment ses constituants interagissent et s'arrangent entre eux.

Cela est vrai en particulier pour l'étude du vivant, où l'examen par des techniques optiques permet d'appréhender une part importante des mécanismes biologiques. Ces connaissances servent ensuite à identifier certains dysfonctionnements (imageries biologique et médicale) et à étudier les interactions avec d'autres composés, comme pour la mise au point de traitements médicaux.

D'un autre côté, certains verrous technologiques ont récemment été levés, permettant d'accéder à une partie du spectre électromagnétique jusque-là inexplorée, le domaine térahertz. Il s'agit par conséquent d'un champ d'étude encore plein de promesses, ce qui nous laisse entrevoir nombre de nouvelles découvertes. L'objet de cette thèse sera donc de chercher et de développer de nouveaux outils pour la biologie en utilisant les rayonnements térahertz.

Il nous faudra dans un premier temps cerner quelles sont les propriétés particulières du domaine térahertz, pour bien identifier ses atouts dans l'étude de la matière en général. Partant du constat que les propriétés des structures chirales permettent de distinguer les matériaux biologiques des composés inertes, nous serons amenés à étudier la polarisation des ondes électromagnétiques, paramètre sensible à l'asymétrie du vivant. Nous verrons comment aborder l'aspect vectoriel des ondes lorsque l'on s'intéresse à des impulsions térahertz ultra-courtes, quels sont les problèmes qui se posent et quelles solutions nous pouvons y apporter, pour éventuellement s'en servir afin d'étudier la matière vivante.

Une seconde caractéristique des objets biologiques est qu'ils sont principalement constitués d'eau ; or il s'avère que les interactions entre l'eau et les ions en solution dans le domaine térahertz sont complexes. Nous verrons qu'il s'agit là d'une nouvelle source de contraste pour l'imagerie, mais également comment il est possible d'en tirer parti malgré la forte absorption de l'eau dans cette gamme spectrale. Nous développerons pour cela une nouvelle technique d'imagerie qui s'appuiera sur les connaissances acquises lors de l'étude de la polarisation.

Ce manuscrit se divise donc de la manière suivante :

- Nous commencerons par présenter le domaine THz, situé entre le domaine de l'optique et celui des ondes radio-fréquences, dont il partage certains aspects. Nous verrons quels avantages ce caractère hybride lui confère en recensant les principales applications pour lesquelles les ondes térahertz sont utilisées, et quelles sont les solutions technologiques employées pour en tirer parti. Nous effectuerons un rappel de quelques éléments théoriques nécessaires à l'analyse des impulsions térahertz.

- Nous verrons ensuite dans le second chapitre comment l'on peut générer des impulsions térahertz et mesurer leur champ électrique avec une résolution temporelle. Cela qui nous permettra de déterminer directement l'amplitude et la phase des ondes, et nous inspecterons en quoi cela modifie la manière d'aborder l'étude des matériaux. Nous analyserons les caractéristiques et les performances des systèmes de spectroscopie térahertz de domaine temporel, avant d'en illustrer quelques applications pratiques. Le concept de phase d'une onde en régime impulsionnel sera détaillé, car elle présente une composante essentielle de la notion de polarisation.
- Le troisième chapitre portera ainsi sur l'étude de l'aspect vectoriel des impulsions térahertz. Cela nous permettra d'avoir une connaissance complète de la structure de l'onde et nous développerons les outils nécessaires à la maîtrise de l'état de polarisation des impulsions. Nous verrons comment il est possible d'utiliser certaines particularités des réflexions diélectriques pour s'accommoder l'aspect très large bande des impulsions térahertz.
- L'imagerie dans le domaine térahertz sera l'objet du dernier chapitre. Nous passerons en revue les techniques existantes, avant de présenter une nouvelle technique d'imagerie utilisant le phénomène de réflexion interne totale pour contourner certaines difficultés inhérentes à l'étude des objets biologiques. Nous étudierons sa mise en œuvre expérimentale et nous l'utiliserons pour imager des objets, d'abord inertes puis vivants.

# Chapitre 1

## Le domaine térahertz

"God runs electromagnetics by wave theory on Monday, Wednesday, and Friday, and the Devil runs them by quantum theory on Tuesday, Thursday, and Saturday"

- Sir William Bragg

*Le domaine des ondes térahertz se situe entre celui des ondes radars et celui de l'infrarouge. Cette situation lui confère des propriétés singulières et nous passerons en revue les champs d'étude qui tirent un avantage de leur extension dans cette gamme spectrale.*

*Nous verrons que les raisons de l'intérêt récent porté aux ondes térahertz sont en partie reliées aux méthodes de génération et de détection de ces ondes qui se distinguent des celles utilisées dans les domaines connexes. Nous analyserons les difficultés que l'on rencontre lors de la génération et de la détection de ces ondes, et quelles sont les solutions proposées pour les contourner.*

*Nous finirons par effectuer quelques rappels théoriques, afin de composer la boîte à outils mathématiques qui nous servira pour avancer dans nos discussions ultérieures.*

## Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Situation du domaine térahertz . . . . .</b>	<b>15</b>
<b>1.2</b>	<b>Principaux domaines d'application des ondes térahertz . . . . .</b>	<b>17</b>
1.2.1	Spectroscopie . . . . .	17
1.2.2	Astronomie . . . . .	18
1.2.3	Télécommunications . . . . .	18
1.2.4	Sécurité . . . . .	19
1.2.5	Imagerie et conservation . . . . .	20
1.2.6	Métamatériaux, cristaux photoniques et plasmons-polaritons de surface . . . . .	20
1.2.7	Physique picoseconde . . . . .	20
1.2.8	Applications industrielles . . . . .	21
<b>1.3</b>	<b>Génération et détection dans le domaine térahertz . . . . .</b>	<b>21</b>
1.3.1	Les sources de rayonnement térahertz . . . . .	21
1.3.2	Détection du rayonnement térahertz . . . . .	24
<b>1.4</b>	<b>Éléments théoriques . . . . .</b>	<b>26</b>
1.4.1	Équations de Maxwell . . . . .	27
1.4.2	Équations constitutives du milieu . . . . .	27
1.4.3	Transformée de Fourier . . . . .	28
1.4.4	Signal analytique et transformée de Hilbert . . . . .	31

---

## 1.1 Situation du domaine térahertz

Les ondes térahertz (THz) sont des ondes électromagnétiques dont la fréquence d'oscillation est comprise entre 300GHz et 30THz<sup>1</sup> :

$$1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz} = 1\,000\,000\,000\,000 \text{ Hz}$$

Ce domaine de fréquence se situe donc entre les domaines des ondes radio-fréquences (jusqu'au fréquences radars) et de l'infrarouge (figure 1.1) ; cette situation est à l'origine de deux dénominations alternatives : les scientifiques de culture radio-fréquence parlent d'**ondes submillimétriques**, tandis que ceux versés dans l'optique préféreront parler d'**infrarouge lointain**.

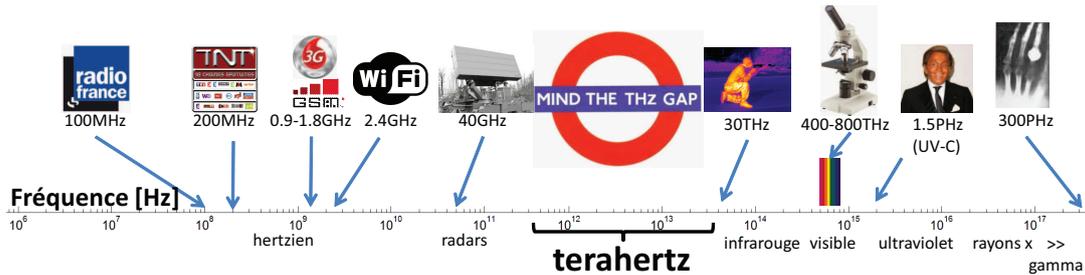


FIGURE 1.1 – Situation du domaine térahertz dans le spectre électromagnétique.

Ces deux décades de fréquence ne sont réellement étudiées que depuis une vingtaine d'années, en raison des difficultés technologiques qui rendaient difficiles tant la génération que la détection des ondes dans cette gamme de fréquence désignée jusqu'alors **fossé térahertz** (*THz gap* en anglais). Depuis, de nombreuses techniques sont apparues permettant de tirer profit des propriétés de ces ondes, notamment pour la spectroscopie et l'imagerie. Pour se placer dans le contexte, rappelons les grandeurs caractéristiques des radio-fréquences et de l'optique par rapport à celles du domaine térahertz dans la table 1.1.

TABLE 1.1 – Grandeurs caractéristiques comparées des différents domaines de fréquence

gamme spectrale		Micro-ondes (Wi-Fi)	THz (TDS)	Visible (laser He-Ne)
fréquence	[ THz ]	0.00245	1	474
énergie du photon	[ meV ]	0.01	4.1	1960
température de corps noir	[ K ]	0.02	10	4500
nombre d'onde	[ cm <sup>-1</sup> ]	0.082	33.3	15 800
période	[ ps ]	409	1	0.002
longueur d'onde	[ μm ]	122 000	300	0.633

Ces difficultés technologiques sont à rapprocher de la dualité onde-corpuscule des phénomènes électromagnétiques. En effet, dans le domaine des ondes radio-fréquences il est usuel de raisonner en terme de comportement ondulatoire (étude de l'**amplitude et la phase**), tandis qu'en optique ce sont plutôt les phénomènes quantiques qui dirigent l'attention (étude de l'**intensité** des faisceaux lumineux, reliée à aux quanta d'énergie que transportent les photons). Le prolongement des techniques de génération électronique aux fréquences térahertz est rendue difficile par une chute du rendement des instruments ; c'est le bruit thermique qui va lui limiter les possibilités d'extension des méthodes optiques au domaine

1. L'étendue du domaine THz est sujet à discussion, voir [Abbott et Zhang, 2007].

de l'infrarouge lointain.

Lorsque l'on s'intéresse aux basses fréquences, la génération des ondes se fait traditionnellement en laissant osciller des électrons dans un conducteur pour les faire rayonner un champ électrique **cohérent** dans tout l'espace. Ces **ondulations** sont suffisamment lentes pour permettre aux dispositifs technologiques de mesurer directement le champ électrique et ainsi de déterminer l'amplitude et phase de l'onde. Le codage de la phase permet de transmettre et de recevoir des informations, tandis que la faible directivité de ces ondes permet d'atteindre un grand volume de l'espace. Ces caractéristiques expliquent pourquoi les ondes radio-fréquences sont un outil de choix pour les télécommunications (*Wi-Fi*, *GSM*, radio *FM*) et pour la détection à distance (radars). Cependant, les grandes longueurs d'ondes qui leur sont associées rendent très difficile leur emploi à des fins d'imagerie, car les phénomènes de diffraction limitent fortement leur pouvoir de résolution.

De l'autre côté du spectre on retrouve le domaine de l'optique, dans lequel on ne cherche plus à générer directement des ondulations du champ électrique mais des photons qui sont en général issus de phénomènes de désexcitation de niveaux électroniques, ce qui ressort des mécanismes utilisés pour l'émission de lumière :

- le rayonnement du corps noir, qui est à l'origine du fonctionnement des lampes à filament, fait intervenir la notion de quantum d'énergie (cela a même constitué un des points de départ du développement de la mécanique quantique),
- les lampes à décharge (lampes à sodium de l'éclairage urbain, "néons" et lampes fluo-compactes) dont les raies spectrales sont un témoignage des différents niveaux électroniques,
- les lasers dont le principe de base tient dans la désexcitation forcée des niveaux électroniques après inversion de population.

La détection de la lumière en optique s'effectue à l'aide de **détecteurs quadratiques** qui mesurent l'**intensité** du champ électrique, et non le champ électrique lui-même. On perd ainsi l'information de phase (que l'on peut parfois retrouver par des procédés interférométriques), d'autant que les champs générés sont pour la plupart incohérents.

En revanche, les propriétés très marquées des matériaux ainsi que les longueurs d'ondes micrométriques associées au domaine optique le rendent très utile pour l'étude de la matière ainsi que pour l'imagerie (et accessoirement pour la vision humaine).

## Pourquoi s'intéresser au domaine térahertz ?

La situation du domaine térahertz lui permet de tirer parti des avantages des deux domaines qui le jouxtent.

Venant de l'optique, on s'attend à ce que ses longueurs d'ondes submillimétriques nous permettent de faire de l'imagerie adaptée à l'étude des objets de petite taille (voir la figure 1.2). En outre, la **diffusion de la lumière** par les inhomogénéités de surface ou de volume des matériaux aura un impact bien plus limité dans le domaine térahertz.

Des radio-fréquences, nous utiliserons la possibilité de générer des **impulsions** et d'effectuer des **détections résolues en temps du champ électrique**, ce qui nous permet d'employer des **approches nouvelles** dans l'étude de la matière et des structures en utilisant des outils issus d'autres domaines que l'optique, tels que l'échographie ou la sismologie.

Plus généralement, nous sommes en mesure d'espérer que les matériaux aient des **propriétés phy-**



FIGURE 1.2 – Une pièce de un euro vue à la fréquence de 2 THz , pour illustrer la résolution des ondes térahertz (Données collectées en réflexion par J. Labaune (LOA/C2RMF)).

siques caractéristiques dans ce domaine spectral : deux décades de fréquences peu explorées laissent la place à des découvertes nouvelles sur bien des aspects.

## 1.2 Principaux domaines d’application des ondes térahertz

Les spécificités des ondes térahertz qui viennent d’être exposées sont à l’origine d’un certain nombre d’applications qui en tirent parti avec succès. Exposons ici quelles sont les applications qui semblent le plus soutenir l’attention des mondes académique et industriel [Coutaz, 2008]. Gardons toutefois à l’esprit que les technologies utilisées sont encore peu matures et qu’il subsiste encore de nombreux obstacles, notamment en termes de puissance émise et de temps de mesure.

### 1.2.1 Spectroscopie

La spectroscopie est l’un des premiers domaines d’applications des ondes THz. Dans le domaine THz se situent de nombreuses raies spectrales qui permettent d’identifier et d’analyser les matériaux. Les molécules présentent un bon nombre de mouvements rotationnels à ces fréquences (figure 1.3). Il est donc possible de discriminer les composés chimiques d’un mélange par l’intermédiaire de leurs signatures spectrales.

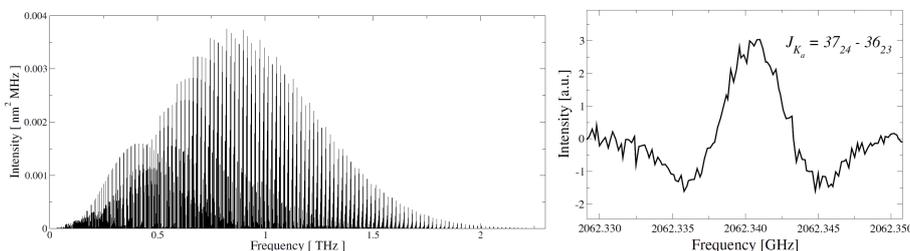


FIGURE 1.3 – Spectre THz du méthoxyméthane ( $\text{CH}_3\text{OCH}_3$ ) résolu au MHz, (extrait de [Endres et al., 2009]).

Différentes techniques de spectroscopie coexistent. Parmi elles :

- La spectroscopie par domaine temporel (TDS, pour *Time-Domain Spectroscopy*) permet de connaître les propriétés des matériaux sur une large gamme de longueur d’onde, avec cependant des résolutions limitées [Grishkowsky et al., 1990].

- Les dispositifs à détection hétérodynes permettent d’obtenir des résolutions fréquentielles très fines (parfois inférieures à 1 MHz) pour analyser les composés avec une précision de l’ordre de l’élargissement Doppler des raies des gaz à température ambiante. Il est possible d’analyser les composés chimiques présents dans l’atmosphère (e.g. ceux composant la fumée de cigarette, voir [Bigourd et al., 2006]).
- Les dispositifs de spectroscopie par interféromètre à transformée de Fourier permettent également de connaître les caractéristiques spectrales avec une excellente résolution tout en explorant un vaste domaine spectral, la difficulté étant d’arriver à sortir du bruit thermique.

L’étude des molécules chimiques ou biologiques est parfois accompagnée par des simulations numériques *ab initio* qui permettent de prédire leur comportement global (e.g. [Kutteruf, 2003]).

### 1.2.2 Astronomie

En astronomie, la spectroscopie permet de déterminer les composés présents dans l’espace. Ces travaux sont couplés avec ceux menés à terre, notamment dans les synchrotrons, pour recueillir les signatures spectrales des radicaux que les satellites sont susceptibles de détecter. Les faibles températures de l’espace intersidéral (quelques Kelvins) correspondent en outre aux températures de corps noir de la partie basse du domaine THz : on estime que la moitié de la luminosité et 98% des photons émis depuis le big-bang l’ont été dans la gamme 40 – 500  $\mu\text{m}$  (0.06-0.75 THz ) [Leisawitz, 2000].

Les satellites *COBE* (*Cosmic Background Explorer*, 1989) et *WMAP* (*Wilkinson Microwave Anisotropy Probe*, 2001) ont permis de cartographier les fluctuations du fond diffus cosmologique (figure 1.4), prédit par Penzias et Wilson dans les années soixante, vestige du Big Bang dont les fréquences sont de l’ordre de 0.1 THz .

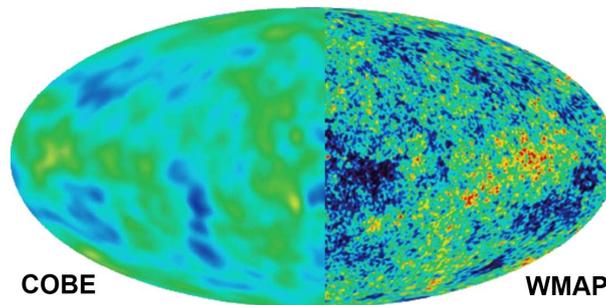


FIGURE 1.4 – Fond diffus cosmologique observé par COBE (1992) et WMAP (2003).

Deux télescopes spatiaux européens équipés de détecteurs THz ont été lancés en 2009 : *Planck* et *Herschel*. *Planck* a pour mission d’affiner les mesures du fond diffus cosmologique, tandis que *Herschel* est lui dédié à l’observation spatiale dans le domaine THz (55-625  $\mu\text{m}$  ) de façon plus générale. Tous deux utilisent des techniques issues des micro-ondes.

### 1.2.3 Télécommunications

Le domaine térahertz peut être vu comme une extension du domaine gigahertz dans lequel on trouve un grand nombre de moyens de télécommunication (*Wi-Fi*, *3G*). La capacité de Shannon d’un canal de communication dépend notamment de la fréquence de transmission, aussi une montée en fréquence permet d’atteindre des débits plus élevés : pour atteindre des débits de l’ordre du téra-bit, il est nécessaire d’avoir recours à des porteuses ayant des fréquences de l’ordre du... térahertz [Huang et Wang,

2011]. Des systèmes basés essentiellement sur des composants électroniques continus de type UTC-PD (*Uni-Travelling Carrier PhotoDiode*) pour moduler des signaux ont été étudiés et montrés [Federici et Moeller, 2010]. Les systèmes de communication sont encore à l'état de démonstrateurs et n'atteignent pour l'heure que des débits de l'ordre de la dizaine de gigabit : durant les jeux olympiques de Pékin (2008), la télévision japonaise *NHK* a réalisé des expériences sur le terrain, en transmettant avec succès des flux vidéos haute-définition non compressés sur une distance de 100 m avec un débit de 10 Gbit/s sur un canal à 120 GHz [Kleine-Ostmann et Nagatsuma, 2011].

Néanmoins, certains aspects pratiques limitent l'utilisation des térahertz pour les télécommunications : la forte absorption atmosphérique ainsi que la faible puissance des sources limite la portée des signaux, tandis que les dispositifs térahertz ne peuvent fonctionner correctement que lorsque émetteur et détecteur sont alignés (configuration *Line of sight*). Les systèmes sont donc peu versatiles et peu adaptés aux moyens de communications classiques, mais peuvent présenter un grand intérêt pour les communications militaires.

### 1.2.4 Sécurité

La sécurité est le seul domaine pour lequel les solutions THz semblent être sorties des laboratoires. Les scanners corporels THz (fonctionnent plutôt dans sa partie basse du spectre, <100 GHz, figure 1.5a) commencent à se généraliser dans les aéroports (40 systèmes installés dans 19 aéroports en 2010, plus de 500 prévus fin 2011<sup>2</sup>).

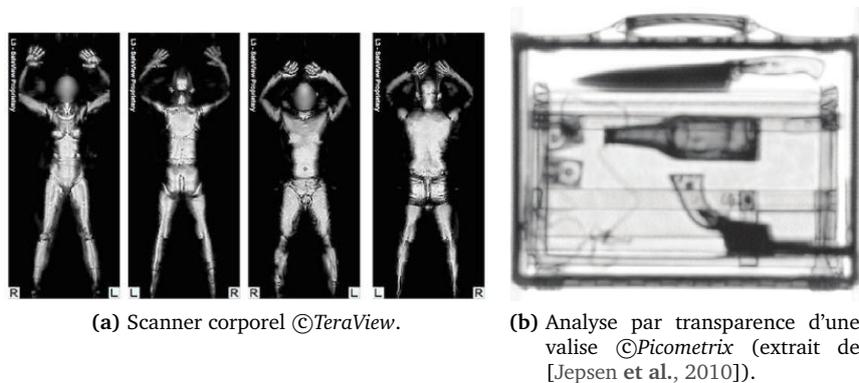


FIGURE 1.5 – Applications des THz à des fins sécuritaires.

Leur essor tient principalement à leur aspect non-ionisant (par opposition aux rayons X) tandis qu'ils permettent de traverser les vêtements et de vérifier que les passagers ne transportent pas d'objets dangereux (figure 1.5b). Ces scanners sont pour l'heure encore assez lents (ils autorisent un débit de 400 passagers par heure), ce qui constitue un frein à leur déploiement.

La poste japonaise a mis en place des prototypes permettant de sonder le contenu des enveloppes afin d'y détecter l'éventuelle présence de drogues (méthamphétamines) tant par diffusion que par absorption dans le domaine THz [Hoshina, 2009].

2. Sources : STAC (02/2010), TSA (03/2010).

### 1.2.5 Imagerie et conservation

Hormis son application à des fins sécuritaires, l'imagerie est utilisée pour l'étude des objets d'art quand les autres techniques d'analyse (optique, IR, X, OCT, Raman, etc.) montrent leurs limites. La résolution que l'on peut obtenir avec les ondes THz est suffisante pour résoudre le coup de crayon ou de pinceau des artistes et la transparence de la plupart des peintures et des argiles en plus d'une faible diffusion permet de lire à travers les matériaux. L'analyse tomographique que permet la résolution temporelle des impulsions THz ouvre la voie à l'analyse des couches superficielles des peintures ou des papyrus pour y déceler les croquis d'artistes [Labaune et al., 2010] ou de connaître la structure des bois utilisés [Jackson et al., 2009] pour les dater. Il est également possible de sonder l'intérieur des amphores afin d'essayer d'en déterminer le contenu.

### 1.2.6 Métamatériaux, cristaux photoniques et plasmons-polaritons de surface

Les métamatériaux suscitent un grand intérêt depuis les travaux de Pendry [Pendry, 2000] qui a montré qu'il était possible d'obtenir des indices de réfraction négatifs et de construire des lentilles parfaites. Ils constituent un domaine très actif de la recherche dans le domaine THz. Les dimensions des métamatériaux étant typiquement sous-longueur d'onde, il est très difficile de les fabriquer aux longueurs d'ondes optiques, tandis que cela devient bien plus commode aux dimensions submillimétriques. Ainsi, de nombreux métamatériaux (figure 1.6) ont été étudiés à ces longueurs d'ondes. Toute une gamme de configuration de type *Split-Ring Resonators* (SRR) a été étudiée [Chen et al., 2007] ; certaines configurations montrent des indices négatifs très élevés [Choi et al., 2011], d'autres des activités optiques induites optiquement [Kanda et al., 2009]. Des effets de réfraction négative ont été montrés par Mendis [Mendis et Mittleman, 2010] sur des structures planaires 2D ; les notions d'angle Brewster et de réflexion interne totale y ont un caractère très singulier.

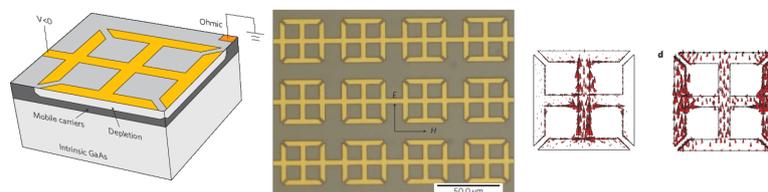


FIGURE 1.6 – Métamatériau conçu pour moduler la phase des rayonnements THz. Design, réalisation et simulation des courants (extrait de [Chen et al., 2009]).

Les fibres photoniques se rapprochent dans l'esprit des métamatériaux. Des structures ont été proposées afin de guider les ondes THz [Atakaramians et al., 2009, Atakaramians et al., 2011]. Il n'y a pour l'heure pas encore de guide d'onde satisfaisant dans ce domaine de longueur d'onde.

Les fréquences plasmas des métaux se situent généralement dans le visible, tant et si bien qu'il n'est pas possible de les utiliser pour exalter les signaux. Une alternative proposée par Ebbesen [Barnes et al., 2003] consiste à se servir de résonances de formes à l'aide de plasmons-polaritons de surface (SPP). Ces résonances, ainsi que des résonances stochastiques qui mènent à des transitions de phase ont notamment été analysées par Masson [Masson, 2007].

### 1.2.7 Physique picoseconde

L'échelle de temps caractéristique des rayonnements THz rend ces derniers très intéressants pour étudier les mécanismes physiques à l'échelle de la picoseconde. Parmi eux, on trouve la physique des

semi-conducteurs dont les charges libres ont des temps de recombinaison de l'ordre de la picoseconde (c'est en partie cela qui rend délicat la réalisation de composants fonctionnant à des fréquences supérieures à 10 GHz). Un autre domaine d'étude très en vogue à l'heure actuelle est le contrôle cohérent des ondes de spins dans les matériaux (anti-)ferromagnétiques par expériences pompe-sonde [Kampfrath et al., 2011].

Les techniques de spectroscopie bidimensionnelle (2D) mettent parfois en jeu des phénomènes se situant dans le domaine THz en empruntant les concepts de la résonance magnétique nucléaire (voir [Belabas, 2002]). Nous avons envisagé de nous y intéresser, mais la nécessité d'avoir recours à un schéma pompe-sonde triple rend ces études particulièrement délicates à mettre en œuvre pour avoir des temps de mesure raisonnables. Dans un même ordre d'idée, Hattori [Hattori, 2010] a présenté une étude de la spectroscopie 2D avec phénomènes non-linéaires dans le domaine THz, ce qui n'est pas à notre portée au vu des faibles puissances que nous sommes en mesure de générer.

### 1.2.8 Applications industrielles

Les procédés industriels mettant en jeu des rayonnements térahertz sont encore en nombre limité. Pour l'heure, les entreprises qui fournissent des solutions THz font valoir leur potentiel pour l'industrie de la papeterie (où la forte sensibilité de ces ondes à la présence d'eau permet de déterminer les taux d'hydratation), l'inspection des semi-conducteurs (dont les ordres de grandeurs picosecondes de durée de vie des porteurs permettent d'inspecter les wafers et estimer les dopages), ou bien encore pour l'analyse des composés médicamenteux. Ces procédés sont encore marginaux, car les vitesses de mesures et l'existence de techniques éprouvées constituent une barrière à la diffusion des technologies THz, sans compter leur faible maturité et les limites liées aux faibles puissances accessibles ainsi qu'à l'absence de détecteurs sensibles à coûts raisonnables.

## 1.3 Génération et détection dans le domaine térahertz

Le domaine térahertz est difficilement accessible à l'aide de sources classiques, tant au niveau de l'émission que de la réception. Pour pouvoir travailler dans cette gamme de fréquence, un certain nombre de techniques ont été développées, chacune présentant leurs avantages et inconvénients. Nous allons présenter succinctement celles qui sont le plus généralement employées.

### 1.3.1 Les sources de rayonnement térahertz

Les sources de rayonnement térahertz sont multiples et nous les séparerons en deux catégories : celles qui produisent des rayonnements **pulsés**, ce qui permet d'avoir accès à des temps de vol au moyen de la mesure du champ électrique et celles qui produisent des rayonnements **continus**, ce qui permet généralement une meilleure finesse dans les mesures spectroscopiques et des puissances plus élevées mieux adaptées à l'imagerie mais pour lesquelles l'information de phase est bien souvent perdue.

#### 1.3.1.1 Génération d'impulsions

La génération d'impulsions THz est intéressante car elle permet d'étudier des phénomènes transitoires et de faire de la tomographie ; leur large spectre est par ailleurs utile pour l'étude des matériaux. Ces méthodes se basent toutes sur l'utilisation de laser femtosecondes (fs) dans le visible-IR.

**Antennes photoconductrices** Les antennes photoconductrices (PCA, pour *Photo-Conductive Antenna*) ont été introduites par Auston [Auston et al., 1984]. Elles se basent sur la création d'un **dipôle hertzien** induit par l'apparition de charges transitoires accélérées dans un champ statique. Les charges sont des photo-porteurs générés par un laser femtoseconde illuminant un substrat semi-conducteur, et le champ statique est imposé par des lignes métalliques gravées sur le substrat. Les semi-conducteurs employés pour la réalisation des antennes sont de natures diverses, selon que l'on souhaite créer des photo-porteurs avec des lasers dans le proche infrarouge ( $\simeq 800$  nm), auquel cas on utilisera préférentiellement du GaAs, ou bien des lasers aux longueurs d'ondes télécoms ( $\simeq 1550$  nm) pour lesquels on utilisera plutôt de l'InGaAs. Il existe un certain nombre de dispositions géométriques pour ces antennes : dipôles, lignes parallèles, réseau inter-digités, etc. ; chacune de ces configurations ayant ses avantages (bande-passante, efficacité de génération, pureté de la polarisation, etc.). Cette technique permet de générer des impulsions de puissance relativement faible (limitée par la puissance du laser incident maximale, qui ne doit pas détruire l'antenne) ; la fréquence est peu accordable, ce qui est compensé en partie par leur caractère très large bande.

Il s'agit de la méthode de génération que nous avons utilisé lors de nos expériences ; nous reviendrons plus en détails sur cette technique dans le chapitre 2.

**Redressement optique dans les cristaux** Les phénomènes non-linéaires qui interviennent lorsqu'un laser femtoseconde interagit avec certains types de cristaux donnent lieu ce que l'on appelle le redressement optique [Bonvalet et al., 1995]. Très succinctement, l'enveloppe des impulsions femtosecondes va servir de support à la génération d'impulsions à des fréquences plus basses (de l'infrarouge proche aux térahertz ; on trouvera une description plus complète dans [Lecaque, 2006]). L'efficacité du procédé diminue à mesure que l'on cherche à générer des fréquences plus basses, si bien que la génération d'impulsions THz est relativement peu efficace. Avec l'utilisation de lasers femtosecondes très intenses (un oscillateur femtoseconde suivi d'une chaîne d'amplification), il est possible d'obtenir des puissances nettement plus élevées que celles générées par antennes photoconductrices. Les cristaux non-linéaires utilisés sont généralement du tellure de Zinc (ZnTe) ou du trifluorure de diéthylaminosulfure (DAST).

En contrôlant l'aspect temporel des faisceaux incidents, il est par ailleurs possible de modifier les propriétés spectrales des impulsions générées [Vidal, 2009], ce qui permet d'avoir une certaine accordabilité en fréquence.

**Filamentation et effet Čerenkov** La focalisation dans l'air d'impulsions très courtes  $< 100$  fs et très énergétiques ( $> 1$  mJ) donne naissance à des plasmas. La compétition entre l'auto-modulation de phase (effet Kerr-optique) et la dispersion par le plasma conduit à la création un filament dans lequel est guidé le faisceau lumineux qui l'entretient en retour. Le front du filament se déplace à la vitesse de la lumière et les dipôles locaux créés par les paires de charges opposées sont à l'origine d'un rayonnement dans le domaine THz dans leur sillage sous forme d'un cône d'émission par effet Čerenkov [D'Amico et al., 2007], équivalent lumineux du bang supersonique.

Houard et son équipe [Houard et al., 2008] ont montré que la présence d'un champ statique à proximité du filament améliorerait grandement l'efficacité de la génération dans le domaine THz (jusqu'à  $\times 1000$ ) et le faisceau était bien plus directif, donc plus adapté pour une utilisation concrète.

De même, les filaments créés par des impulsions bicolores (une impulsion et sa réplique doublée dans du BBO [Dai et al., 2009]) autorisent le contrôle de la polarisation du rayonnement THz émis, tandis que la création de deux filaments côte-à-côte permet de moduler l'intensité émise et d'améliorer l'efficacité

d'émission en réglant le délai ou la distance entre les deux filaments [Durand et al., 2010].

Les méthodes de génération par filamentation présentent en particulier l'intérêt de pouvoir générer des rayonnements THz intenses à distance, cette distance étant déterminée par la focalisation du faisceau laser.

### 1.3.1.2 Génération de rayonnement continu

Les rayonnements continus ont pour avantage d'avoir une bonne finesse spectrale et de générer des puissances plus élevées, ce qui est utile lorsqu'il s'agit de faire de l'imagerie rapide ou de la détection hétérodyne. En revanche, il n'est plus possible de résoudre temporellement le champ électrique, même s'ils sont cohérents. Il y a par ailleurs un compromis entre les fréquences accessibles et les difficultés expérimentales : les composants électroniques ne permettent d'explorer que la partie basse du spectre, tandis que d'autres méthodes nécessitent des conditions d'utilisation cryogéniques ou des installations très coûteuses.

**Diodes Gunn et Schottky, multiplicateur de fréquence** La fréquence des rayonnements dans le domaine des radio-fréquences est limitée par la vitesse de commutation des diodes sur lesquelles ils se basent. Afin d'atteindre les fréquences térahertz, il faut donc faire appel à des dispositifs très rapides. Les diodes Schottky font partie de cette espèce et permettent de générer des rayonnements dans la partie basse du domaine térahertz.

L'utilisation de multiplicateurs de fréquence permet ensuite de grimper en fréquence, pour atteindre la gamme des terahertz.

**Carcinotrons, klystrons et orotrons** Les carcinotrons et leurs homologues utilisent des faisceaux d'électrons qui interagissent avec un réseau métallique au moyen de l'effet Smith-Purcell. La modulation de la vitesse de phase du faisceau va créer un rayonnement THz dans le sens opposé, d'où la terminologie anglaise de *Backward Wave Oscillator* (BWO). Il s'agit d'un cas particulier de l'effet Čerenkov. Ces dispositifs génèrent des faisceaux intenses à basse fréquence, mais la taille des réseaux métalliques qu'il convient d'utiliser à plus haute fréquence limite leur efficacité.

**Laser à cascade quantique et laser LC** Les lasers à cascades quantique (QCL pour *Quantum Cascade Laser*) sont des dispositifs à semi-conducteurs périodiques dont la structure de bande est finement ajustée et contrôlée [Faist et al., 1994]. De telles structures requièrent une précision lors de la réalisation (les couches peuvent n'avoir que quelques nanomètres d'épaisseurs) qui est permise grâce aux techniques d'épitaxie par jet moléculaire (MBE, pour *Molecular Beam Epitaxy*).

Après injections des électrons dans la structure, ceux-ci se désexcitent radiativement de façon périodique (d'où le terme cascade : les électrons produisent l'émission des photons à chaque période). Comme les niveaux de transitions sont déterminés par les structures de bandes, il est possible de générer des photons de l'infrarouge proche au domaine THz. L'émission des QCL est cohérente et puissante, mais généralement continue. De plus, ils requièrent des températures de fonctionnement très basses (souvent proches de 4 K) et il y avait jusqu'alors une limite phénoménologique qui semblait empêcher de monter en température ( $T < h\nu/k_b$ ). Il semblerait que cette limite ne soit pas liée au principe de fonctionnement des QCL lui-même, mais au mode d'injection des électrons par effet tunnel résonnant, qui était jusqu'alors préféré. Il a été montré par Kumar [Kumar et al., 2010] qu'en utilisant d'autres modes

d'injection (ici, assisté par diffusion), il est possible de faire fonctionner des QCL à des températures raisonnables (160 K) tout en restant à de « basses » fréquences (1,8 THz).

Les lasers à cascades quantiques peuvent être utilisés pour amplifier des impulsions térahertz incidentes ce qui permet de conserver leur caractère impulsionnel. Dans le même ordre d'idée, des QCL fonctionnant en régime pulsé ont été présentés récemment [Barbieri et al., 2011].

De manière générale les QCL sont à l'heure actuelle encore des objets de laboratoire, bien qu'ils soient pleins de promesse (finesse spectrale, puissance et cohérence).

Le laser LC est un concept récent démontré par Walther et Faist [Walther et al., 2010a]. Il s'agit de remplacer la cavité optique par un phénomène de rétroaction utilisant un micro-résonateur de type bobine-capacité résonant à haute fréquence, autour de la région active d'un QCL qui fait office de milieu à gain. Ils peuvent fonctionner à des fréquences de l'ordre de 1.5 THz mais nécessitent eux aussi des conditions de fonctionnement cryogéniques.

**Mélange à deux ondes** Le mélange à deux ondes utilise le battement optique entre deux faisceaux lasers dont les longueurs d'ondes sont proches (typiquement  $\Delta\lambda = 2 \text{ nm}$ ). Les deux faisceaux sont focalisés sur une même antenne photoconductrice ; le battement temporel des faisceaux module le taux de génération des photo-porteurs ce qui donne lieu à un rayonnement térahertz continu de bonne finesse spectrale dont la fréquence peut être accordée en changeant les fréquences relatives des faisceaux lasers. Les deux faisceaux lasers sont généralement produits au sein d'une cavité dont deux modes sont très proches, afin de pouvoir stabiliser la différence de fréquence tout en conservant une relation de phase entre eux.

**Laser à électrons libres et rayonnement synchrotron** Les lasers à électrons libres et les rayonnements synchrotrons partagent un même principe de fonctionnement. Il s'agit d'accélérer un faisceau d'électrons et d'infléchir la trajectoire de ces derniers à l'aide de champs magnétiques intenses afin qu'ils rayonnent dans le domaine THz. Les faisceaux obtenus sont très intenses et généralement incohérents (même s'il est possible dans certains cas d'obtenir un mode de fonctionnement cohérent). Les installations capables de produire ce type de rayonnement occupent souvent un bâtiment et ne constitue donc pas une source classique.

### 1.3.2 Détection du rayonnement térahertz

Tout comme pour l'émission, la détection des ondes THz requiert l'emploi de techniques différentes de celles utilisées dans les autres domaines. Comme il nous est possible de générer des rayonnements pulsés et/ou cohérents, nous ferons la distinction entre les détecteurs capables de résoudre temporellement le champ que l'on associera expérimentalement aux sources pulsées, et ceux qui effectuent des mesures quadratiques (intensité) sur les champs incidents et qui s'accommodent bien des sources continues et/ou incohérentes.

#### 1.3.2.1 Détection cohérente

La détection cohérente, telle que nous l'entendons ici, consiste à coupler les procédures d'émission et de détection des ondes térahertz, utilisant un laser femtoseconde en commun. Elle permet, et ce n'est pas là son moindre intérêt, de procéder à des **mesures du champ électrique résolues temporellement** tout en ayant d'excellents rapport signaux à bruit, au détriment toutefois de la vitesse d'acquisition.

**Antennes photoconductrices** On retrouve les antennes photoconductrices (PCA), qui servent cette fois de détecteur. Le principe de fonctionnement est en quelque sorte inversé. La PCA est composé de deux lignes métalliques sur un substrat semi-conducteur. Lorsqu'une impulsion laser seule illumine le substrat, les photo-porteurs se recombinent au bout d'un temps très court. Si l'impulsion laser arrive cette fois en même temps qu'un champ THz, ce dernier va mettre en mouvement les photo-porteurs, créant ainsi un courant entre les lignes métalliques que l'on peut détecter. En modifiant les temps d'arrivée relatif du laser (qui sert de sonde) et du faisceau THz (qui sert de pompe), on peut ainsi échantillonner temporellement ce dernier, à condition que le temps de vie des photo-porteurs soit très court par rapport au temps de variation du champ térahertz. Pour s'en assurer, il faut utiliser un substrat comportant une grande quantité de pièges (des défauts de structure), ce que les techniques de croissance de GaAs à basse température permettent (LT-GaAs). Il s'agit du procédé de détection que nous avons employé et nous développerons son principe de fonctionnement par la suite.

**Effet électro-optique** La détection électro-optique consiste à faire se superposer temporellement un faisceau THz et un faisceau laser femtoseconde dans un cristal présentant des propriétés électro-optiques (tel que le ZnTe, orienté  $\langle 110 \rangle$ ). Le champ THz local modifie la biréfringence du cristal, occasionnant un déphasage de l'impulsion du laser femtoseconde qui modifie son état de polarisation. La mesure de cet état de polarisation à l'aide de deux analyseurs croisés et d'un détecteur différentiel permet de retrouver l'amplitude du champ THz. En modifiant le délai entre les deux faisceaux, on peut alors échantillonner temporellement le champ électrique THz.

Cette technique est particulièrement intéressante pour l'imagerie, car il est possible de faire se superposer spatialement les deux faisceaux dans un cristal de grande dimension ce qui permet d'utiliser des matrices CCD pour résoudre temporellement et spatialement lors d'une même mesure. Il faut néanmoins que le champ THz soit suffisamment intense pour détecter un quelconque signal [Jiang et al., 1999], si bien que nous n'avons pu mettre cette méthode en pratique.

**Détection cohérente dans l'air** L'ABCD (pour *Air-Biased Coherent Detection*) se rapproche conceptuellement de l'émission de rayonnement THz par filamentation assisté par un champ statique. Il s'agit de faire se focaliser entre deux électrodes polarisées une impulsion THz et un intense faisceau laser femtoseconde. Des phénomènes de génération du second harmonique vont se produire, le taux de conversion étant modulés par l'amplitude locale du champ THz. En détectant l'intensité du second harmonique et en faisant varier le recouvrement temporel des faisceaux, on peut donc résoudre en temps l'amplitude des impulsions THz [Ho et al., 2010].

**Détection de fluorescence dans l'ultraviolet** La technique de détection THz-REEF (pour *THz-Radiation Enhanced Emission of Fluorescence*) consiste à faire se superposer un faisceau laser femtoseconde et un faisceau THz. Par focalisation, le faisceau laser va produire un plasma dont la fluorescence UV est amplifiée par l'amplitude THz locale. En mesurant l'intensité de la fluorescence, on parvient à déterminer l'intensité du champ THz [Liu et Zhang, 2009].

Une technique dérivée fait usage d'un faisceau laser femtoseconde bicolore. L'émission de fluorescence dépend de l'amplitude du champ THz mais également de la phase relative entre les deux longueurs d'ondes présentes dans le faisceau femtoseconde. En faisant varier celle-ci, il est possible de déduire l'aspect temporel du *champ électrique* de l'impulsion THz [Liu et al., 2010a]. Cette dernière technique présente l'avantage de permettre d'effectuer la détection des impulsions THz à distance. Cependant, il

faut préalablement parvenir à faire se focaliser le faisceau THz, ce qui fait qu'en réalité seul le détecteur de fluorescence est situé à distance.

### 1.3.2.2 Détection incohérente

Les techniques de détection incohérente utilisent des **détecteurs quadratiques**, *i.e.* sensibles à l'intensité du champ incident. Ils ne sont ni sensibles à la phase ni à la fréquence des champs incidents mais ils sont en général plus simples à mettre en place que les techniques de détection cohérentes.

Il est néanmoins possible d'obtenir des informations d'intérêt spectroscopique. Si l'on dispose d'un oscillateur local (QCL ou mélange optique), on peut effectuer des mesures par mélange hétérodyne avec oscillateur local. On peut également utiliser des techniques homodynes comme les spectromètres à transformée de Fourier, dans lesquels il s'agit de faire interférer le faisceau avec lui-même, décalé dans le temps. On obtient dès lors la fonction d'auto-corrélation du faisceau et le théorème de Wiener-Khintchine permet de déduire son contenu fréquentiel par transformée de Fourier.

**Bolomètres** Les bolomètres sont constitués d'une plaque absorbant le rayonnement incident ainsi que d'un corps à chaleur constante. La différence de température entre ces deux éléments est mesurée à l'aide d'une thermopile en indiquant ainsi l'intensité du rayonnement incident.

Il existe différentes gammes de bolomètres, comme les bolomètres à électrons chauds (HEB) ou à supraconducteurs, plus performants mais requérant l'emploi de procédures cryogéniques.

**Cellules de Golay** Les cellules de Golay sont des chambres contenant un gaz qui se détend par échauffement sous l'effet d'un rayonnement. Cela occasionne la déformation d'une membrane dont la mesure permet de déterminer l'intensité du rayonnement incident.

**Détecteurs pyro-électriques** Les détecteurs pyroélectriques se basent également sur un changement de température causé par l'absorption de rayonnement. Certains cristaux présentent lorsqu'ils sont chauffés un comportement pyro-électrique : une différence de température produit un transitoire de tension dont la mesure informe de l'intensité du rayonnement incident. Ce type de détection est notamment utilisé dans les dispositifs de détection de présence passifs.

**Photodiodes à transport unipolaire, transistors à hétérojonction bipolaire** Lorsque l'on cherche à faire battre des lasers sur une diode, il faut que celle-ci ait un temps de réponse suffisamment court pour pouvoir percevoir le battement. Il s'agit donc de faire en sorte que les diodes ne soient plus que limitées par les porteurs les plus rapides, les électrons. Pour cela, différentes structures comme les transistors à hétérojonction bipolaire (HBT pour *Heterojunction Bipolar Transistor* et photodiodes à transport unipolaire (UTC-PD pour *Uni-Travelling Carrier PhotoDiode*) ont été proposées. Les UTC-PD sont les composants électroniques qui semblent focaliser le plus d'attention pour les télécommunications par voie térahertz, car elles permettent d'atteindre des fréquences de coupure de l'ordre du THz [Coutaz, 2008].

## 1.4 Éléments théoriques

Il est nécessaire à ce stade de rappeler quelques éléments théoriques dont nous ferons amplement usage par la suite, à savoir les équations de Maxwell, la transformée de Fourier et la notion de signal analytique. Cela nous permettra de formuler quelques remarques et d'introduire concepts et notations.

### 1.4.1 Équations de Maxwell

Les équations de Maxwell qui sont le fondement théorie de électromagnétique, relie le champ électrique  $\mathbf{E}$ , le déplacement électrique  $\mathbf{D}$ , l'induction magnétique  $\mathbf{B}$ , l'excitation magnétique  $\mathbf{H}$ , la densité de charge  $\rho$  et la densité de courant  $\mathbf{J}$ . Elles sont au nombre de quatre :

Équation de Maxwell-Gauss :

$$\nabla \mathbf{D} = \rho \quad (1.1)$$

Équation de Maxwell-Thomson :

$$\nabla \mathbf{B} = 0 \quad (1.2)$$

Équation de Maxwell-Faraday :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.3)$$

Équation de Maxwell-Ampère :

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (1.4)$$

Ces équations sont **linéaires**<sup>3</sup> : on peut utiliser le principe de superposition pour combiner les solutions. Parmi ces solutions, nous nous intéresserons aux ondes planes propagatives monochromatiques, qui correspondent à la base de décomposition des transformées de Fourier temporelle et spatiale.

Les équations de Maxwell présentent une **invariance d'échelle**<sup>4</sup>. Cela justifie l'emploi des ondes THz pour l'étude expérimentale des métamatériaux car les résonances de formes rencontrées peuvent être mises à l'échelle. Nous utiliserons, **pour illustrer certains phénomènes, des simulations numériques** se basant directement sur les équations de Maxwell. Cela se fera à l'aide du logiciel *Meep* ; l'annexe A propose une discussion sur l'utilité de ces simulations dans le cadre des ondes térahertz ainsi que des suggestions pour la modélisation des impulsions térahertz.

Ce n'est pas pour autant que tous les résultats peuvent être transposés sans précautions : (i) les effets de diffraction dépendent des distances de propagations relativement à la longueur d'onde (on peut considérer que l'on se situe en régime de champ lointain lorsque  $a^2/(L\lambda) \gg 1$ , où  $a$  est la taille caractéristique de l'ouverture,  $L$  la distance d'observation et  $\lambda$  la longueur d'onde ; ce qui ne sera jamais réellement le cas dans le domaine THz) ; (ii) la propagation d'une onde électromagnétique à travers un milieu dépend de ses propriétés optiques, qui varient selon les longueurs d'ondes considérées (ces propriétés dépendent entre autre de la taille des molécules, ce qui introduit une notion d'échelle).

### 1.4.2 Équations constitutives du milieu

Les équations précédentes sont complétées par les équations constitutives du milieu, qui gouvernent la propagation des ondes dans un milieu matériel (on considèrera ici un milieu diélectrique). Elles mettent en relation le déplacement électrique  $\mathbf{D}$  avec le champ électrique  $\mathbf{E}$  et l'excitation magnétique  $\mathbf{H}$  avec l'induction magnétique  $\mathbf{B}$  en faisant intervenir la polarisation  $\mathbf{P}$  et la magnétisation  $\mathbf{M}$  du milieu sous l'influence d'un champ électromagnétique.

3. L'optique non-linéaire étudie le comportement non-linéaire *des matériaux* : les termes non-linéaires en champ n'apparaissent que par l'intermédiaire des équations constitutives du milieu 1.5 et 1.6.

4. Contrairement aux équations de Navier-Stokes en mécanique des fluides, où la dépendance à l'échelle transparait au travers du nombre de Reynolds et du nombre de Mach. Cette propriété a notamment été mise à profit par la recherche militaire pour déterminer la signature radar de gros objets à l'aide de la signature THz de maquettes.

Les équations constitutives du milieu s'expriment par :

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon_0(1 + [\chi_e]) \mathbf{E} = \varepsilon_0 [\varepsilon_r] \mathbf{E} = [\varepsilon] \mathbf{E} \quad (1.5)$$

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M} = \frac{1}{\mu_0(1 + [\chi_m])} \mathbf{B} = \frac{1}{\mu_0 [\mu_r]} \mathbf{B} = \frac{1}{[\mu]} \mathbf{B} \quad (1.6)$$

où  $\varepsilon_0$  et  $\mu_0$  sont la permittivité électrique et la perméabilité magnétique reliée la célérité de la lumière dans le vide  $c$  par  $\mu_0 \varepsilon_0 = \frac{1}{c^2}$  ou à l'impédance du vide  $Z = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \simeq 376 \Omega$ .  $[\varepsilon_r]$  et  $[\mu_r]$  sont respectivement la permittivité électrique relative et la perméabilité magnétique relative du matériau,  $\chi_{e,m}$  étant respectivement les susceptibilités électriques et magnétiques du milieu. Ces derniers paramètres sont a priori des tenseurs complexes dépendant du temps, de l'espace et du champ électrique appliqué. Nous considérerons que les matériaux étudiés sont homogènes et isotropes, ce qui nous permet de les réduire aux scalaires  $\tilde{\varepsilon}_r$  et  $\tilde{\mu}_r$  (nous reviendrons sur cet aspect dans la section 3.1.3), et que les champs électriques appliqués sont suffisamment faibles pour que l'on puisse se placer dans le cadre de l'optique non-linéaire.

On trouvera dans [Raimond, 2000] de plus amples développements sur les ondes dans la matière.

#### 1.4.2.1 Propriétés optiques des matériaux diélectriques

Les matériaux diélectriques sont caractérisés par leurs propriétés optiques au moyen de mesures spectroscopiques. Les quantités que nous rencontrerons principalement sont la permittivité électrique  $\tilde{\varepsilon}_r$ , l'**indice de réfraction**  $n$  et le **coefficient d'absorption**  $\alpha$ . L'indice complexe  $\tilde{n}$  peut être décomposé en une partie réelle (l'indice de réfraction  $n$ ) et une partie imaginaire  $k$  (que l'on nomme **coefficient d'extinction**) et s'exprime :

$$\tilde{n} = n - i\kappa = \sqrt{\tilde{\varepsilon}_r \tilde{\mu}_r}. \quad (1.7)$$

Généralement, on considère que  $\tilde{\mu}_r = 1$ , on a donc :

$$\tilde{\varepsilon}_r = \tilde{n}^2 \quad (1.8)$$

Le **coefficient d'absorption** est quand à lui défini à partir de la loi de Beer-Lambert. La propagation à travers d'un matériau d'indice  $\tilde{n}$  de longueur  $L$  introduit des **pertes en intensité** par absorption :

$$I_0 e^{-\alpha L} = |E_0 \exp(-i2\pi\nu\tilde{n}L/c_0)|^2 = I_0 \exp(-4\pi\nu\kappa L/c_0) \quad \text{d'où} \quad \alpha = 4\pi\kappa\nu/c \quad (1.9)$$

#### 1.4.3 Transformée de Fourier

Nous aurons fréquemment recours à la transformée de Fourier  $\mathcal{F}$ , qui est un outil essentiel lorsque l'on étudie des ondes. C'est en effet une opération **linéaire** qui permet de décomposer<sup>5</sup> un champ en termes d'**ondes harmoniques** (*i.e.* avec une dépendance sinusoïdale en temps).

La transformée de Fourier  $\tilde{S}$  d'une fonction  $s$  se calcule par la relation :

$$\tilde{S}(\nu) = \mathcal{F}\{s\}(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{\mathbb{R}} s(t) e^{-i2\pi\nu t} dt. \quad (1.10)$$

5. Elle sert en sus à décomposer le champ en termes d'ondes planes, utile pour appréhender la formation des images. Cette décomposition est à la base de l'optique de Fourier.

La fonction  $\tilde{S}$  est une fonction de la fréquence  $\nu$  que l'on nomme spectre du signal. Elle contient la même quantité d'information que le signal original (figure 1.7) La transformée de Fourier inverse  $\mathcal{F}^{-1}$  s'exprime de manière très similaire :

$$s(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{S}\}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{\mathbb{R}} \tilde{S}(\nu) e^{+i2\pi\nu t} d\nu. \quad (1.11)$$

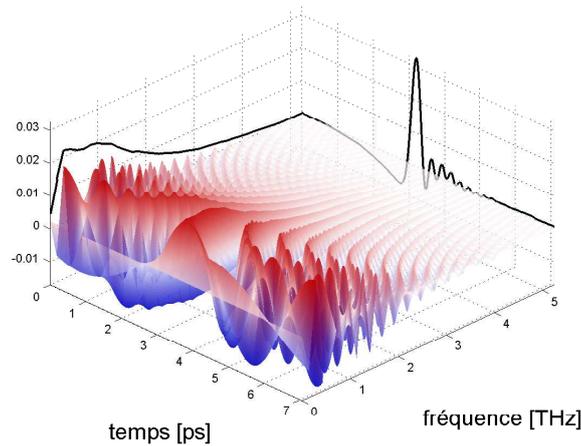


FIGURE 1.7 – Réciprocité de l'analyse spectrale : un signal temporel est une somme de sinusoides d'amplitudes et de phases différentes qui interfèrent.

Rappelons quelques propriétés intéressantes de la transformée de Fourier qui nous seront utiles pour l'étude des impulsions THz :

**Symétrie hermitienne** La transformée de Fourier d'un **signal réel**  $s(t)$  est complexe à symétrie hermitienne :

$$\tilde{S}(-\nu) = \tilde{S}^*(+\nu). \quad (1.12)$$

Le spectre est donc bilatéral, mais nous pourrions nous contenter de ne traiter que les fréquences positives.

**Translation dans le temps** La transformée de Fourier d'un signal  $s(t)$  décalé dans le temps  $s_\tau(t) = s(t - \tau)$  s'exprime :

$$\tilde{S}_\tau(\nu) = e^{-2i\pi\nu\tau} \tilde{S}(\nu). \quad (1.13)$$

Le pré-facteur constitue ce que l'on appellera un terme de phase linéaire.

**Transformée de Fourier d'un produit de convolution** La propriété la plus intéressante de la transformée de Fourier réside dans la transformation d'un produit de convolution en un produit simple dans l'espace réciproque :

$$\mathcal{F}\{s * h\} = \mathcal{F}\{s\} \mathcal{F}\{h\} = \tilde{S} \tilde{H}. \quad (1.14)$$

Le produit de convolution est utile lorsque l'on s'intéresse à des systèmes ayant des réponses  $h$  linéaires et invariantes dans le temps (LTI, pour *Linear, Time-Invariant*), comme les matériaux optiques lorsque les puissances optiques sont faibles. Les vecteurs propres de tels systèmes sont les fonctions sinusoidales, qui

forment eux-mêmes la base orthonormée sur laquelle est projetée toute fonction par la transformée de Fourier. La grande majorité des systèmes étudiés étant LTI, on comprend l'importance de cette relation.

L'autre intérêt de cette propriété est quelle permet d'effectuer des déconvolutions de manière simple. En ce sens, la réponse impulsionnelle d'un matériau peut être déterminée par division dans le domaine spectrale, en prenant les précautions de rigueur (les mesures n'étant jamais parfaites, il faudra avoir recours à des procédures spéciales comme des filtre de Wiener ou le modèle de maximum d'entropie [MacKay, 2004]).

**Théorème de Wiener-Khinchine** La fonction d'auto-covariance  $\Gamma_{ss}(\tau)$  d'un signal  $s(t)$  et sa densité spectrale de puissance  $S_{ss}(\nu)$  sont reliées simplement par un transformée de Fourier grâce au théorème de Wiener-Khinchine :

$$S_{ss}(\nu) = \tilde{S}(\nu)\tilde{S}^*(\nu) = \mathcal{F}\{\Gamma_{ss}\}(\nu) = \mathcal{F}\{\overline{s(t)s(t+\tau)}\}(\nu). \quad (1.15)$$

Cette relation est à la base du fonctionnement des spectromètres à transformée de Fourier.

**Relations de Kramers-Krönig** Les relations de Kramers-Krönig lient les parties réelles et imaginaires de certaines propriétés des systèmes LTI dans le domaine spectral. Ces relations trouvent leur fondement dans le principe de causalité [Van Kampen et Lurçat, 1961].

À titre d'exemple, si l'on s'intéresse à la susceptibilité électrique  $\chi(\omega) = \chi(\omega)' + \imath\chi(\omega)''$ , nous avons :

$$\chi(\omega)' = \frac{2}{\pi} \text{vp} \left\{ \int_{\mathbb{R}_+} \frac{\chi''(\Omega)\Omega}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \right\} \quad (1.16)$$

$$\chi(\omega)'' = \frac{2\omega}{\pi} \text{vp} \left\{ \int_{\mathbb{R}_+} \frac{\chi'(\Omega)}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \right\} \quad (1.17)$$

où vp est la valeur principale de Cauchy. Pour être utilisées, ces relations requièrent que les mesures soient effectuées sur une large étendue spectrale, ce qui rend délicate leur utilisation en spectroscopie classique. Si l'on s'intéresse au coefficient de réflexion complexe  $\tilde{r}$  d'un matériau, on peut reformuler cette relation en décomposant la décomposant :  $\ln \tilde{r}(\omega) = \ln R^{1/2}(\omega) + \imath\theta(\omega)$ . Dès lors, on obtient une relation explicite entre le module et l'argument :

$$\theta(\omega) = -\frac{\omega}{\pi} \text{vp} \left\{ \int_{\mathbb{R}_+} \frac{\ln R(\Omega)}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \right\} = -\frac{\omega}{\pi} \text{vp} \left\{ \int_{\mathbb{R}_+} \ln \left| \frac{\Omega + \omega}{\Omega - \omega} \right| \frac{d \ln R(\Omega)}{d\Omega} d\Omega \right\}. \quad (1.18)$$

La dernière expression que l'on obtient par intégration par parties est plus lisible que les précédentes et montre bien que seules les fréquences où l'amplitude du coefficient de réflexion change contribuent à l'intégrale, autour de la fréquence d'intérêt. De plus, elles montrent que **l'amplitude et la phase ne sont pas des paramètres indépendants**. Dans le domaine THz, l'étendue spectrale est grande et les relations de Kramers-Krönig sont parfois utilisées pour confirmer des données spectroscopiques [Peiponen et al., 2005]. Elles peuvent même partie intégrante de la procédure d'extraction numérique des propriétés optiques des matériaux, notamment lors des mesures de spectroscopie en réflexion à référence intégrée, où il est nécessaire de retirer des signaux une phase spectrale linéaire inconnue [Lucarini et al., 2005].

La transformée de Fourier continue est un outil mathématique puissant mais elle n'est guère applicable en l'espèce lorsqu'il s'agit d'analyser des mesures physiques, discrètes par essence.

### 1.4.3.1 Transformée de Fourier discrète

Puisque la grande majorité de résultats que nous obtiendrons seront expérimentaux, nous n'aurons accès qu'à  $N$  échantillons régulièrement espacés de  $\Delta t$  du signal :  $s_n = s(n\Delta t)$ .

Dans ces circonstances, nous pourrons utiliser la transformée de Fourier discrète (DFT, pour *Discrete Fourier-Transform*<sup>6</sup>). Notons  $W_N = e^{-i2\pi/N}$  la racine  $N$ -ième de l'unité, les échantillons de la transformée de Fourier discrète se calculent comme :

$$s_k = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \sum_{j=1}^N s_n W_N^{(j-1)(k-1)}. \quad (1.19)$$

La fréquence maximale  $\nu_{\max}$  et la résolution fréquentielle  $\Delta\nu$  de la DFT dépendent respectivement de l'inverse de résolution temporelle  $\Delta t$  et de l'étendue temporelle  $\Delta T = N\Delta t$  :

$$\nu_{\max} - \nu_{\min} = 2\nu_{\max} = \frac{1}{\Delta t} \quad (1.20)$$

$$\Delta\nu = \frac{1}{\Delta T} = \frac{1}{N\Delta t}. \quad (1.21)$$

Par conséquent, il faudra lors des mesures avoir un échantillonnage temporel suffisamment fin pour accéder aux hautes fréquences et éviter les phénomènes de repliement en satisfaisant au critère de Shannon  $\nu_{\max} < 1/(2\Delta t)$ . La DFT est généralement calculée à l'aide d'algorithmes FFT (pour *Fast-Fourier Transform*), ce qui améliore considérablement la vitesse de calcul.

Le lecteur intéressé par de plus amples développements sur la transformée de Fourier se référera avec intérêt aux ouvrages [Roddier, 1978] et [Bracewell, 1999].

### 1.4.4 Signal analytique et transformée de Hilbert

La forme analytique  $\hat{s}$  d'un signal temporel réel  $s$  est un signal complexe dont la transformée de Fourier est unilatérale (elle n'a pas de composantes à fréquences négatives) et correspond au double de la partie des fréquences positives de la transformée de Fourier du signal d'origine. Le signal analytique est intéressant en ce qu'il permet de décomposer un signal en une enveloppe et une porteuse. Le signal analytique est défini par

$$\hat{s}(t) = s(t) + i s_H(t). \quad (1.22)$$

où  $s_H$  est la transformée de Hilbert du signal :

$$\mathcal{H}\{s\}(t) = s_H(t) = \text{vp} \int_{\mathbb{R}} \frac{s(\tau)}{t - \tau} d\tau. \quad (1.23)$$

Rappelons deux propriétés essentielles de la transformée de Hilbert :

- Elle est sa propre transformée inverse, au signe près :  $\mathcal{H}\{\mathcal{H}\{s\}\} = -s$ .
- Sa transformée de Fourier  $\tilde{S}_H$  s'exprime simplement en fonction de la transformée de Fourier de  $s$  :

$$\tilde{S}_H(\nu) = -i \text{sign}(\nu) \tilde{S}(\nu).$$

C'est cette relation qui est utilisée pour calculer numériquement la transformée de Hilbert d'un

---

6. Il ne faut pas la confondre avec la *Discrete-Time Fourier-Transform*, qui est une transformée de Fourier continue appliquée à un signal discrétisé à l'aide d'un peigne de Dirac.

signal discret<sup>7</sup>. Cela signifie par ailleurs qu'un signal et sa transformée de Hilbert sont en **quadrature**.

La notion de signal analytique nous sera utile pour discuter de la phase temporelle des impulsions térahertz.

## Conclusion du chapitre

Nous avons vu l'essentiel des applications du domaine térahertz ainsi que les techniques de génération et de détection utilisées pour les mettre en œuvre. Cela nous a permis de souligner que, bien que ces techniques aient pour dénominateur commun de générer des rayonnements térahertz, elles font preuve d'une grande diversité. Aidé des outils vus en fin de chapitre, nous allons maintenant pouvoir nous intéresser en détail à une technique qui permet non seulement de générer des ondes térahertz, mais surtout de le faire sous forme d'impulsions ultra-courtes, dont la détection résolue en temps nous permettra d'utiliser une approche différente de celle que l'on emploie en optique.

---

7. On fera attention à ce que logiciel *Matlab* dispose d'un fonction `hilbert` qui calcule le signal analytique *et non la transformée de Hilbert*.

## Chapitre 2

# Les impulsions térahertz

Pour forger le fer  
On a besoin d'un marteau  
Et pour avoir un marteau,  
il faut le faire ;  
Et pour cela,  
Un autre marteau,  
d'autres instruments  
sont nécessaires.  
- Baruch Spinoza

*Nous aborderons dans ce chapitre les techniques que nous avons utilisées pour générer des impulsions térahertz et ainsi que pour effectuer la mesure résolue en temps des champs électriques associés. Nous caractériserons le système en évaluant ses performances en terme de bande passante et de sensibilité au bruit.*

*Nous donnerons ensuite quelques exemples d'applications classiques, comme la spectroscopie et nous identifierons quels sont les matériaux les plus à même d'être utilisés dans le domaine térahertz.*

*Pour finir, nous développerons la notion de phase d'une impulsion sous-monocyclique, et nous verrons quelles sont ses manifestations dans le domaine temporel et dans le domaine fréquentiel.*

## Sommaire

---

<b>2.1 Génération et détection par photo-commutation</b> . . . . .	<b>35</b>
2.1.1 Anatomie d'une impulsion térahertz . . . . .	38
2.1.2 Analyse du système . . . . .	39
2.1.3 Conclusion sur la caractérisation des systèmes de spectroscopie par domaine temporel . . . . .	50
<b>2.2 Spectroscopie</b> . . . . .	<b>50</b>
2.2.1 Mesure de spectres . . . . .	51
<b>2.3 Les matériaux du domaine THz</b> . . . . .	<b>55</b>
2.3.1 Les plastiques . . . . .	55
2.3.2 Les liquides . . . . .	56
2.3.3 Les verres et les cristaux . . . . .	57
2.3.4 Les semi-conducteurs . . . . .	57
2.3.5 Les composants optiques pour le domaine THz . . . . .	57
<b>2.4 Phase des impulsions térahertz</b> . . . . .	<b>58</b>
2.4.1 Phase spectrale . . . . .	58
2.4.2 Phase temporelle . . . . .	59
2.4.3 Phase Porteuse-Enveloppe (CEP) . . . . .	61
2.4.4 Chirp intrinsèque d'une impulsion térahertz . . . . .	67

---

## 2.1 Génération et détection par photo-commutation

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il existait un certain nombre de techniques capables de générer des rayonnements térahertz, et tout autant capables de les générer.

Durant cette thèse, nous avons utilisé des antennes photoconductrices tant pour la génération que pour la détection, afin de pouvoir générer du rayonnement THz sous forme d'**impulsions** et de pouvoir effectuer des mesures du champ électrique **résolues temporellement**.

Ce schéma expérimental est communément appelé *Time-Domain Spectroscopy* (TDS) : la résolution temporelle du champ permet comme on le verra par la suite d'étudier les propriétés fréquentielles d'un échantillon directement à partir de mesures temporelles.

Décrivons le principe de fonctionnement d'un tel système (figure 2.1) :

- Un **laser femtoseconde** ( $\tau = 12 \text{ fs}$ ,  $f_{\text{rep}} = 76 \text{ MHz}$ ,  $P = 500 \text{ mW}$ ) illumine un **substrat semi-conducteur** d'arséniure de gallium (GaAs) sur lequel est gravé une **paire de lignes** en aluminium parallèles espacées de  $80 \mu\text{m}$  sur lesquelles on applique une différence de potentiel statique de  $70 \text{ V}$ . Lorsqu'une impulsion du laser femtoseconde arrive sur le substrat, elle y génère des **photo-porteurs**, qui sont des électrons qui passent de la bande de valence à la bande de conduction par absorption de photon.
- Les photo-porteurs ainsi créés sont **soumis à un champ statique** imposé par la différence de potentiel entre les lignes. Dans ce champ, les électrons sont accélérés, ce qui produit l'émission d'un rayonnement  $E_{\text{THz}}$  sous forme impulsionnelle par **rayonnement dipolaire**.

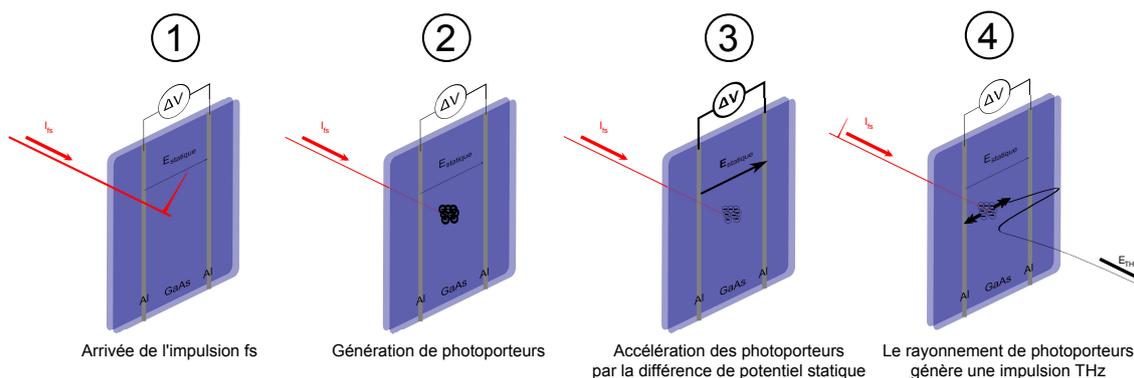


FIGURE 2.1 – Génération d'impulsion THz par antenne photoconductrice.

La brièveté des impulsions femtosecondes fait se générer des porteurs en un temps très court, et ils se recombinent plus lentement (de l'ordre de la nanoseconde<sup>1</sup>) : le transitoire de courant  $j(t)$  possède un front montant très raide à l'origine de hautes fréquences de l'ordre du térahertz car le rayonnement dipolaire d'un *dipôle hertzien*<sup>2</sup> dans l'approximation du *champ lointain* est proportionnel à la dérivée du courant :

$$E_{\text{THz}}(t) \propto \frac{\partial j}{\partial t}(t). \quad (2.1)$$

1. Un taux de recombinaison trop rapide n'est pas souhaitable, car cela se fait au détriment de la puissance.

2. Un dipôle hertzien est un dipôle dont la taille est très inférieure aux longueurs d'ondes considérées.

La détection s'effectue par un procédé complémentaire (figure 2.2a) :

- Un substrat **semi-conducteur** en arséniure de gallium dont la croissance est effectuée à basse température (LT-GaAs), ce qui lui assure un temps de piégeage de photo-porteurs très court ( $< 0.1$  ps), sur lequel sont également gravées une paire de lignes en aluminium parallèles espacées de  $30 \mu\text{m}$ , est illuminé par une impulsion du **laser femtoseconde** (d'intensité  $I_{\text{fs}}$ ), ce qui génère des **photo-porteurs**,
- En l'absence de rayonnement THz, les photo-porteurs se recombinent spontanément. Si toutefois un rayonnement terahertz  $E_{\text{THz}}$  **arrive en correspondance** avec la génération des photo-porteurs, celui-ci va induire un mouvement de ces derniers, créant ainsi un **courant**  $i_{\text{antenne}}$  entre les deux lignes d'aluminium. Ce courant est ensuite amplifié puis détecté.

Comme le temps de vie des photo-porteurs est très court par rapport à la variation du rayonnement THz ( $I_{\text{fs}}(t) \sim I_0\delta(t)$ ), il est possible d'échantillonner temporellement l'impulsion THz en déplaçant une ligne à délai dont la longueur  $d$  est reliée au retard temporel  $\tau$  entre les impulsions THz et femtoseconde par la relation<sup>3</sup>  $\tau = 2d/c$ . Le courant traversant l'antenne s'exprime de manière simplifiée :

$$i_{\text{antenne}}(\tau) \propto \int E_{\text{THz}}(\tau - t)I_{\text{fs}}(t)dt \simeq \int E_{\text{THz}}(\tau - t)I_0\delta(t)dt \propto E(\tau). \quad (2.2)$$

Notons que comme le sens du courant dépend de la direction du champ THz, les mesures sont bipolaires. On obtient donc par ce procédé une mesure du champ THz résolue en temps (figure 2.2b).

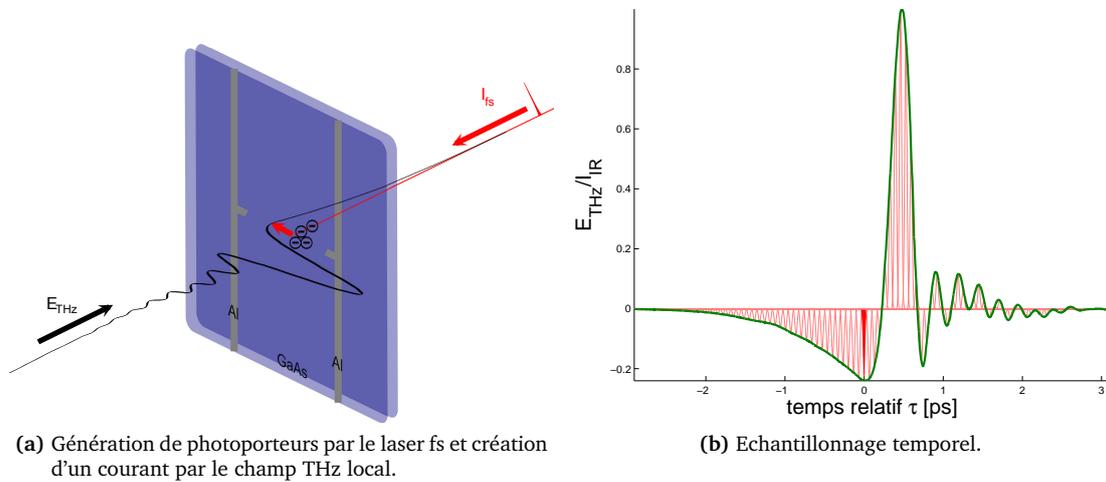


FIGURE 2.2 – Procédé d'échantillonnage temporel des impulsions térahertz.

Les antennes d'émission (figure 2.3) et de réception nous ont été fournies par la plateforme technologique de l'IEMN à Lille.

Une lentille hyper-hémisphérique en silicium haute-résistivité est accolée à l'antenne ; celle-ci permet d'une part de focaliser le faisceau et de limiter d'autre part les pertes par réflexion interne totale au niveau de l'antenne. En effet, cette dernière étant en GaAs, l'indice de réfraction  $n_{\text{GaAs}} \simeq 3.6$  est tel

3. Le facteur 2 vient du fait que le laser effectue un aller-retour dans la ligne à retard.

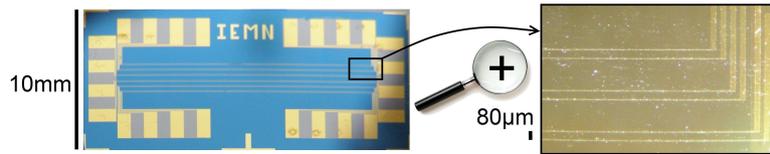


FIGURE 2.3 – Image d'un substrat en GaAs sur lequel est gravé 6 paires d'antennes d'émission. À droite un détail, sur lequel on peut voir trois paires de lignes

qu'une grande partie du rayonnement émis se trouve piégée dans l'antenne à cause des phénomènes de réflexion interne totale qui ont lieu à cause du choc d'impédance à l'interface substrat-air.

Le faisceau THz est ensuite focalisé à l'aide de miroirs paraboliques hors-axe (OAPM pour *Off-Axis Parabolic Mirror*) de distance focale 240 mm et d'ouverture numérique  $NA = 0.27$ . La réflectivité des métaux est excellente dans le domaine THz ce qui permet de limiter les pertes et justifie l'emploi de miroirs plutôt que de lentilles en Téflon ou en polyéthylène. De plus, ces éléments optiques fonctionnant en réflexion, ils sont donc dépourvus d'aberration chromatique et d'effets dispersifs. La position relative des miroirs est de sorte à ce qu'ils partagent l'axe optique ; les aberrations géométriques se compensent globalement, ce qui n'est pas le cas des configurations où ces derniers sont têtes-bêches, comme sur le schéma du montage présenté figure 2.4 (voir [Brückner et al., 2010] pour une discussion sur les configurations optimales).

La ligne à retard est déplacée par pas de  $10\ \mu\text{m}$  afin de satisfaire au critère de Shannon (expression 1.20) en supposant une fréquence maximale de 7.5 THz :  $\Delta t = 2\Delta l/c_0 = 2 \times 10/300 \simeq 0.066\ \text{ps} = 1/(2 \times 7.5)\ \text{THz}^{-1}$ . Nous balayerons généralement la ligne à retard sur des distances de l'ordre de 10 mm, ce qui correspond à une résolutions fréquentielle de l'ordre de 15GHz (expression 1.21).

Un hacheur optique (*chopper*) est utilisé afin de moduler le faisceau à 280Hz, ce qui permet d'utiliser un amplificateur à détection synchrone (*lock-in amplifier*) et d'améliorer ainsi grandement le rapport signal à bruit, tout en découplant le système des sources de rayonnement THz extérieur au système et des bruits présents dans la salle d'expérience. Le temps d'intégration de l'amplificateur à détection synchrone est généralement fixé à 30 ou 100 ms avec un filtre post-traitement de 24 dB/décade : le temps d'acquisition pour un échantillon temporel est de l'ordre de 300 ms ce qui nous permet d'effectuer une mesure complète de l'impulsion THz en quelques minutes. Cela rend assez long<sup>4</sup> et fastidieux les optimisations d'alignement du montage<sup>5</sup>.

La figure 2.4 présente une vue schématique de l'ensemble du système.

Le pointé du laser est corrigé à l'aide d'un miroir actionné par des cales piézo-électriques par boucle fermée PID dont le signal d'erreur est fourni par une diode quatre-quadrants. Cela permet de stabiliser le système sur des temps courts en plus d'améliorer la répétabilité des expériences d'un jour sur l'autre.

L'ensemble du montage est entouré d'une boîte hermétique, ce qui permet de purger l'air atmosphérique dont la vapeur d'eau absorbe le rayonnement THz de manière non-négligeable.

4. Nous avons dû consacrer des centaines d'heures aux procédures d'alignement en tout genre, la boucle de rétro-action « manuelle » lors des optimisations ayant une constante de temps assez lente...

5. Des systèmes commerciaux, comme ceux proposés par *Picomatrix* permettent de visualiser la totalité des impulsions en temps réel ; ils sont de plus fibrés ce qui permet de s'affranchir de l'alignement du laser optique. Cela se fait toutefois au détriment de la largeur spectrale des impulsions THz.

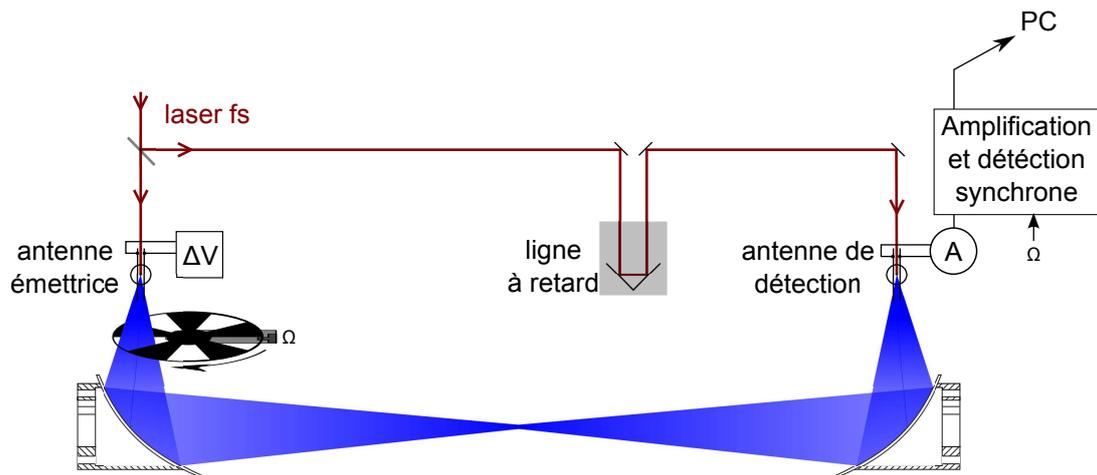


FIGURE 2.4 – Vue schématique d'un système de Time-Domain Spectroscopy.

La procédure d'acquisition est pilotée par ordinateur à l'aide d'une interface graphique complète programmée en C# que nous avons développée. La communication avec les instruments se fait par l'intermédiaire des ports séries RS-232 et du protocole GPIB (norme IEEE-488). Le programme permet de piloter d'autres périphériques pour faire de l'imagerie ou effectuer des rotations, notamment pour les mesures en polarisation.

Ce premier montage sera appelé par la suite **montage de spectroscopie** (photo 2.5). Un second montage utilisant un **faisceau collimaté** et capable de mesurer séparément les deux composantes croisées de polarisation sera présenté dans la section 3.2 de ce manuscrit. On référera à ce dernier en tant que **montage de polarisation**.

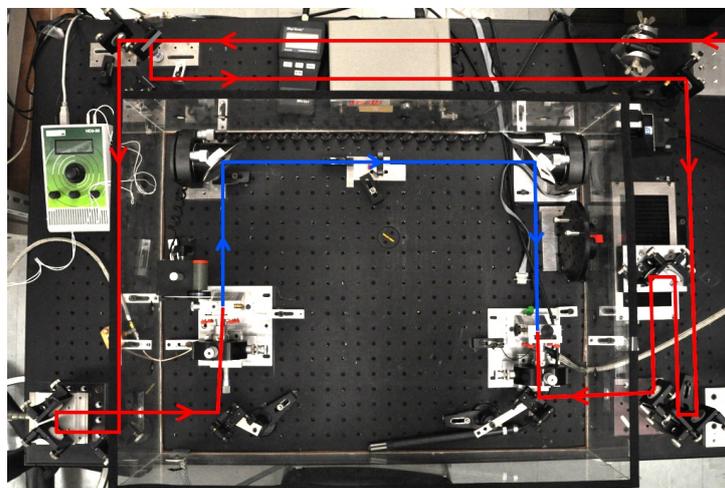


FIGURE 2.5 – Photo du montage de spectroscopie (en rouge le chemin du laser femtoseconde, en bleu le chemin du faisceau THz).

### 2.1.1 Anatomie d'une impulsion térahertz

Une mesure typique obtenue à l'aide du montage précédent est présentée dans la figure 2.6a, accompagnée de sa transformée de Fourier calculée numériquement, figure 2.6b.

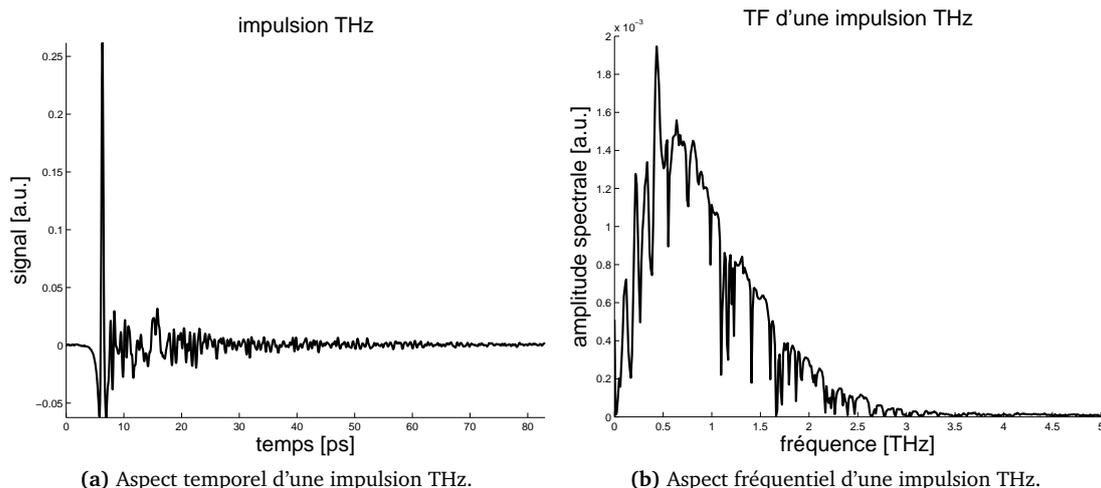


FIGURE 2.6 – Mesure d’une impulsion THz typique, et spectre associé.

L’impulsion térahertz se caractérise par une largeur à mi-hauteur de 550 fs. Elle présente un maximum bien défini, peu d’oscillations et s’étend sur quelques dizaines de picosecondes. Le spectre fréquentiel de cette impulsion présente une fréquence moyenne  $\bar{\nu} = 1.0$  THz et une largeur de  $\Delta\nu = 1.8$  THz, ce que l’on doit au caractère sous-monocyclique des impulsions ( $\Delta\nu/\bar{\nu} = 1,8 > 1$ ) qui sera discuté par la suite. Le spectre de l’impulsion s’étend jusqu’à 5 THz .

Dans le domaine temporel, les oscillations que l’on observe après le pic principal ne sont en aucun cas lié à un bruit quelconque mais résultent de l’interaction de l’impulsion THz avec l’eau présente dans l’atmosphère ambiante de la salle d’expérience. Cela se traduit dans le domaine fréquentiel par de fortes lignes d’absorption.

Des mesures similaires effectuées à atmosphère ambiante (humidité relative de 21%) ou sous atmosphère d’azote (humidité relative inférieure à 1%) rendent bien compte de ce phénomène : les oscillations après l’impulsion disparaissent pratiquement (figure 2.7a) et le spectre devient bien plus régulier (figure 2.7b ; le spectre est présenté en échelle logarithmique, de manière à mieux rendre compte de l’étendue fréquentielle des impulsions).

## 2.1.2 Analyse du système

Analysons maintenant le comportement du système en terme de sensibilité au bruit ainsi qu’aux conditions de génération et de détection des impulsions.

### 2.1.2.1 Rapport signal à bruit et vitesse d’acquisition

Le rapport signal à bruit (RSB) est un élément critique pour tout système de mesure. C’est lui qui limite en dernier recours la **vitesse d’acquisition** et détermine la **précision** que l’on est en droit d’attendre du système.

La notion de bruit pour un système de TDS est généralement mal définie. En effet, on a naturellement tendance à considérer les résultats des mesures résolues en temps comme s’ils étaient issus d’un oscilloscope ultra-rapide, alors qu’en toute rigueur nous avons affaire à un schéma de mesure pompe-sonde : chaque échantillon temporel est indépendant des échantillons précédents. Par conséquent, le bruit de

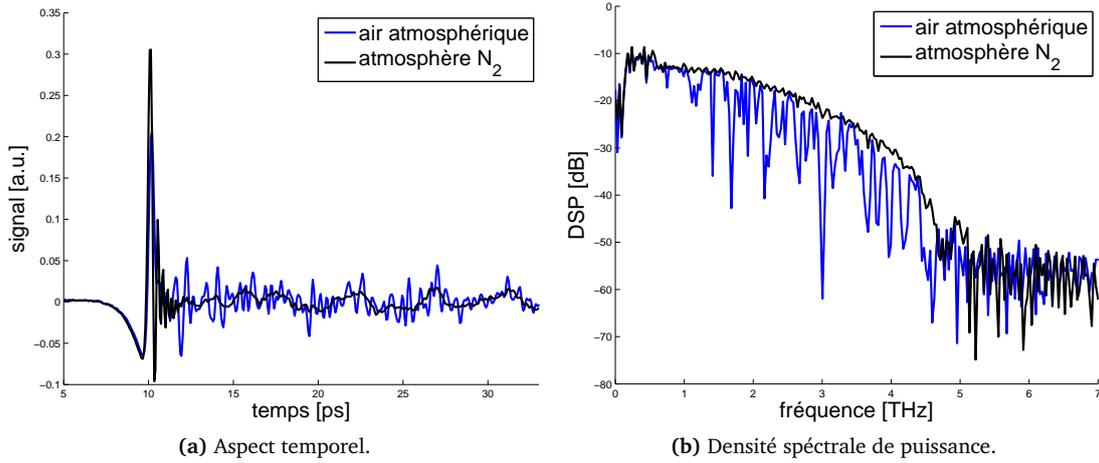


FIGURE 2.7 – Influence de la vapeur d'eau atmosphérique sur les impulsions THz.

mesure peut varier d'un point d'échantillonnage temporel à l'autre et son incidence peut varier selon que l'on raisonne dans le domaine temporel ou fréquentiel.

La question du rapport signal à bruit et de la dynamique des mesures par TDS a été étudiée en partie par Naftaly [Naftaly et Dudley, 2009] ; nous proposons d'étendre cette étude et d'offrir un traitement plus complet du bruit dans de tels systèmes.

Dans l'analyse que nous proposons, nous devons distinguer l'**instant de la mesure**  $t$ , qui est l'instant auquel a été effectuée la mesure et le **point d'échantillonnage temporel** (PET)  $\tau$  qui correspond au délai entre pompe-sonde du système TDS.

Nous considérons une série de mesures temporelles complètes  $\{s_k(\tau)\}_{k=1..N}$  effectuées à différentes moments. Chaque mesure sera normalisée de telle sorte que l'amplitude au maximum du signal soit égale à un. À partir de ces mesures, nous pouvons calculer les quantités suivantes, qui nous donneront différentes mesures du bruit :

- Nous pouvons tout d'abord estimer le bruit  $\sigma_1$  en l'absence de signal ou à des délais de ligne à retard tels que le début de l'impulsion n'a pas encore atteint le détecteur :

$$\sigma_{1,n}^2 = \int_{E_{\text{THz nul}}} s_n^2(\tau) d\tau. \quad (2.3)$$

C'est à partir de cette quantité que l'on définit généralement le rapport signal à bruit (il suffit de la comparer à la puissance totale du signal THz). Cette définition n'est cependant guère adaptée au cas des mesures THz, car ces dernières sont statiques : elle ne prend pas en compte les variations de l'intensité du bruit en fonction du point d'échantillonnage. Cette quantité ne requiert en revanche qu'une seule mesure temporelle (selon  $\tau$ ).

- Nous pouvons améliorer cette définition du bruit en nous appuyant sur une série de mesures pour estimer l'écart-type du bruit en chaque point d'échantillonnage :

$$\sigma_t(\tau) = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_k s_k^2(\tau) - \left( \frac{1}{N} \sum_k s_k(\tau) \right)^2}. \quad (2.4)$$

Comme chaque point d'échantillonnage temporel est *a priori* indépendant des autres, cette mesure permet de déterminer comment le bruit varie en fonction du délai pompe-sonde considéré.

- Nous pouvons également proposer une mesure du rapport signal à bruit dans le domaine fréquentiel en effectuant la transformée de Fourier d'un signal et en estimant le bruit dans la zone du spectre dans laquelle la densité spectrale de puissance du signal est nulle ( $\nu_{\max}$  est la fréquence maximale des impulsions THz et  $\nu_s$  la fréquence d'échantillonnage) :

$$\sigma_{2,n}^2 = \frac{1}{\nu_s/2 - \nu_{\max}} \int_{\nu_{\max}}^{\nu_s/2} \tilde{S}_n^2(\nu) d\nu. \quad (2.5)$$

Tout comme pour le bruit estimé en l'absence de signal dans le domaine temporel, cette mesure n'est pas tout à fait satisfaisante car elle ignore la dépendance en fréquence du bruit.

- Pour remédier à cela, nous pouvons procéder comme dans le domaine temporel et estimer l'écart-type du bruit sur une série de mesure :

$$\sigma_\nu(\nu) = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_k |\tilde{S}_k(\nu)|^2 - \left( \frac{1}{N} \sum_k |\tilde{S}_k(\nu)| \right)^2}. \quad (2.6)$$

Contrairement aux mesures classiques à l'oscilloscope (où l'on observe fréquemment un bruit dit *en 1/f*), ici le bruit ne peut avoir de comportement en fréquence évident car les mesures temporelles ne sont pas faite en temps réel ( $t \neq \tau$ ) ; chaque point est déjà intégré de nombreuses fois (on n'effectue pas la transformée de Fourier selon  $t$  mais selon  $\tau$ ).

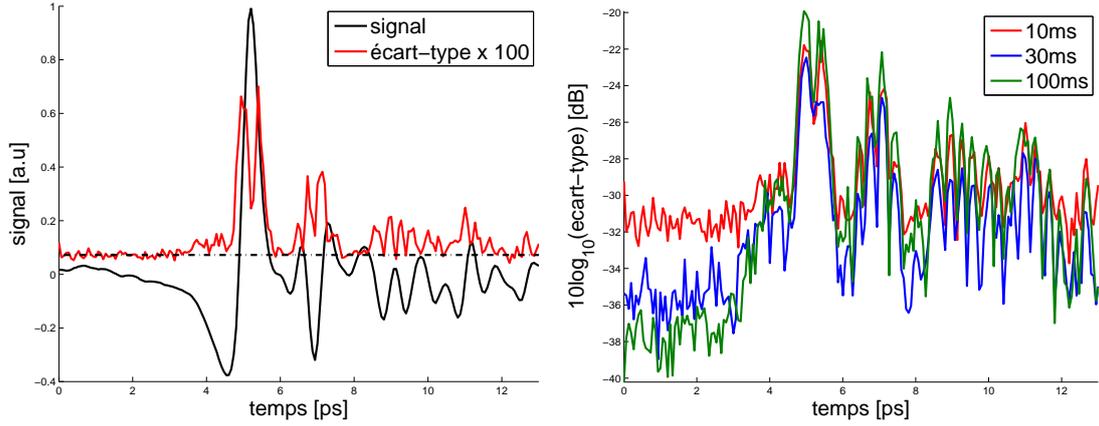
- Nous pouvons également nous intéresser au bruit de phase dans le domaine fréquentiel. La variation de phase spectrale doit être déterminée à partir d'une mesure de référence  $\tilde{S}_n$ , que nous pouvons choisir à loisir parmi l'ensemble de mesure effectuée :

$$\sigma_{\phi,n}(\nu) = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_k \arg[\tilde{S}_k(\nu)\tilde{S}_n^*(\nu)]^2 - \left( \frac{1}{N} \sum_k \arg[\tilde{S}_k(\nu)\tilde{S}_n^*(\nu)] \right)^2}. \quad (2.7)$$

Cette mesure est utile pour déterminer quelle sera la sensibilité des analyses basées sur la phase spectrale.

Nous avons procédé à une première série de mesures sur le montage de polarisation sans purger l'air atmosphérique. Pour différents temps d'intégration (10 ms, 30 ms et 100 ms) de l'amplificateur à détection synchrone, nous avons répété les mesures 20 fois afin de pouvoir déterminer l'écart-type entre les mesures pour chaque point d'échantillonnage temporel  $\tau$  (équation 2.4).

On observe figure 2.8a que le niveau de bruit de base  $\sigma_1$  (défini dans equation 2.3) pour un temps d'intégration de 10 ms indique que le RSB de base ( $\max_\tau(s)/\sigma_1$ ) est de 1500 ( $\simeq 32$  dB, inverse de la ligne en pointillé), mais que l'écart-type  $\sigma_t(\tau)$  varie fortement en fonction du point d'échantillonnage temporel considéré. Il est en particulier maximal lorsque le taux de variation du champ électrique est lui-même maximal, tandis qu'il n'est que modérément supérieur au bruit de base  $\sigma_1$  au sommet de l'impulsion. De plus, ce bruit supplémentaire semble relativement indépendant du temps d'intégration comme l'indique la figure 2.8b.



(a) Bruit  $\sigma_t(\tau)$  en différents points d'échantillonnage temporel entre différentes mesures effectuées avec temps d'intégration de 10 ms. Le bruit  $\sigma_1$  est représenté en pointillés.  
 (b) idem, pour une variété de temps d'intégration (échelle logarithmique).

FIGURE 2.8 – Variation de l'écart-type du bruit (sur 20 mesures) en fonction du point d'échantillonnage temporel.

On ne peut attribuer ce comportement aux sources de bruit du procédé de mesure lui-même, tel que les fluctuations du laser femtoseconde ou celui des composants électroniques. Cela nous incline à penser qu'il est dû au *jitter* causé par des fluctuations de chemin optique<sup>6</sup>, tant celui du faisceau femtoseconde que celui du faisceau térahertz : pour le montage de spectroscopie, le bras de génération mesure 1.18 m, le bras de détection 2.15 m et la propagation du faisceau THz se fait sur une distance de 0.97 m, tandis que pour le montage de polarisation, ces distances sont respectivement 1.57 m, 2.80 m et 1.23 m. Ces fluctuations sont principalement reliées aux fluctuations de l'air dans la salle d'expérience, ainsi qu'aux vibrations de la table optique.

Pour l'analyse dans le domaine fréquentiel, nous avons effectué des mesures sur le montage de spectroscopie sous atmosphère d'azote avec un temps d'intégration de 100 ms, afin de pouvoir limiter l'influence des raies d'absorption de l'eau atmosphérique et de varier les conditions expérimentales (l'analyse dans le domaine temporel donne lieu à des résultats tout à fait similaires ; le RSB de base est de 800, inférieur à celui du montage de polarisation).

Le bruit en amplitude spectrale  $\sigma_\nu(\nu)$  (équation 2.6) représenté figure 2.9a est globalement constant et supérieur au bruit de base  $\sigma_2$  que l'on retrouve à hautes fréquences ; cela nous indique que le signal porte lui-même un certain bruit. La phase spectrale entre deux mesures figure est également bruitée et son écart-type  $\sigma_{\phi,1}$  (figure 2.9b) semble présenter une certaine dépendance en fréquence.

Aux alentours de 1 THz, le **bruit de phase entre mesures est de l'ordre de  $1^\circ$**  ; c'est cela qui limitera principalement les techniques d'imagerie se basant sur la phase spectrale développée dans la chapitre 4.

Ces constatations multiples nous amènent alors à poser comme modèle de signal bruité l'expression suivante :

$$s_t(\tau, t) = s(\tau + n_\phi(t)) [1 + n_s(t)] + n_b(t) \quad (2.8)$$

où  $s(\tau)$  est le signal non bruité auquel on ajoute l'influence de trois bruits distincts :

- $n_b$  le bruit des instruments de mesure (bruit électronique),

6. On peut considérer qu'un système de TDS est un type particulier d'interféromètre.

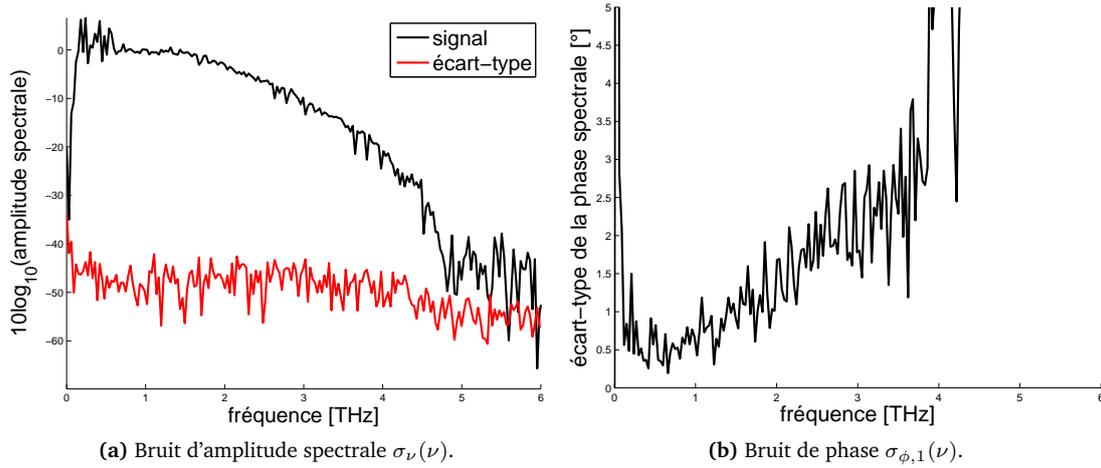


FIGURE 2.9 – Bruit dans le domaine fréquentiel déterminé à partir d'un ensemble de mesure.

- $n_s$  le bruit lié à la génération et à la détection des impulsions THz ; il comprend principalement le bruit lié aux antennes et aux fluctuations d'intensité de pointe du laser femtoseconde,
- $n_\phi$  le bruit de phase, qui est lui relié au fluctuation du chemin optique tant pour le laser femtoseconde que pour le faisceau THz.

Pour mieux identifier ces bruits et valider ce modèle, enregistrons maintenant l'évolution temporelle du signal à  $\tau$  fixe, *i.e.* en mesurant en temps réel les variations en un point de l'impulsion THz.

Pour distinguer les différents bruits, nous proposons quatre points d'échantillonnage  $\tau$  distincts (figure 2.10) :

- Un point à  $\tau = \tau_{nul}$  situé avant l'arrivée de l'impulsion THz ( $s(\tau_{nul}) = 0$  et  $\frac{\partial s}{\partial \tau}(\tau_{nul}) = 0$ ).  
On a alors

$$\begin{aligned} s_t(\tau_{nul}, t) &= s(\tau_{nul} + n_\phi(t))(1 + n_s(t)) + n_b(t) \\ &= n_b(t), \end{aligned} \quad (2.9)$$

ce qui nous permet d'identifier le bruit relié à l'électronique d'acquisition.

- Un point à  $\tau = \tau_{zero}$ , qui se situe à une annulation du signal THz ( $s(\tau_{zero}) = 0$  et  $\frac{\partial s}{\partial \tau}(\tau_{zero}) \neq 0$ ).  
On a :

$$\begin{aligned} s_t(\tau_{zero}, t) &= s(\tau_{zero} + n_\phi(t))(1 + n_s(t)) + n_b(t) \\ &\sim \mathbf{n}_\phi(\mathbf{t}) \frac{\partial s}{\partial \tau}(\tau_{zero})(1 + n_s(t)) + n_b(t). \end{aligned} \quad (2.10)$$

Si  $n_s(t) \ll 1$  et  $n_b(t)$  suffisamment petit, nous pourrions donc évaluer l'influence de  $n_\phi(t)$ .

- Un point  $\tau = \tau_{pente}$  pour lequel le signal THz est non-nul tout en ayant une dérivée importante. Pour ce point, les différents bruits se conjuguent.
- Un point à  $\tau = \tau_{max}$  situé au maximum de l'impulsion.

En supposant que la dérivée du signal est nulle en ce point, on a :

$$\begin{aligned} s_t(\tau_{\max}, t) &= s(\tau_{\max} + n_\phi(t))(1 + n_s(t)) + n_b(t) \\ &\simeq \mathbf{n}_s(\mathbf{t})s(\tau_{\max}) + n_b(t) + s(\tau_{\max}), \end{aligned} \quad (2.11)$$

ce qui nous permet d'évaluer le bruit  $n_s(t)$  relié à la génération et à la détection du signal en le découplant du *jitter*.

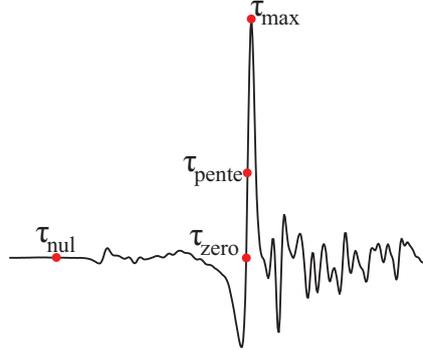


FIGURE 2.10 – Situation schématique des points d'échantillonnage considérés.

Nous avons effectué ces mesures sur cinq intervalles d'environ dix minutes, en changeant le temps d'intégration afin de voir comment celui-ci permet d'améliorer le rapport signal à bruit selon les points d'échantillonnage. Les mesures, exposées 2.11a, nous informent des résultats suivants.

Le bruit électronique  $n_b(t)$  que l'on peut observer pour  $\tau = \tau_{\text{nul}}$  (courbe du bas) a une distribution à peu près gaussienne et se trouve être plus faible que l'ensemble des autres bruits. Au maximum du signal ( $\tau = \tau_{\text{max}}$ , courbe du haut), on est principalement sensible au bruit de détection  $n_s(t)$  qui a lui aussi une distribution majoritairement gaussienne (sauf pour les longs temps d'intégration, pour lesquels on arrive à percevoir les effets résiduels du *jitter* — s'il s'agit d'un point d'inflexion, la dérivée n'est pas parfaitement nulle à ses abords), qui vient s'ajouter au bruit électronique. Ces deux sources de bruit sont efficacement filtrées par l'amplificateur à détection synchrone à mesure que l'on augmente le temps d'intégration.

Lorsque l'on se situe dans le front montant de l'impulsion ( $\tau = \tau_{\text{pente}}$ , troisième courbe de la figure 2.11a), les variations temporelles du signal sont nettement plus importantes qu'au maximum du signal. Le bruit présente des dérives lentes et semble corrélé sur d'assez grandes périodes (le produit d'autocorrélation indique que les variations s'échelonnent sur une centaine de secondes), ce que nous attribuons au mouvement des masses d'air dans la salle d'expérience. Cela est confirmé par la mesure en un point d'annulation du signal THz ( $\tau = \tau_{\text{zero}}$ , deuxième courbe) où l'on est essentiellement sensible à  $n_\phi(t) \frac{\partial s}{\partial \tau}$ . L'aspect du bruit y est très similaire au cas précédent, tandis que le signal est sensé être nul (on ne peut attribuer le regain de bruit aux fluctuations d'intensité du laser ou au niveau des antennes).

Les fluctuations d'intensité du laser amènent une réduction du rapport signal à bruit (maximum du signal comparé à l'écart-type du bruit) d'un facteur 4 par rapport au bruit électronique seul (le rapport signal à bruit  $\max[s(\tau)]/\sigma_{n\{b,s\}}$  est représenté figure 2.11b). Notons que si l'on peut améliorer le rapport signal à bruit en maximum en augmentant le temps d'intégration, les lieux d'échantillonnage qui présentent des variations fortes sont soumis à d'autres contraintes. Par conséquent, si l'on souhaite effectuer des mesures à des points de pente maximale (pour des expériences de pompe-sonde, où la ligne à retard

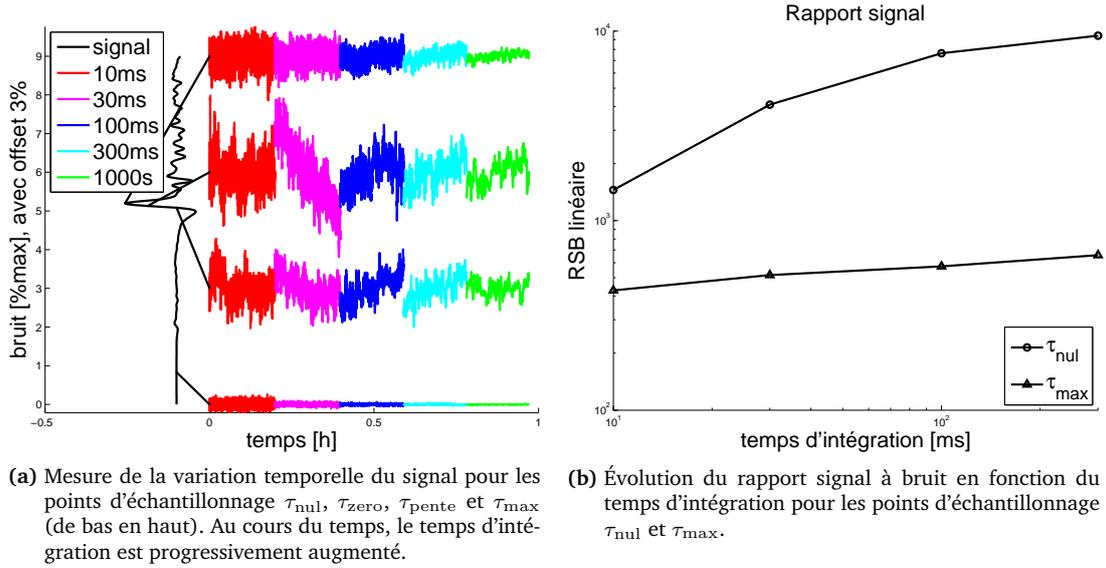


FIGURE 2.11 – Acquisition des différents types de bruit et relation avec le temps d'intégration de l'amplificateur à détection synchrone.

du système THz est fixe, ou bien de l'imagerie), il ne sera pas nécessairement souhaitable d'augmenter le temps d'intégration, car cela implique d'effectuer des mesures plus longues qui seront corrompues par le jitter.

Si l'on suppose dorénavant que le *jitter* est négligeable à l'échelle d'une mesure complète du signal ( $n_\phi(t) = -\Delta\tau$  est constant le temps de balayer la ligne à retard), et que l'on regroupe en un terme commun  $n$  les termes de bruit électronique de détection  $n_b$  et  $n_s$ , on obtient pour chaque réalisation  $k$  de mesure d'un signal :

$$s_k(\tau) = s(\tau - (\Delta\tau)_k) + (n(\tau))_k \quad (2.12)$$

dont la transformée de Fourier s'exprime :

$$\tilde{S}_k(\nu) = \tilde{S}(\nu)e^{i2\pi\nu(\Delta\tau)_k} + \tilde{n}_k(\nu). \quad (2.13)$$

La phase spectrale entre deux mesures  $s_i$  et  $s_j$  vaut donc :

$$\begin{aligned} \Delta\phi_{i,j}(\nu) &= \arg[\tilde{S}_i(\nu)\tilde{S}_j^*(\nu)] \\ &= \arg \left[ |\tilde{S}(\nu)|^2 e^{i2\pi\nu((\Delta\tau)_i - (\Delta\tau)_j)} \left( 1 + \underbrace{\frac{\tilde{n}_i(\nu)\tilde{n}_j^*(\nu)e^{i\phi_1(\nu)}}{|\tilde{S}(\nu)|^2} + \frac{\tilde{n}_i(\nu)e^{i\phi_2(\nu)}}{\tilde{S}(\nu)} + \frac{\tilde{n}_j^*(\nu)e^{i\phi_3(\nu)}}{\tilde{S}(\nu)}}_{\text{perturbations}} \right) \right] \\ &= 2\pi\nu [(\Delta\tau)_i - (\Delta\tau)_j] + \phi_g(\nu) \end{aligned} \quad (2.14)$$

avec  $\phi_{\{1,2,3\}}(\nu)$  des phases composées<sup>7</sup> et  $\phi_g(\nu)$  une phase qui permet de rendre compte des perturbations de la phase spectrale liée au bruit  $n$ . La phase spectrale relative entre deux mesures comporte donc une composante linéaire majoritaire. À l'aide de l'équation 2.7 et les mesures effectuées précédem-

7. Ces phases se calculent sans problèmes, mais entachent la lisibilité de l'équation.

ment (figure 2.9b), nous pouvons déduire à l'aide d'une régression linéaire sur l'écart-type de la phase entre plusieurs mesures  $\sigma_{\phi,n}(\nu)$  l'écart-type de la variation du chemin optique, qui vaut 625 nm (soit un décalage temporel de 2 fs, à comparer au pas d'échantillonnage temporel de 66 fs).

On peut retrouver cette valeur par une estimation dans le domaine temporel, à l'aide du calcul de la dérivée  $\frac{\partial s}{\partial \tau}$ , des mesures  $s_t(\tau_{\text{zero}})$  et  $s_t(\tau_{\text{pente}})$  de la figure figure 2.11a. En effectuant le développement limité  $s(\tau + \Delta\tau) - s(\tau) \sim \Delta\tau \frac{\partial s}{\partial \tau}$ , on obtient :

$$\Delta\tau \sim \frac{s(\tau + \Delta\tau) - s(\tau)}{\frac{\partial s}{\partial \tau}(\tau)} \simeq \frac{\max_t (s_t(t, \tau)) - \min_t (s_t(t, \tau))}{\frac{\partial s}{\partial \tau}(\tau)}. \quad (2.15)$$

L'estimation des variations extrêmes du chemin optique sur une heure à l'aide de mesures effectués à l'inversion de signe (resp. à la pente maximale) est de  $3.5 \mu\text{m}$  à (resp.  $3.7 \mu\text{m}$ ), ce qui représente une variation d'environ 1 ppm du chemin optique total. Ces variations présentent un écart-type de 628 nm (resp. 545 nm), ce qui correspond aux résultats déterminés précédemment dans le domaine fréquentiel.

Nous pouvons en profiter pour proposer une procédure alternative de sommation de plusieurs signaux similaires permettant de limiter l'influence de la variation de chemin optique, ce afin de mieux rendre compte de comment le bruit évolue en fonction de l'amplitude dans le domaine temporel. Pour cela, il nous suffit d'annuler la phase spectrale relative entre les différentes mesures et une mesure  $s_n$  que l'on choisit comme référence avant de les sommer :

$$s_n^{\text{moyen}} = \frac{1}{N} \sum_k \mathcal{F}^{-1} \left( \tilde{S}_k \exp(-i \arg[\tilde{S}_k \tilde{S}_n^*]) \right) = \frac{1}{N} \sum_k \mathcal{F}^{-1} \left( |\tilde{S}_k| \exp(i \arg[\tilde{S}_n]) \right). \quad (2.16)$$

Comme le montre la figure 2.12, les fortes fluctuations aux points de dérivée maximale disparaissent et le bruit devient corrélé à l'amplitude locale de l'impulsion. On retrouve bien le rapport 1 à 4 entre le bruit de base et le bruit au maximum du signal que l'on observait dans la figure 2.11b.

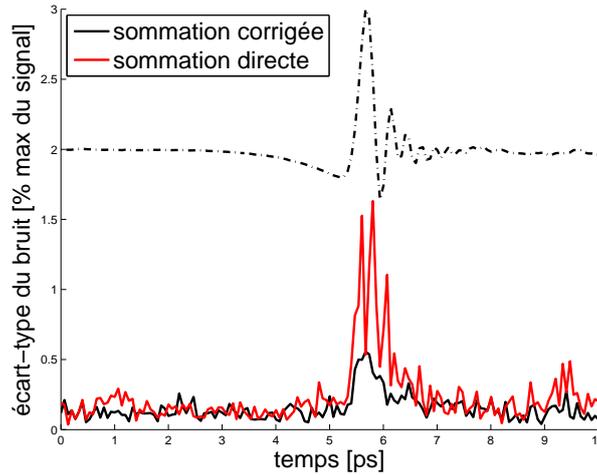


FIGURE 2.12 – Sommation de signaux corrigés en phase ; impulsion THz pour comparaison.

Notons que cette procédure ne permet pas de supprimer les fluctuations de phases absolues, car la référence que l'on choisit n'est pas elle-même corrigée en phase.

### 2.1.2.2 Bruits extérieurs au système

L'environnement de la salle d'expérience contient de nombreuses sources de bruit. La connaissance des zones de fréquence pour lesquelles le bruit est minimal est important afin de déterminer une fréquence de rotation du hacheur mécanique requis pour la détection synchrone (qui est limitée mécaniquement à 400 Hz). À l'aide de l'amplificateur à détection synchrone synchronisé sur un oscillateur local de fréquence variable, nous avons estimé l'intensité des bruits indépendants des procédés de génération et de détection THz.

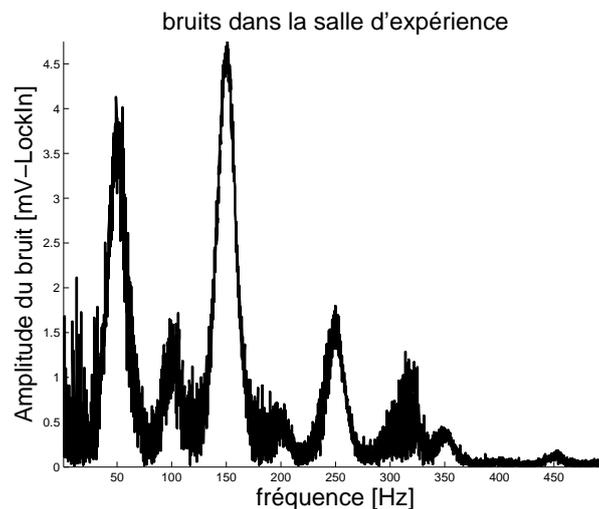


FIGURE 2.13 – Spectre de bruit de la salle d'expérience.

Comme souvent, on retrouve les harmoniques de la fréquence du réseau électrique. Nous avons choisi d'effectuer les mesures en hachant le faisceau à 280 Hz pour limiter l'influence de ces bruits. Notons que lorsque l'on se situe dans une zone proche du bruit, les mesures ont une certaine tendance à osciller lentement en raison du battement entre la fréquence hacheur et la source de bruit.

### 2.1.2.3 Influence de la tension de polarisation des antennes

La différence de potentiel qui est appliquée entre les deux lignes métalliques de l'antenne est à l'origine de l'accélération des photo-porteurs ; elle influence donc l'amplitude du champ THz émis. Nous avons procédé à des mesures en modifiant la tension appliquée : l'évolution de l'amplitude au sommet de l'impulsion en fonction de la tension appliquée est linéaire dans la plage de tension (figure 2.14a). En revanche, la forme temporelle globale de l'impulsion s'en trouve légèrement modifiée (figure 2.14b).

Cela nous indique qu'il est logiquement préférable d'utiliser des tensions élevées. La faible distance entre les lignes métalliques limite toutefois la tension maximale d'utilisation ( $< 100$  V) car des claquages peuvent intervenir et détruire l'antenne (image 2.15).

Le comportement linéaire invite certaines équipes à moduler la tension de polarisation plutôt que d'utiliser un hacheur optique dont la fréquence de rotation est limitée à quelques centaines de Hertz. Cela semble raisonnable si l'amplitude de la modulation n'est pas trop importante. Nous avons tenté d'utiliser ce type de modulation, mais les signaux ainsi détectés présentaient un décalage très gênant que l'on attribue au rayonnement des câbles du générateur de fonction. Par ailleurs, nous n'avons pas constaté de gain évident en termes de rapport signal à bruit.

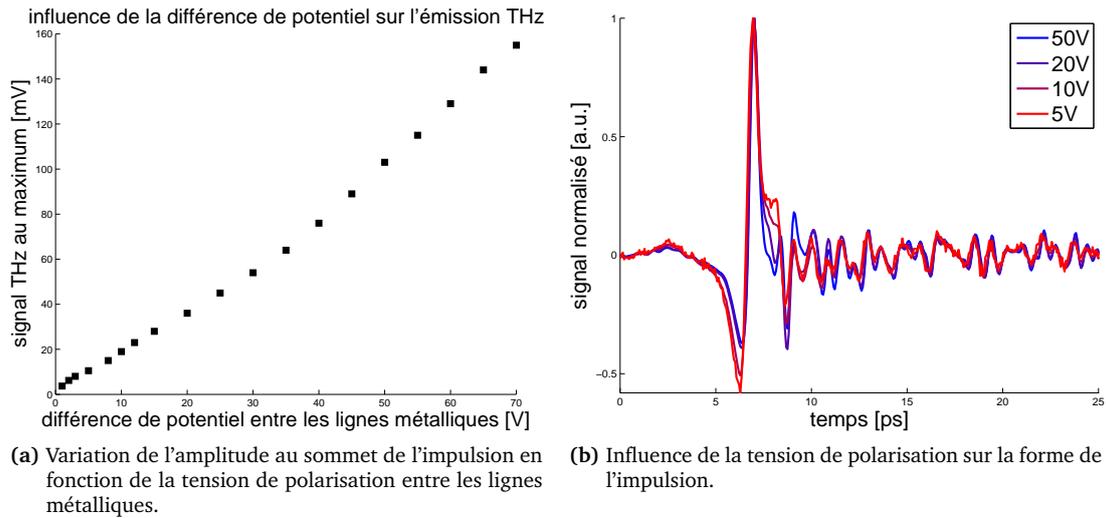


FIGURE 2.14 – Influence de la différence de potentiel entre les lignes métalliques de l’antenne d’émission et l’impulsion THz émise.

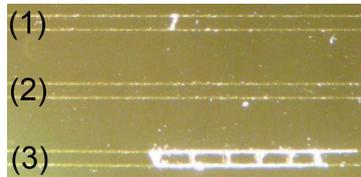


FIGURE 2.15 – Détail de trois antennes sur substrat en GaAs. (1) antenne détruite à cause d’une trop grande puissance laser incidente. (2) antenne fonctionnelle. (3) antenne détruite par claquage électrique.

#### 2.1.2.4 Influence de la puissance du laser incident

Les impulsions du laser femtoseconde sont à l’origine de la génération des photo-porteurs dans les antennes. Une intensité plus forte augmente le nombre de photo-porteurs et par là l’amplitude de l’impulsion THz émise ou le courant produit dans l’antenne de détection. Nous avons atténué l’intensité incidente moyenne (les impulsions femtosecondes ont des puissances-crête bien supérieures, mais elles varient comme l’intensité moyenne) sur chacune des antennes à l’aide d’une densité optique variable (figures 2.16a et 2.16b). Le comportement n’est clairement pas linéaire et semble montrer des phénomènes de saturation. Augmenter la puissance du laser incident ne permet donc pas d’améliorer la puissance du rayonnement THz.

Nous avons tenté de moduler le faisceau laser incident sur l’antenne émettrice à l’aide d’un chopper optique ; il y avait là encore un décalage dans les mesures dont l’origine n’est pas bien déterminée.

#### 2.1.2.5 Influence de la dispersion de groupe des impulsions laser incidentes

Le support temporel des impulsions térahertz émises par l’antenne d’émission dépend de la durée des impulsions issues du laser femtoseconde qui génèrent les photoporteurs ainsi que du taux de recombinaison de ces photo-porteurs dans le substrat de GaAs. Afin de déterminer des deux paramètres lequel est limitant, nous avons placé des lames de microscope en verre de 1 mm dans le faisceau laser incident sur l’antenne émettrice. La durée de l’impulsion gaussienne de largeur temporelle  $\tau_{p0}$  après propagation

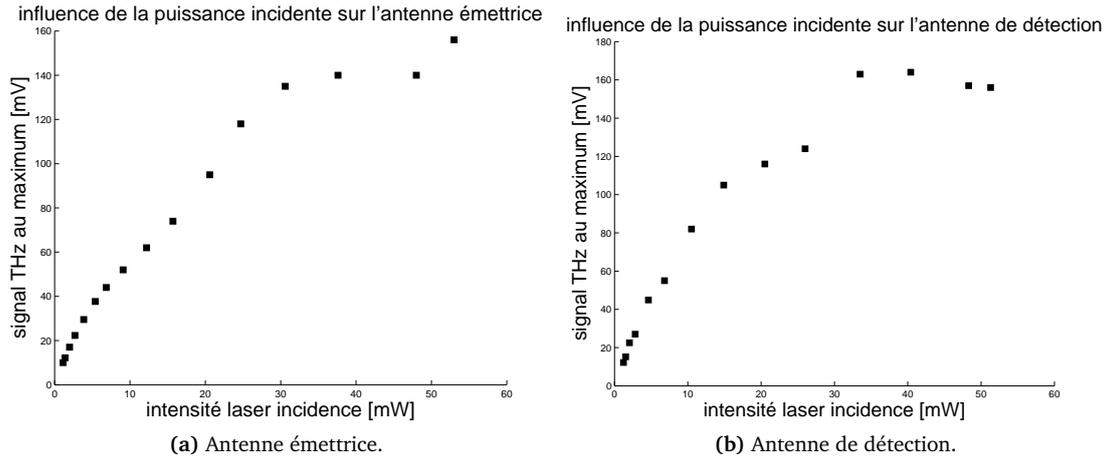


FIGURE 2.16 – Influence de l'intensité du laser sur les antennes d'émission et de détection.

sur une longueur  $L$  dans un matériau de dispersion de groupe  $k''$  vaut [Saleh et Teich, 2007] :

$$\tau_p(L) = \tau_{p0} \sqrt{1 + \left[ \frac{(4 \ln 2) |k''| L}{\tau_{p0}^2} \right]^2}. \quad (2.17)$$

Dans la silice fondue<sup>8</sup>,  $k'' = 36.2 \text{ fs}^2/\text{mm}$  aux longueurs d'ondes du laser, ce qui nous indique un allongement de la durée d'impulsion<sup>9</sup> de 12 fs à 85 fs.

Après le passage dans 10 mm de verre, l'amplitude de l'impulsion s'en trouve diminuée (d'un facteur 3.5 pour dix lames de 1 mm), en partie attribuée aux pertes par réflexion et absorption sur les lames) et leur aspect temporel légèrement modifié (figure 2.17a)), sans que son contenu fréquentiel en soit modifié.

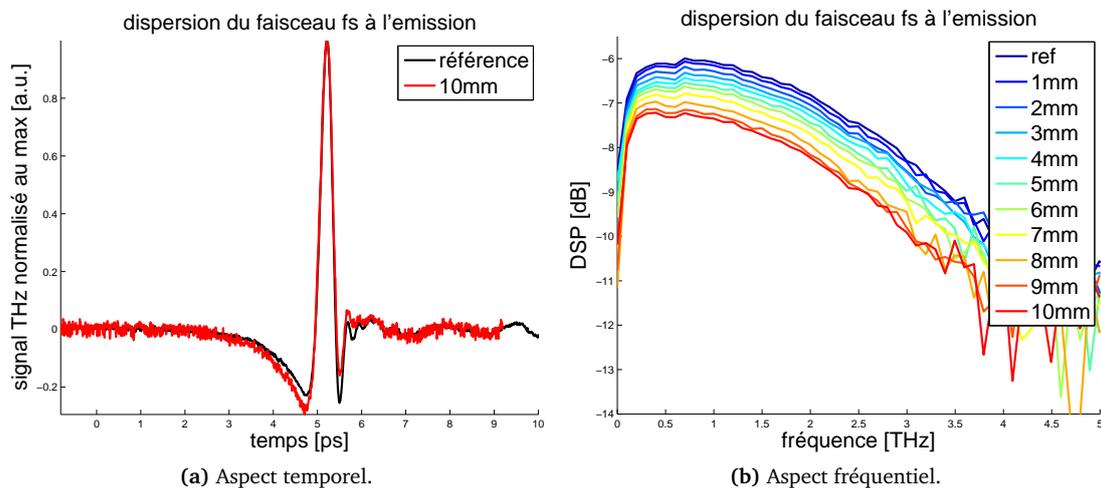


FIGURE 2.17 – Effet de la dispersion de l'impulsion femtoseconde incidente sur l'antenne émettrice en fonction de nombre de lames de microscope de 1 mm introduites dans le faisceau.

8. Nous ne connaissons pas la nature exacte du matériau qui compose le verre des lames de microscope. Nous supposons qu'il s'agit de silice fondue, mais il semblerait que ces verres ont plutôt une dispersion de groupe de l'ordre de  $300 \text{ fs}^2/\text{mm}$ . Nous préférons cependant une estimation *a minima*.

9. Précisons que les impulsions en sortie du laser femtoseconde effectuent six réflexions sur un paire de miroirs chirpés destinés à pré-compenser la dispersion qui a lieu dans les lentilles en silice fondues servant à focaliser le faisceau sur l'antenne.

De même, la précision de l'échantillonnage temporel dépend de ces mêmes paramètres, de manière plus critique encore. Pourtant, la dispersion introduite par un épaisseur de 10 mm de verre ne semble pas compromettre la résolution fréquentielle (figure 2.18b).

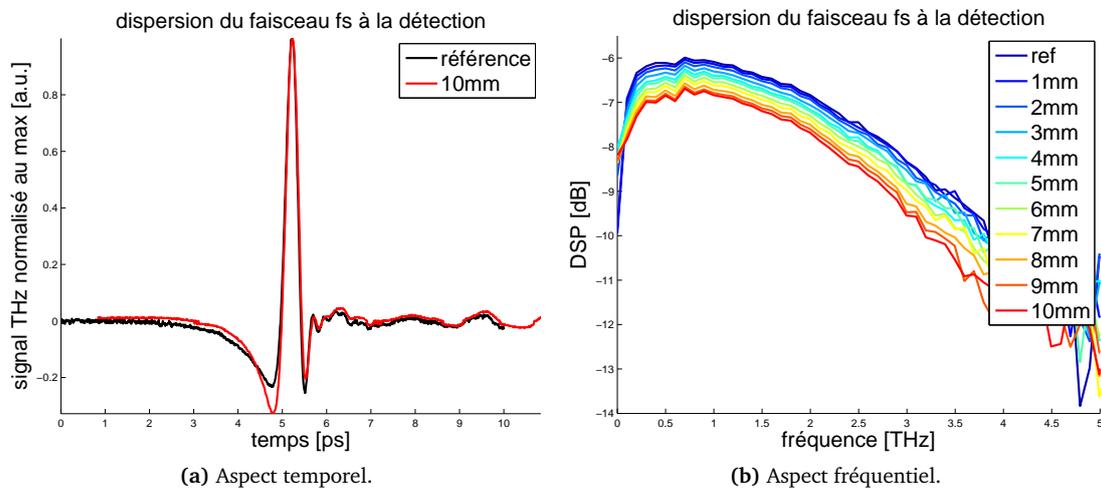


FIGURE 2.18 – Effet de la dispersion de l'impulsion femtoseconde incidente sur l'antenne de détection en fonction de nombre de lames de microscope de 1 mm introduites dans le faisceau.

Nous pouvons ainsi considérer que nos expériences ne sont pas limitées par la durée des impulsions femtosecondes.

### 2.1.3 Conclusion sur la caractérisation des systèmes de spectroscopie par domaine temporel

Les systèmes de spectroscopie par domaine temporel présentent un rapport signal à bruit de l'ordre de 30 dB, qui se trouve d'abord limité par le temps d'intégration de l'amplificateur à détection synchrone puis par les fluctuations de chemin optique. Il s'agit donc de trouver un compromis entre les deux lorsque l'on cherche à faire une série de mesure, pour limiter l'incidence du bruit de phase qui est lui de l'ordre de  $1^\circ \cdot \text{THz}^{-1}$  sur des temps longs.

Par ailleurs, la puissance du rayonnement térahertz n'est pas limitée en pratique par la puissance du laser incident, et la résolution spectrale n'est pas entravée par la dispersion des impulsions femtosecondes due aux différents matériaux qu'elles doivent traverser avant d'atteindre les antennes. Seule la différence de potentiel entre les lignes métalliques pourrait être augmentée, en courant le risque de provoquer un claquage électrique et la destruction de l'antenne.

## 2.2 Spectroscopie

Les techniques de génération d'impulsions THz et de détection résolue en temps permettent de connaître directement le spectre des impulsions en effectuant la transformée de Fourier temporelle du signal mesuré. Dès lors, il devient très simple de déterminer les propriétés spectrales des matériaux en regardant comment ces derniers modifient les impulsions THz : c'est ce que l'on nomme *Time-Domain Spectroscopy* (TDS). Les champs électriques appliqués sont considérés suffisamment faibles<sup>10</sup> pour que

10. Nous n'avons pas été en mesure de déterminer la puissance THz générée à l'aide d'un détecteur étalonné, mais en utilisant les valeurs données pour d'autres systèmes de TDS similaire au nôtre [Coutaz, 2008], nous estimons que la puissance crête de nos

l'on puisse s'adonner à de la spectroscopie linéaire (certains groupes s'intéressent toutefois aux effets non-linéaires dans les matériaux [Hebling et al., 2008]).

## 2.2.1 Mesure de spectres

Pour procéder à des mesures de spectroscopie en domaine temporel, il faut effectuer deux mesures :

- une mesure de référence  $E_{\text{ref}}(\tau)$  qui permet de connaître le spectre  $\tilde{E}_{\text{ref}}(\nu)$  des impulsions générées et qui servira de fonction d'appareil,
- une mesure  $E_{\text{ech}}(\tau)$  où l'impulsion traverse un échantillon d'épaisseur  $L$  que nous supposons homogène, à face parallèle illuminé sous incidence normale et suffisamment épais pour pouvoir négliger les réflexions internes (figure 2.19).

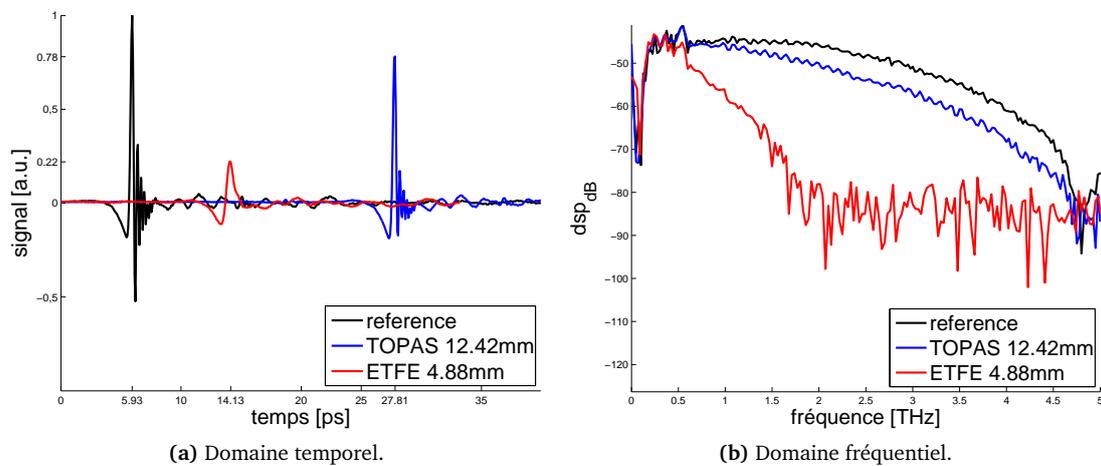


FIGURE 2.19 – Une mesure de référence et deux mesures à travers des échantillons de TOPAS (copolymère d'éthylène cyclique) et d'ETFE (copolymère d'éthylène tetrafluoroéthylène).

La matériau étant linéaire et invariant dans le temps (LTI), il est caractérisé par une réponse impulsionnelle  $h_{\text{mat}}(t)$ ; la relation entre l'impulsion de référence et celle ayant traversé le matériau peut s'écrire formellement sous la forme d'un produit de convolution :

$$E_{\text{ech}}(\tau) = (h_{\text{mat}} * E_{\text{ref}})(\tau) = \int_{\mathbb{R}} h_{\text{mat}}(\tau - t) E_{\text{ref}}(t) dt, \quad (2.18)$$

ce qui dans le domaine fréquentiel s'exprime :

$$\tilde{E}_{\text{ech}}(\nu) = \tilde{H}_{\text{mat}}(\nu) \tilde{E}_{\text{ref}}(\nu). \quad (2.19)$$

La traversée du milieu par le champ incident fait intervenir trois interactions distinctes :

- la traversée de l'interface d'entrée air-matériau qui se fait avec un coefficient de transmission  $t^{1 \rightarrow 2}$ ,
- la propagation au sein du milieu représentée par une fonction de transfert  $\tilde{H}_{\text{prop}}(\nu)$  et liée à son épaisseur optique ainsi qu'à ses propriétés d'absorption,
- la traversée de l'interface de sortie qui se fait avec un coefficient de transmission  $t^{2 \rightarrow 1}$ .

La figure 2.20 réalisée à partir de simulations numériques permet de mieux appréhender ces trois interactions.

---

impulsions est de l'ordre du microwatt.

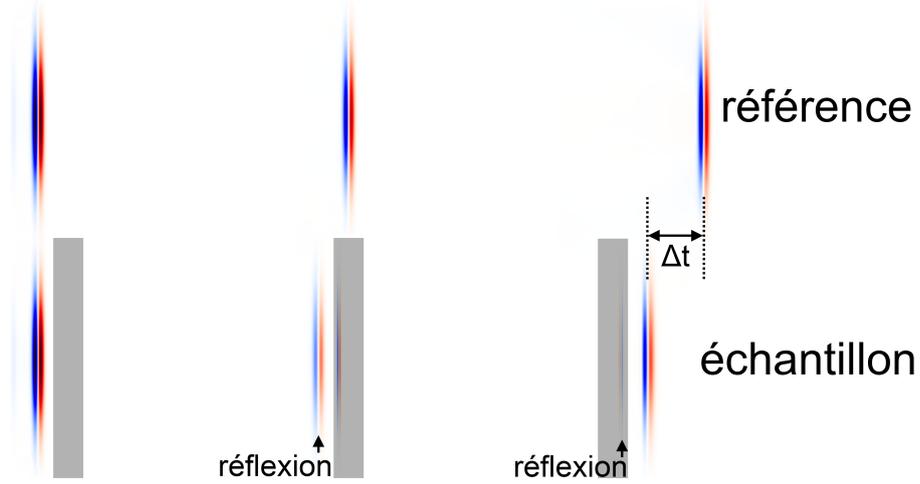


FIGURE 2.20 – Illustration des trois interactions principales qui ont lieu dans un matériau. À gauche, avant de pénétrer dans le milieu. Au centre, juste après l'entrée dans le milieu. À droite, juste après la sortie du milieu. (simulations réalisées avec le logiciel *MEEP* ; matériau d'indice 2, sans absorption, d'épaisseur  $2\lambda$ ).

En considérant que l'indice de l'air est  $\tilde{n}_1 = 1$  et en prenant en compte le fait que l'impulsion de référence traverse en lieu et place du matériau une épaisseur optique  $\tilde{n}_2 L$ , ces interactions permettent de déterminer la fonction de transfert globale  $\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu)$ , que l'on peut déterminer expérimentalement par élimination de la réponse du système  $\tilde{E}_{\text{ref}}$  :

$$H_{\text{mat}}(\nu) = t^{1 \rightarrow 2} H_{\text{prop}}(\nu) t^{2 \rightarrow 1} = \frac{4\tilde{n}_2}{(1 + \tilde{n}_2)^2} e^{-i2\pi\nu(\tilde{n}_2-1)L/c} = \frac{\tilde{E}_{\text{ech}}(\nu)}{\tilde{E}_{\text{ref}}(\nu)}. \quad (2.20)$$

### 2.2.1.1 Détermination numérique des propriétés optiques d'un matériau

Comme  $\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu)$  exprime une déconvolution par l'intermédiaire d'une division dans le domaine fréquentiel, et que l'expression 2.20 ne peut être directement inversée, il faut procéder à certaines approximations pour déterminer les propriétés du matériau.

Dans un premier temps, on peut considérer que ni l'indice de réfraction ni le coefficient d'absorption ne dépendent de la fréquence, et que les coefficients de réflexion sont négligeables. Dans ce cas, on a :

$$\begin{aligned} E_{\text{ech}}(\tau) &\simeq \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{E}_{\text{ref}}\tilde{H}_{\text{prop}}\}(\tau) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{E}_{\text{ref}}(\nu)e^{-i2\pi\nu(n-1)L/c}e^{-\alpha L/2}\} \\ &\simeq E_{\text{ref}}(\tau) * \delta\left(\tau - \frac{(n-1)L}{c}\right) e^{-\alpha L/2} \sim E_{\text{ref}}\left(\tau - \frac{(n-1)L}{c}\right) (1 - \alpha L/2). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Cela permet d'obtenir très facilement une première approximation de l'indice de réfraction dans le domaine temporel grâce à l'écart entre le temps d'arrivée au maximum de l'impulsion de référence  $\tau_{\text{max}}^{\text{ech}}$  et celui de l'impulsion ayant traversée le matériau  $\tau_{\text{max}}^{\text{ref}}$  :

$$n \simeq (\tau_{\text{max}}^{\text{ech}} - \tau_{\text{max}}^{\text{ref}}) \frac{c}{L} + 1 = 2 \frac{\Delta d}{L} + 1 \quad (2.22)$$

où  $d$  est le recul de la ligne à retard qui permet de faire confondre les maximums (c'est le paramètre que l'on fait varier durant les expériences<sup>11</sup>). On peut procéder de même pour évaluer le coefficient

11.  $d$  est, par analogie avec l'interféromètre de Michelson, la distance nécessaire pour égaliser les chemins optiques de ses deux

d'absorption, en comparant les valeurs au maximum des deux mesures :

$$\alpha \approx \left(1 - \frac{\max_{\tau}[E^{\text{ech}}(\tau)]}{\max_{\tau}[E^{\text{ref}}(\tau)]}\right) \frac{1}{2L}. \quad (2.23)$$

Ces deux estimations peuvent en particulier servir comme paramètres initial pour les procédures d'extraction numériques de l'indice discutées par la suite.

Pour aller plus loin et étudier la dépendance en fréquence de l'indice complexe, nous relâchons les hypothèses précédentes pour les remplacer par celle, plus faible, que les effets d'absorption sont faibles relativement aux effets de propagation, *i.e.*  $\text{Re}(\tilde{n}(\nu)) = n(\nu) \gg \text{Im}(\tilde{n}(\nu)) = -\kappa(\nu)$ . Dans ce cas, le préfacteur lié aux coefficients de transmission dans relation 2.20 peut être considéré comme réel et l'on a :

$$\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu) \simeq \underbrace{\frac{4n(\nu)}{(1+n(\nu))^2}}_{\text{attenuation}(\in\mathbb{R})} \underbrace{e^{-2\pi\kappa(\nu)\nu L/c} e^{-i2\pi(n(\nu)-1)\nu L/c}}_{\text{propagation}}. \quad (2.24)$$

La phase spectrale ne dépend dès lors que de la partie réelle de l'indice  $\tilde{n}(\nu)$ , ce qui après déplissage (problème que nous aborderons dans la section 2.4.1) nous permet de calculer l'indice de réfraction  $n(\nu)$  :

$$n(\nu) = -\arg[\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu)] \frac{c}{2\pi\nu L} + 1. \quad (2.25)$$

On peut ensuite calculer le coefficient d'atténuation  $\kappa(\nu)$  en injectant les valeurs calculées pour les indices de réfraction :

$$\kappa(\nu) = -\left(\ln |\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu)| - \ln \left(\frac{4n(\nu)}{(1+n(\nu))^2}\right)\right) \frac{c}{2\pi\nu L}. \quad (2.26)$$

Pour n'avoir recours à aucune hypothèse, il faut utiliser un algorithme d'optimisation non-linéaire ou convexe (comme l'algorithme de *Nelder-Mead* ou du *point-intérieur*) pour minimiser une fonction de mérite  $M(n, \kappa)$  bidimensionnelle<sup>12</sup> qui pondère l'écart entre la mesure et la fonction explicite  $\tilde{H}_{\text{mat}}(\nu, n, \kappa)$ . Le choix de la fonction de mérite a une grande importance sur la précision des résultats. La première fonction de mérite que l'on peut proposer est une fonction qui sépare les parties réelles et imaginaires de la fonction de transfert. Toutefois, la phase linéaire induit de fortes oscillations, ce qui compromet la stabilité de l'algorithme. Une seconde fonction de mérite intéressante peut être définie en séparant les modules et les arguments de la fonction de transfert. Leurs variations respectives sont plus douces et les résultats attendus meilleurs. Toutefois, ce genre de procédure tend à donner plus de poids à un paramètre qu'à l'autre, car ils ne s'expriment pas dans la même unité et sont par conséquent incommensurables. Il a donc été proposé de modifier légèrement cette dernière fonction de mérite en utilisant le logarithme du module de la fonctions de transfert [Duvillaret et al., 1996]. C'est cette procédure d'extraction d'indice que nous utiliserons par la suite.

L'étude des milieux liquides se fait en ayant recours à une cuve à faces parallèles, dont l'utilisation perturbe la fonction de transfert. Les résultats sont très similaires en modifiant les coefficients de Fresnel pour prendre en compte les différences dans les chocs d'indices et en ayant comme mesure de référence la mesure de la cuve à vide. En notant  $\tilde{n}_c$  l'indice du matériau de la cuve (que l'on suppose connu pour

bras.

12. L'indice complexe, composé d'une partie réelle et d'une partie imaginaire est considéré comme bidimensionnel car le corps des complexe n'est pas totalement ordonné.

la discussion), on a la relation :

$$\tilde{H}(\nu) = \frac{\tilde{E}_{\text{cuve+liq}}(\nu)}{\tilde{E}_{\text{cuve}}(\nu)} = \frac{\tilde{n}(1 + \tilde{n}_c)^2}{\tilde{n}_c(\tilde{n} + \tilde{n}_c)^2} e^{-2i\pi\nu(\tilde{n}-1)L/c_0}. \quad (2.27)$$

Les considérations précédentes concernant la détermination numérique de l'indice restent valables.

L'effet d'étalon qui provient des réflexions internes multiples dans les matériaux (figure 2.21a) peut être utilisé pour accroître la précision (pour mémoire, c'est sur cet effet étalon que se base le principe de fonctionnement de l'interféromètre de Fabry-Pérot). Il permet de déterminer l'indice complexe du matériau en même temps que son épaisseur, ce qui est utile lorsque l'échantillon est fin ou qu'il est difficile de la mesurer. Les interférences entre les différentes réflexions dépendent en effet directement de cette dernière. Temporellement, si l'on note  $\tau_0$ ,  $\tau_1$  et  $\tau_2$  les temps d'arrivée respectifs du maximum d'une mesure de référence, du maximum du champ transmis directement et du champ transmis après une double réflexion interne, on les relations :

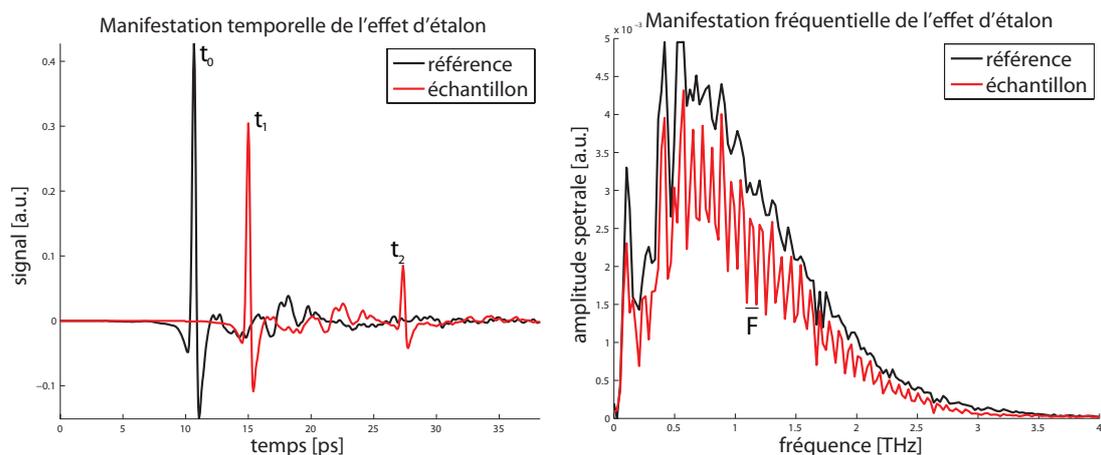
$$\begin{aligned} \tau_1 - \tau_0 &= (n - 1)L/c \\ \tau_2 - \tau_1 &= 2nL/c \\ \tau_2 - \tau_0 &= (3n - 1)L/c \end{aligned}$$

En combinant ces valeurs, on obtient l'expression utile suivante :

$$L = (t_0 - \frac{3}{2}t_1 + \frac{1}{2}t_2)c. \quad (2.28)$$

En l'absence de dispersion forte qui tend à accroître l'incertitude sur la position du maximum, la précision de cette relation est limitée par le pas d'échantillonnage temporel, de l'ordre de 66 fs dans nos expériences, que l'on peut toutefois diminuer.

Fréquentiellement, le signal contenant l'impulsion transmise et sa réplique est modulée par une sinusoïde de période spectrale  $F = 2\pi c/(nL)$  (figure 2.21b).



(a) Manifestation temporelle de l'effet étalon. Les temps des maximums des impulsions sont indiquées.

(b) Manifestation fréquentielle de l'effet étalon. La période d'oscillation  $F$  correspondant aux interférences spectrales est indiquée.

FIGURE 2.21 – Effet d'étalon dû au réflexions internes dans un matériau mince : une lame de silicium.

La détermination préliminaire de l'indice permet donc de connaître l'épaisseur du matériau. En généralisant à un nombre quelconque d'échos, Duvillaret et ses collègues [Duvillaret et al., 1999] ont présenté un algorithme de détermination conjointe de l'indice complexe et de l'épaisseur. Ce type de procédure est particulièrement adaptée au semi-conducteurs qui ont un indice élevé et de absorptions modérées, mais il faut que l'échantillon soit fin et peu absorbant.

## 2.3 Les matériaux du domaine THz

Une des grandes problématiques du domaine THz est de trouver des matériaux ayant de bonnes propriétés dans cette gamme de fréquence. Dans le domaine optique, de nombreux matériaux sont très bien connus (il suffit de l'œil pour juger de leurs propriétés potentielles) et un vaste catalogue de propriétés sont à la disposition de l'opticien. Ce n'est bien évidemment pas le cas pour ce qui nous concerne<sup>13</sup>.

Cela en raison de la jeunesse du domaine d'étude mais également à cause de la très grande étendue spectrale que nous avons à considérer.

Les matériaux possèdent des propriétés assez similaires selon leur famille. Pour dresser un panorama des grandes tendances qui se dégagent, nous indiquons l'indice moyen des matériaux ainsi que la longueur caractéristique de transmission  $L_{car}$  qui est une métrique qui correspond à la longueur de matériau requise pour que la **puissance** d'une impulsion THz semblable à celles que nous étudions soit réduite d'un facteur 2, en prenant en compte les réflexions aux interfaces :

$$L_{car} = \operatorname{argmin}_L \left[ \left( \frac{4n}{(n+1)^2} e^{-\alpha L/2} \right)^2 < 0.5 \right].$$

Cela donne une métrique plus commode que celle du coefficient d'absorption  $\alpha$  ou du coefficient d'extinction  $\kappa$  qui ont des dépendances fréquentielles très variables selon les matériaux. Pour les matériaux d'indice plus élevés, nous indiquerons plutôt la longueur d'absorption  $L_{abs}$ , qui n'est que l'inverse du coefficient d'absorption moyen

$$L_{abs} = 1/\alpha.$$

Les mesures présentées ici ont été réalisées par notre équipe, à l'exception de celle qui seront marquées d'une étoile (\*), et nous donnons la référence aux articles qui font l'inspection des mêmes matériaux. Ces valeurs sont données à titre indicatif : la pureté des matériaux dépend souvent du fournisseur et les résultats peuvent parfois diverger fortement, ce qu'atteste les différences entre les mesures trouvées dans la littérature.

### 2.3.1 Les plastiques

Les plastiques présentent en général d'assez bonnes propriétés pour les applications térahertz : ils ont un indice optique de l'ordre de 1.5 et des coefficients d'absorption assez faibles (particulièrement à basse fréquence). La diffusion qu'ils présentent parfois dans le visible (leur aspect laiteux) est négligeable dans le domaine THz, si bien qu'ils constituent souvent des matériaux de choix. Certains plastiques sont transparents tant dans le domaine THz que dans le visible, ce qui les rend intéressants pour procéder aux alignements.

13. Même s'il existe des bases de données THz : accessible sur internet : <http://thzdb.org/>) compile des mesures effectuées sur certains matériaux par le RIKEN et le NICT, tandis que la base de donnée HITRAN (pour High-resolution TRANsmission molecular absorption database contient également des données couvrant le domaine THz.

Parmi les polymères les plus communément utilisés, on note le polyéthylène haute densité (HDPE) et le Téflon qui servent à la réalisation de lentilles pour les faisceaux THz.

Le film alimentaire, très fin, permet dans certain cas de servir de support à un objet lorsqu'il s'agit de maintenir des éléments en suspension dans l'air. De même, le polystyrène expansé, en raison de sa très faible densité, est pratiquement invisible dans le domaine THz. Le Parafilm M® est un film à base de polyoléfines et de cires régulièrement utilisé en biologie ; il est relativement transparent dans le domaine THz (95% de transmission en amplitude pour une feuille).

**TABLE 2.1** – Propriétés optiques de certains plastiques aux alentours de 1 THz .  
Références : [Sengupta et al., 2006, Podzorov et Gallot, 2008].

matériau	indice moyen	$L_{car}$ [mm]	transparence dans le visible	commentaires
polyéthylène haute-densité (HDPE)	1.528	18	non	
polyéthylène téréphtalate* (PET)	1.75	0.4	non	
polypropylène (PP)	1.49	$\simeq 10$	non	
polystyrène réticulé (PSX)	1.59	3.3	oui	
polystyrène expansé	<1.05	>20	non	
Teflon (PTFE)	1.440	13	non	
Zéonor	1.53	14.8	oui	
TPX (polyméthylpentène)	1.46	15.3	oui	
picarine*	1.52	20	oui	Tsurupica
TOPAS (copolymère d'éthylène cyclique)	1.53	20	oui	
ETFE (cop. d'eth. tetrafluoroéthylène)	1.50	1	oui	
PVDF (Polyfluorure de vinylidène)	1.6	0.5	non	
PDMS (Polydiméthylsiloxane)	1.33	0.3	oui	usage microfluidique
polyuréthane	1.64	0.3	non	photoélasticité (vis.)
film alimentaire	1.55	3.3	oui	légère diatténuation

### 2.3.2 Les liquides

Les liquides polaires qui présentent des liaisons dissymétriques comme la molécule d'eau et la plupart des solvants présentent généralement une forte absorption dans le domaine THz [Møller et al., 2009]. Nous discuterons du cas de l'eau dans le chapitre 4. Les liquides à bases d'hydrocarbures ou les huiles présentent des propriétés d'absorption beaucoup plus modérées, mais toutefois non-négligeables.

**TABLE 2.2** – Propriétés optiques de certains liquides aux alentours de 1 THz .  
Références : [Pedersen et Keiding, 1992, Kindt et Schmittenmaer, 1996, Ronne, 2000, Naftaly et al., 2005, Hirori et al., 2007, Ikeda et al., 2005, Jepsen et al., 2007, Kim et al., 2008, Jiusheng, 2010]

matériau	indice moyen	$L_{abs}$ [mm]	commentaires
eau	2.2	<0.1	
acétone	1.6	<0.1	
ethanol	1.5	0.1	
glycerol	1.8	0.7	
huile	1.49	0.9	huile de tournesol
hexaméthylsiloxane	1.44	1.4	
benzène*	1.50	1.2	
essence*	1.41	2.5	
kerosène*	1.44	15	

### 2.3.3 Les verres et les cristaux

Les verres (généralement à base de silice) sont très utilisés en optique classique, en raison de leur transparence et de leur dureté qui permet de les polir très finement. Ils ont un indice élevé ( $n > 2$ ) dans le domaine THz, mais la présence d'anions  $O^{2-}$  dans leur matrice les rend généralement absorbants dans le domaine THz.

TABLE 2.3 – Propriétés optiques de certains verres aux alentours de 1 THz .

Références : [Randall et Rawcliffe, 1967, Loewenstein et al., 1973, Grischkowsky et al., 1990]

matériau	indice moyen	$L_{\text{abs}}$ [mm]	commentaires
verre	2.57	0.1	lame de microscope
silice fondue	1.95	2.5	
quartz cristallin	$n_o=2.11$	35	biréfringent $\Delta n \simeq 0.04$
saphir cristallin*	$n_o=3.07$	7	forte biréfringence ( $\Delta n \simeq 0.4$ )
niobiate de lithium* ( $\text{LiNbO}_3$ )	$n_o=6.8$	0.3	forte biréfringence ( $\Delta n \simeq -1.6$ )
tantalate de lithium* ( $\text{LiTaO}_3$ )	$n_o=6.6$	0.3	biréfringence ( $\Delta n \simeq -0.2$ )

### 2.3.4 Les semi-conducteurs

Les semi-conducteurs intrinsèques, comme l'arséniure de gallium ou le silicium sont assez transparents dans le domaine THz et ont un indice de réfraction élevé. Lorsqu'ils sont dopés, les défauts augmentent leur conductivité, tant et si bien qu'ils deviennent fortement réfléchissants, en diminuant leurs qualités optiques.

TABLE 2.4 – Propriétés optiques de certains semi-conducteurs aux alentours de 1 THz .

Références : [Randall et Rawcliffe, 1967, Grischkowsky et al., 1990, Dai et al., 2004]

matériau	indice moyen	$L_{\text{abs}}$ [mm]	commentaires
silicium	3.41	20	wafer
silicium HR	3.41	$\gg 30$	très faible dispersion
germanium (Ge)	4	$>10$	
arséniure de gallium ( $\text{GaAs}$ ) HR	3.6	$>10$	
tellurure de Zinc* ( $\text{ZnTe}$ )	3.2	1.5	

#### 2.3.4.1 Silicium Haute-Résistivité

Les silicium haute résistivité ( $R > 10 \text{ k}\Omega \cdot \text{cm}$ ) est un matériau qui présente d'excellentes propriétés dans le domaine THz [Dai et al., 2004] : une dispersion et une absorption très faible. Son indice de réfraction est de 3.41, pratiquement constant sur la gamme de longueurs d'onde qui nous intéressent. Cet indice élevé introduit des pertes par réflexion aux interfaces importantes (30% en amplitude au total), qui sont largement compensées par sa très faible absorption et le rend tout indiqué pour y faire propager des faisceaux THz sur de longues distances.

### 2.3.5 Les composants optiques pour le domaine THz

Le domaine THz se rapproche du domaine optique dans la manière dont on met en forme les faisceaux. Les lentilles utilisées conventionnellement en optique ne sont toutefois pas utilisables à ces fréquences car les verres employés ne sont pas transparents dans cette gamme, et peu de fabricants proposent des éléments adaptés. Compte-tenu de la bonne transparence de certains matériaux comme le

polyéthylène HD ou le Téflon, bon nombre d'équipes travaillent avec ces matériaux pour focaliser les faisceaux. La grande longueur d'onde permet de s'affranchir d'un polissage poussé des optiques réalisées à l'aide d'outils mécaniques classiques (tour, fraiseuse). D'autres plastiques comme les copolymères d'éthylène cyclique (Topas®) ou la picarine (Tsurupica®) sont transparents dans le visible et dans le domaine THz. Cela est utile lorsque l'on souhaite procéder à un pré alignement optique, très souvent nécessaire car il n'y a pas de méthode simple pour optimiser leur disposition directement avec le faisceau THz.

Le silicium haute-résistivité est aussi fréquemment utilisé car il possède d'excellentes propriétés dans le domaine THz. Il sert notamment à la confection de lentilles et d'éléments plus complexes (voir chapitre 3). Le silicium est transparent dans l'infrarouge moyen, ce qui nous a permis d'utiliser un laser télécom ( $\lambda = 1550 \text{ nm}$ ) pour procéder à certains alignements.

Les métaux ont d'excellentes réflectivités dans le domaine THz. Les miroirs plans peuvent être obtenus en déposant une couche métallique sur du simple verre flotté, car l'état de surface n'est pas primordial au regard des longueurs d'ondes en présence. Une alternative fréquente à l'emploi de lentille est l'utilisation de miroirs paraboliques hors-axes (OAPM) qui permettent de focaliser le faisceau et de le rejeter à  $90^\circ$  pour pouvoir ensuite travailler avec ce dernier. Ces miroirs permettent eux aussi d'aligner le faisceau à l'aide d'un laser visible.

Tous les autres composants d'optique classique tels que les séparateur de polarisation, les guides d'onde, les filtres fréquentiels ou dichroïques sont encore au stade de la recherche, et il est bien difficile de faire en sorte qu'ils couvrent une aussi large gamme de longueurs d'onde. Il sera question des composants polarisants dans le chapitre suivant.

## 2.4 Phase des impulsions térahertz

La détection résolue en temps du champ électrique nous permet de connaître sa structure temporelle et sa phase en particulier. Nous étudierons dans le chapitre suivant les états de polarisation des impulsions térahertz, pour lesquels la notion de phase est primordiale. Il s'agit donc de discuter de la notion de phase d'un champ électrique et de distinguer les phases **spectrale**, **temporelle** et **porteuse-enveloppe** (CEP).

### 2.4.1 Phase spectrale

La phase spectrale  $\phi(\nu)$  d'un signal  $s(t)$  est l'argument de sa transformée de Fourier (temporelle)  $\tilde{S}(\nu)$  :

$$\phi(\nu) = \arg[S(\nu)] = \arctan\left(\frac{\text{Im}(S(\nu))}{\text{Re}(S(\nu))}\right) \quad (2.29)$$

où  $\arg$  est la fonction argument d'un nombre complexe.

Elle témoigne de la symétrie hermitienne de la transformée de Fourier des signaux réels :

$$\phi(-\nu) = \arg[S^*(\nu)] = -\phi(\nu) \quad \text{et} \quad \phi(\nu = 0) = 0. \quad (2.30)$$

La phase spectrale est définie par rapport à une référence des temps arbitraire en raison des propriétés de translation de la transformée de Fourier<sup>14</sup>. Par rapport à un signal hypothétiquement centré  $s_0(t)$ , les

14. La phase spectrale est en quelque sorte la partie imaginaire d'un logarithme complexe. À ce titre, elle est définie à une

signaux que l'on acquière s'expriment  $s(t) = s_0(t - \tau_0)$ , ce qui introduit une phase linéaire :

$$\arg[\tilde{S}(\nu)] = \arg[\tilde{S}_0(\nu)] + 2\pi\nu\tau_0 \quad (2.31)$$

que nous pourrions tenter de corriger numériquement afin d'en extraire deux informations plus pertinentes : la phase porteuse-enveloppe (CEP, pour *Carrier-Envelope Phase*) et la dérive en fréquence.

Généralement, on s'intéresse plutôt la phase spectrale relative entre deux signaux :

$$\Delta\phi(\omega) = \arg\left[\frac{S_2(\omega)}{S_1(\omega)}\right] = \arg[S_2(\omega)S_1^*(\omega)]. \quad (2.32)$$

Ces deux signaux peuvent être deux mesures référence-échantillon dans une mesure de spectroscopie par TDS ou, comme ce qui nous intéressera par la suite, la phase relative entre deux composantes de polarisation. La phase spectrale relative est aussi à symétrie hilbertienne.

**Déplissage numérique de la phase spectrale** Comme nous l'avons vu, il y a généralement une composante linéaire dans la phase spectrale (relative ou absolue), qui domine en général les autres ordres.

La phase spectrale étant calculée numériquement à  $2\pi$  près, on observe un plissage<sup>15</sup> (figure 2.22a) qui introduit des ambiguïtés qu'il est nécessaire de lever. Les algorithmes qui permettent d'effectuer le déplissage de la phase (comme celui utilisé par la fonction `unwrap` de *Matlab*) sont en général sensibles à la présence de bruit ce qui introduit des sauts de phases inopinés corrompant l'analyse de la phase.

Comme la phase linéaire est dominante par rapport aux autres ordres et qu'elle peut être facilement estimée par interpolation, nous pouvons aider les algorithmes de déplissage en les faisant travailler sur une phase ayant de moins fortes variations<sup>16</sup> :

- Tout d'abord, nous effectuons un premier déplissage afin d'en estimer la composante linéaire par méthode des moindres carrés.
- Nous multiplions ensuite les données complexes par une exponentielle complexe de phase linéaire opposée à celle estimée avant d'effectuer un nouveau déplissage ; les variations de phase étant plus douces, celui-ci comporte un nombre moins important d'artéfacts.
- Nous rajoutons ensuite numériquement la phase linéaire calculée précédemment afin d'avoir la phase complète (figure 2.22b).

Cette méthode est utile dans le cas de la détermination du spectre des matériaux, mais elle ne permet pas toujours d'éviter tous les artefacts : dans le cas de résonance spectrales, on peut assister à des sauts de phase qui peuvent ne pas être pris en compte par les algorithmes de déplissage.

## 2.4.2 Phase temporelle

Un signal analytique  $\hat{s}$  peut être décomposé en une amplitude et une phase sous la forme :

$$\hat{s}(t) = |\hat{s}(t)|e^{i\varphi(t)}. \quad (2.33)$$

constante près. Dans le cas de la transformée de Fourier discrète, la référence est le milieu de la fenêtre temporelle.

15. On préférera ce terme à celui de repliement, que l'on préférera associer à des chevauchements spectraux comme dans le cas des signaux sous-échantillonnés. Dans ce dernier cas, on ne peut recouvrer l'information.

16. À la manière dont on défroisse les vêtements avant de les repasser.

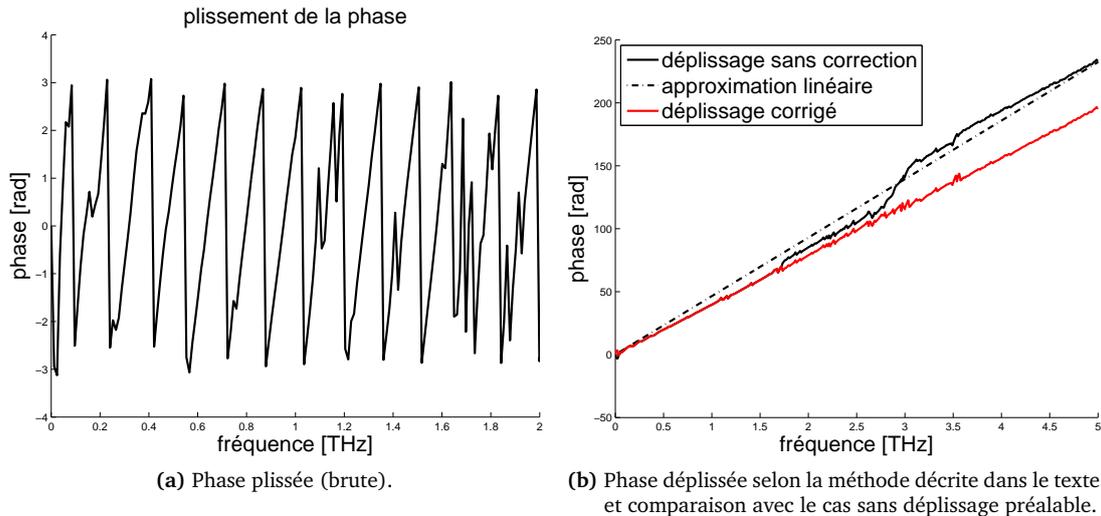


FIGURE 2.22 – Déplissage de la phase spectrale.

La phase temporelle  $\varphi(t)$  est l'argument du signal analytique :

$$\arg[\hat{s}(t)] = \varphi(t). \quad (2.34)$$

À l'aide de la phase temporelle, on peut définir la fréquence instantanée  $f_{\text{inst}}$  du signal par :

$$f_{\text{inst}}(t) = \frac{1}{2\pi} \frac{\partial \varphi}{\partial t}(t). \quad (2.35)$$

La figure 2.23 illustre la fréquence instantanée d'une impulsion THz.

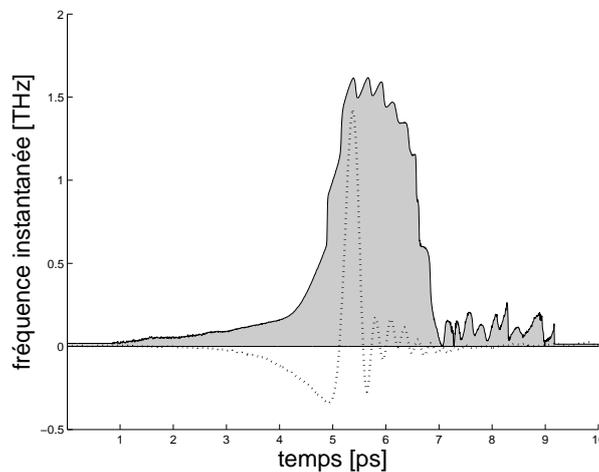


FIGURE 2.23 – Fréquence instantanée d'une impulsion THz typique (un filtre de Savitzky-Golay d'ordre 1 a été utilisé pour lisser la phase temporelle avant dérivation afin de diminuer le bruit ; cela a pour effet de diminuer également la résolution temporelle de la fréquence instantanée).

Il ne faut pas confondre la notion de fréquence instantanée et la notion de fréquence en tant que variable réciproque de la transformée de Fourier. La fréquence instantanée n'a d'utilité réelle que dans le cas où le signal est localement monochromatique... donc de fréquence constante<sup>17</sup>.

17. La fréquence instantanée d'une somme de deux sinusôides de deux fréquences différentes est la moyenne de ces fréquences.

Nous ne traiterons guère plus de la phase temporelle, si ce n'est pour souligner son rapport avec la phase porteuse-enveloppe.

### 2.4.3 Phase Porteuse-Enveloppe (CEP)

On modélise généralement une composante du champ électrique  $s(t)$  comme le produit d'une enveloppe gaussienne  $E(t)$  de largeur  $\sigma_t$  et d'une porteuse  $C(t)$  de pulsation  $\omega_0$ . La porteuse étant périodique, on peut définir une phase relative entre cette dernière et son enveloppe,  $\phi_{\text{cep}} = -\omega_0 t_{\text{ce}} [2\pi]$ , que l'on nomme phase porteuse-enveloppe (CEP) (figure 2.24) :

$$s(t) = C(t) \times E(t) \quad (2.36)$$

$$= \cos(\omega_0 t + \phi_{\text{cep}}) \times \exp\left(\frac{-t^2}{\sigma_t^2}\right) \quad (2.37)$$

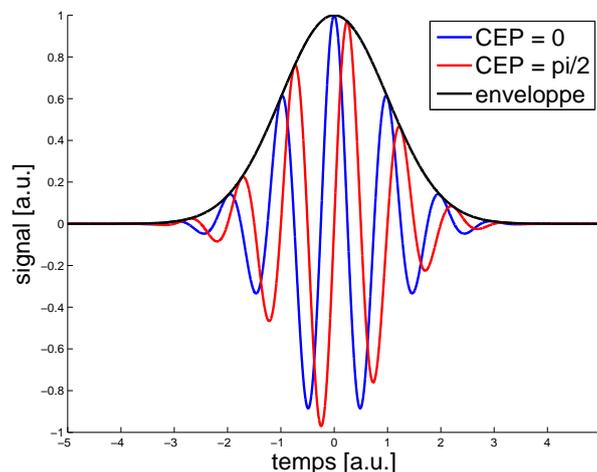


FIGURE 2.24 – Illustration de la CEP : deux porteuses sinusoidales modulent une enveloppe gaussienne avec une CEP différente (ici,  $\nu_0 = \omega_0/2\pi = \sigma_t$ ).

La CEP est indépendante du temps, ce qui permet de la relier aux phases temporelles et spectrales :

- La CEP traduit le décalage temporel entre les maximums de la porteuse et de l'enveloppe : c'est donc la phase temporelle au maximum de l'enveloppe, *lorsque celle-ci est bien définie*.
- La CEP étant indépendante du temps, elle correspond à la composante constante de la phase spectrale : elle est commune à toutes les fréquences.

Il est possible de modifier numériquement la CEP d'une impulsion  $s(t)$ , soit ajoutant une phase constante  $\Delta\phi_{\text{CEP}}$  à son signal analytique dont on récupère la partie réelle, soit en la lui ajoutant par l'intermédiaire du domaine fréquentiel et en revenant dans le domaine temporel :

$$s_{\Delta\phi_{\text{CEP}}}(t) = \text{Re} \left[ \hat{s}(t) e^{i\Delta\phi_{\text{CEP}}} \right] \quad (2.38)$$

$$= \mathcal{F}^{-1} \left\{ e^{i\text{sign}(\nu)\Delta\phi_{\text{CEP}}} \mathcal{F}\{s\} \right\}(t). \quad (2.39)$$

### 2.4.3.1 Influence temporelle de la CEP

La modification de la phase porteuse-enveloppe produit une réorganisation de l'impulsion sous son enveloppe, très clairement perceptible lorsque l'on est en régime sous-monocylique. La figure 2.25 illustre cette déformation, en partant d'une impulsion THz mesurée typique et en modifiant sa CEP.

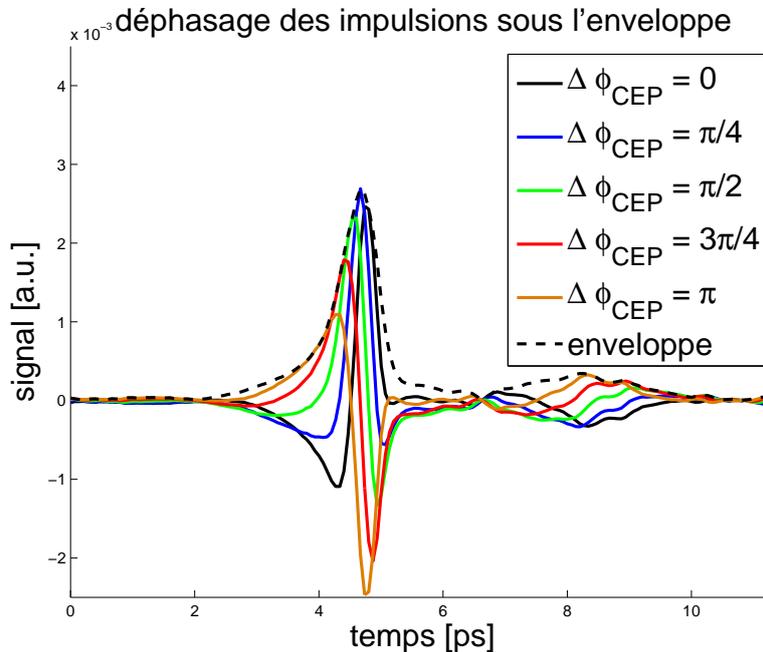


FIGURE 2.25 – Déphasages numériques d'une impulsion. L'impulsion initiale se réarrange tout en restant sous son enveloppe  $|\hat{s}(t)|$ .

Nous verrons dans le chapitre 3 comment il est possible de modifier physiquement la CEP d'une impulsion.

### 2.4.3.2 Temps moyen de l'impulsion

Le temps moyen de l'impulsion  $t_m$  défini par

$$t_m = \frac{\int t |\hat{s}(t)|^2 dt}{\int |\hat{s}(t)|^2 dt}. \quad (2.40)$$

Il est indépendant de la phase porteuse-enveloppe de l'impulsion.

Le temps moyen ne permet pas de retirer complètement la composante linéaire de la phase spectrale d'une impulsion, car celle-ci est asymétrique, mais il permet cependant de corriger des décalages temporels entre différentes mesures, comme ceux que l'on peut attribuer à la non-planéité d'une surface lors d'une expérience d'imagerie.

### 2.4.3.3 Détermination et caractérisation de la CEP

La phase porteuse-enveloppe n'est bien définie que dans le cas d'une impulsion de type gaussienne modulée (expression 2.37). Il s'agit malheureusement d'un cas idéalisé, bien loin des impulsions térahertz que nous souhaitons traiter, et il ne semble pas qu'il y ait de définition ubiquitaire de la CEP absolue dans le cas des impulsions non-symétriques et/ou sous-monocycliques.

Différentes définitions peuvent toutefois être proposées. Les trois premières sont issues du monde de l'optique des peignes de fréquence [Jones et al., 2000]. Ce domaine est concerné par la mesure de la CEP [Paulus et al., 2003] mais surtout par sa stabilisation, qui permet de favoriser les mécanismes comme la génération d'harmoniques d'ordre élevé (impulsions attosecondes) ou d'impulsions THz (c'est en mesurant la puissance THz générée lors du redressement optique d'impulsions femtosecondes dans un matériau que Kress parvient à déterminer la CEP *de ces dernières* [Kress et al., 2006]).

**À partir du domaine fréquentiel** Une première définition consiste à considérer que la CEP est la moyenne de la phase spectrale à laquelle on aura préalablement retiré sa composante linéaire (que l'on peut déterminer à l'aide du temps moyen de l'impulsion  $t_m$ ) :

$$\phi_{\text{CEP}} = \langle \phi(\omega) \rangle - \omega \langle \frac{\partial \phi(\omega)}{\partial \omega} \rangle = \langle \phi(\omega) \rangle - \omega t_m. \quad (2.41)$$

Cette définition ne peut être appliquée dans le cas d'une impulsion THz, dans la mesure où sa phase spectrale, même corrigée, n'est guère constante en raison de la dispersion en fréquence intrinsèque des impulsions sous-monocycliques (voir section 2.4.4).

Lorsque l'on s'intéresse, comme c'est généralement la cas, à deux signaux  $s_{\phi_1}(t)$  et  $s_{\phi_2}(t)$  accusant un déphasage constant  $\Delta_{21}\phi_{\text{CEP}}$  (comme nous en verrons dans le chapitre 3), on peut déterminer la phase porteuse-enveloppe relative à l'aide de l'expression :

$$\Delta_{21}\phi_{\text{CEP}} = \arg[\tilde{S}_2(\nu)\tilde{S}_1^*(\nu)]. \quad (2.42)$$

Comme il s'agit d'une phase relative, toutes les composantes d'ordre supérieur de la phase spectrale sont éliminées ; il ne subsiste alors qu'une phase constante qui constitue dans ce cas une CEP relative bien définie. La détermination de la **CEP relative** ne pose donc aucun problème en général.

**À partir du signal analytique** Une seconde définition que l'on peut donner de la CEP absolue est qu'il s'agit de la phase du signal analytique au sommet de l'enveloppe :

$$\phi_{\text{CEP}} = \arg[\hat{s}(t = \arg\max_t |\hat{s}(t)|)]. \quad (2.43)$$

À nouveau, cette définition ne permet pas de déterminer la CEP absolue d'une impulsion THz de manière satisfaisante. En effet, la détermination du maximum de l'enveloppe n'est pas très précise tandis que la phase présente de fortes variations à ses alentours (la fréquence instantanée est la dérivée de la phase temporelle ; elle est particulièrement importante aux voisinages du sommet de l'impulsion). De plus, une telle définition est très discutable dans le cas d'une impulsion asymétrique.

Ces deux dernières définitions n'étant manifestement pas adaptées, nous allons illustrer ici comment une modification de la CEP se traduit sur certaines caractéristiques de impulsions THz, de manière à pouvoir proposer d'autres solutions pour déterminer la phase porteuse-enveloppe directement à partir des informations temporelles.

**À partir du temps au maximum** Lorsque l'on s'intéresse à un signal à bande étroite et d'enveloppe symétrique (comme celui de l'équation 2.37 lorsque  $\sigma_t \ll 1/\omega_0$ ), la phase porteuse-enveloppe peut se déterminer grâce à l'écart temporel entre le maximum de la porteuse et le maximum de l'enveloppe. Si

l'on appelle  $\nu_0$  la fréquence de la porteuse,  $t_E$  le temps correspondant au maximum de l'enveloppe,  $t_C$  le temps correspondant au maximum de la porteuse, que l'on peut assimiler au temps correspondant au maximum de l'impulsion (dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable), on a alors  $\phi_{\text{CEP}} = 2\pi\nu_0(t_E - t_C)$ .

En modifiant la CEP d'une mesure typique du montage de spectroscopie (en utilisant l'expression 2.38), nous pouvons voir sur la figure 2.26 comment varie la position du maximum de l'impulsion par rapport au maximum de l'enveloppe.

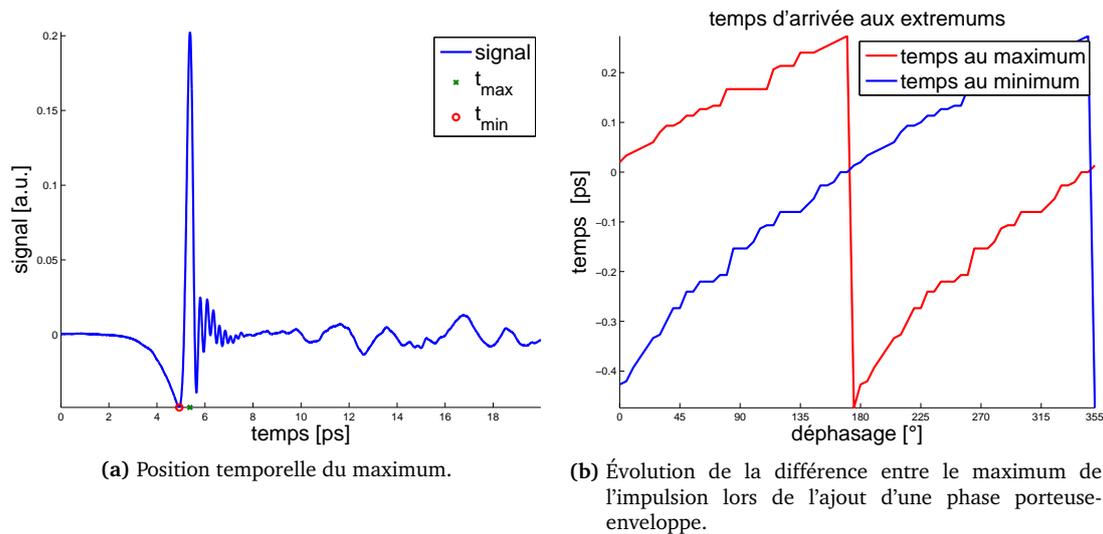


FIGURE 2.26 – Évaluation de la CEP par comparaison des maximums de l'impulsion et de l'enveloppe.

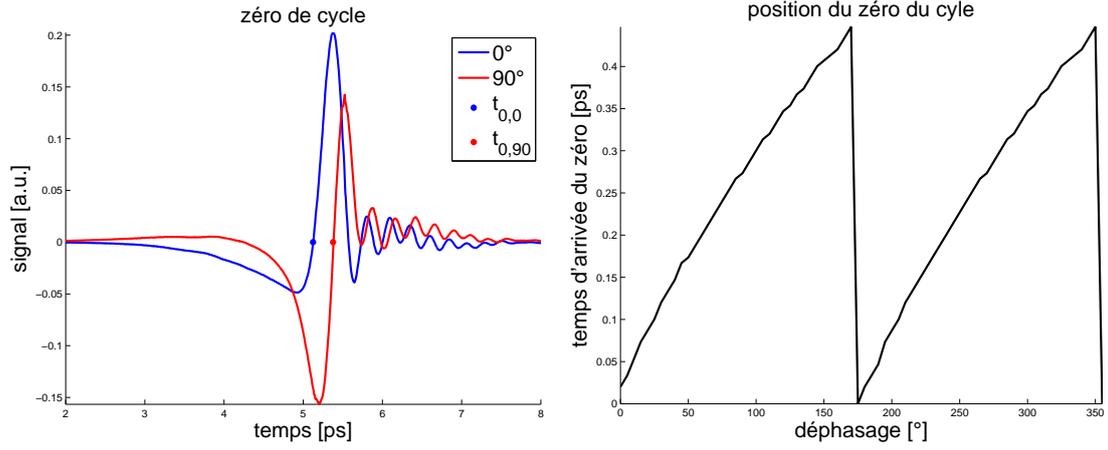
Dans le cas d'une impulsion THz, deux problèmes se posent : (i) la fréquence de la porteuse n'est pas bien définie, en raison du caractère sous-monocyclique (le signal n'est pas à bande étroite) (ii) l'enveloppe n'est pas symétrique : il n'y a pas correspondance entre le maximum de l'enveloppe et le temps moyen.

**Annulation principale du signal** Les impulsions THz se caractérisent par un minimum et un maximum principal. Aussi, nous sommes tentés de reprendre la discussion précédente en nous intéressant non pas au maximum mais au point d'annulation du signal entre ses deux extrema. La figure 2.27 présente l'effet d'une modification de la phase porteuse-enveloppe sur la position de l'annulation principale de l'impulsion.

Comme pour la position temporelle du maximum, le caractère large-bande de l'impulsion et son asymétrie limite l'intérêt de cette détermination. Néanmoins, ces considérations ont un aspect pratique et peuvent s'avérer utiles lorsque l'on cherche à comparer rapidement deux impulsions déphasées pour en estimer la différence de phase.

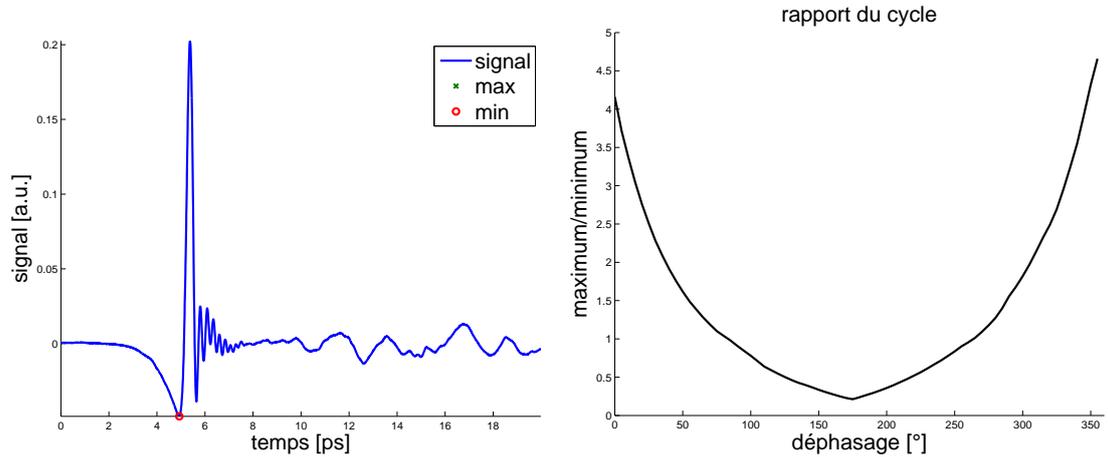
**Rapport du cycle** Toujours afin de comparer deux impulsions déphasées, nous pouvons estimer l'influence de la CEP sur le rapport du cycle, *i.e.* le rapport d'amplitude entre le minimum et le maximum de l'impulsion THz dans le domaine temporel (figure 2.28b), pour tenter d'y déceler une signature de la CEP.

Cette quantité ne semble pas permettre de déterminer la CEP de manière simple, mais permet elle aussi d'estimer le déphasage relatif entre deux impulsions.



(a) Position temporelle de l'annulation principale de l'impulsion (les deux impulsions représentées sont déphasées de 90° l'une par rapport à l'autre). (b) Annulation principale de l'impulsion en fonction de la phase porteuse-enveloppe.

FIGURE 2.27 – Influence de la phase porteuse-enveloppe sur le point d'annulation du signal.



(a) Définition des extrema principaux de l'impulsion. (b) Évolution du rapport de cycle lors de l'ajout d'une CEP.

FIGURE 2.28 – Influence de la phase porteuse-enveloppe sur le rapport de cycle.

**Distance à l'enveloppe** Les quantités étudiées précédemment ne sont pas tout à fait satisfaisantes, car elles ne se départissent pas de l'hypothèse que l'impulsion est symétrique et à bande étroite, ce qui n'est manifestement pas le cas pour les impulsions THz.

Nous proposons donc une manière de déterminer la CEP en évaluant la distance de l'impulsion à son enveloppe à l'aide de la fonction  $\Theta_s$  définie comme suit :

$$\Theta_s(\Delta\phi_{\text{CEP}}) = \int_{\mathbb{R}} (|\hat{s}(t)| - s_{\Delta\phi_{\text{CEP}}}(t))^2 dt \quad (2.44)$$

Montrons tout d'abord que cette expression permet de déterminer la CEP d'un signal idéal. En considérant un signal de CEP nulle  $s^0(t)$  et en faisant les hypothèses que l'enveloppe  $|\hat{s}(t)| = e(t)$  est gaussienne, qu'elle est modulée par un cosinus et en utilisant le théorème de Parseval  $\int_{\mathbb{R}} |f(t)dt|^2 = \int_{\mathbb{R}} |\tilde{F}(\nu)d\nu|^2$  pour calculer le résultat de la fonction  $\Theta_s$  par l'intermédiaire du domaine fréquentiel nous

avons :

$$\Theta_{s^0}(\phi) = \int_{\mathbb{R}} (|\hat{s}^0(t)| - s_{\phi}^0(t))^2 dt \quad (2.45)$$

$$= \int_{\mathbb{R}} (e(t) - e(t) \cos(\omega_0 t + \phi))^2 dt$$

$$= \int_{\mathbb{R}} |\tilde{E}(\omega) * (\delta(\omega) - \frac{1}{2} (\delta(\omega - \omega_0)e^{i\phi} + \delta(\omega + \omega_0)e^{i\phi}))|^2 d\omega \quad (2.46)$$

$$= \int_{\mathbb{R}} (|E(\omega)|^2 + \frac{1}{4}|E(\omega - \omega_0)|^2 + \frac{1}{4}|E(\omega + \omega_0)|^2) \quad (2.47)$$

$$- \operatorname{Re}(E^*(\omega)E(\omega - \omega_0)e^{i\phi}) - \operatorname{Re}(E^*(\omega)E(\omega + \omega_0)e^{-i\phi}) \quad (2.48)$$

$$+ \frac{1}{2}\operatorname{Re}(E(\omega - \omega_0)E^*(\omega + \omega_0)e^{i2\phi})d\omega \quad (2.49)$$

Par translation des bornes d'intégration des intégrales particulières,

– les trois termes 2.47 valent  $\frac{3}{2} \int_{\mathbb{R}} |E(\omega)|^2 d\omega$ ,

– les deux termes 2.48 valent<sup>18</sup>  $-2 \int_{\mathbb{R}} \operatorname{Re}(E^*(\omega)E(\omega - \omega_0)e^{i\phi})d\omega = -2 \cos \phi \int_{\mathbb{R}} E^*(\omega)E(\omega - \omega_0)d\omega$ ,

– les derniers termes 2.49 sont nuls en supposant que les supports spectraux des enveloppes décalées sont disjoints.

En remplaçant  $s^0(t)$  par un signal de CEP non nulle  $s(t) = s_{\phi_{\text{CEP}}}^0(t)$ , on a donc :

$$\Theta_s(\phi) = \frac{3}{2} \int_{\mathbb{R}} |E(\omega)|^2 d\omega - 2 \cos(\phi + \phi_{\text{CEP}}) \int_{\mathbb{R}} E^*(\omega)E(\omega - \omega_0)d\omega \quad (2.50)$$

Cette expression dépend donc bien de la phase porteuse-enveloppe, qui se traduit dans l'expression par un déphasage du cosinus. En normalisant et en centrant  $\Theta_s$  pour obtenir  $\Theta_s^{nc} = (\Theta_s - m_{\Theta_s})/\sigma_{\Theta_s}$  (où  $m_{\Theta_s}$  est la moyenne de  $\Theta_s$  selon  $\phi$  qui vaut  $\frac{3}{2} \int_{\mathbb{R}} |\hat{s}(t)|^2 dt$ , et  $\sigma_{\Theta_s}$  son écart-type), on obtient une variation sinusoïdale dont la phase à l'origine est directement reliée à la CEP de l'impulsion. La figure 2.29 montre la forme de la fonction  $\Theta_s^{nc}$  **appliquée à une impulsion** typique mesurée. Son comportement est bien sinusoïdal (malgré le fait que l'hypothèse d'impulsion symétrique ne soit pas vérifiée) et nous permet d'estimer sa CEP à  $-27^\circ$ .

L'utilisation de fonction  $\Theta_s$  consiste, d'un point de vue spectral, à produire une interférence spectrale entre le signal et son enveloppe. À ce titre, elle ne permet de définir une CEP que dans le cas d'impulsions ayant une enveloppe suffisamment courte pour que les termes de recouvrement  $E^*(\omega)E(\omega - \omega_0)$  soient non-nuls, mais suffisamment large pour que les termes  $E^*(\omega - \omega_0)$  et  $E(\omega + \omega_0)$  ne se recouvrent pas trop (dans un tel cas, la notion d'enveloppe n'a de toute manière plus vraiment de sens).

**Conclusion sur la détermination de la CEP absolue** De toutes les tentatives de détermination de la phase porteuse-enveloppe pour une impulsion sous-monocylique et asymétrique, celle faisant intervenir la distance à l'enveloppe semble la plus convaincante, car elle s'effectue par l'intermédiaire domaine temporel (duquel la notion de porteuse et d'enveloppe prend son essence) et qu'elle fait intervenir le signal dans sa globalité. Nous aurons l'occasion par la suite de l'utiliser sur des signaux pour lesquels la CEP s'est trouvée physiquement modifiée, afin de juger la cohérence de la définition.

18. On utilise ici l'hypothèse que l'enveloppe est gaussienne pour profiter du fait que sa transformée de Fourier est réelle. On pourrait également faire l'hypothèse (moins forte) que sa phase est lentement variable pour extraire le cosinus.

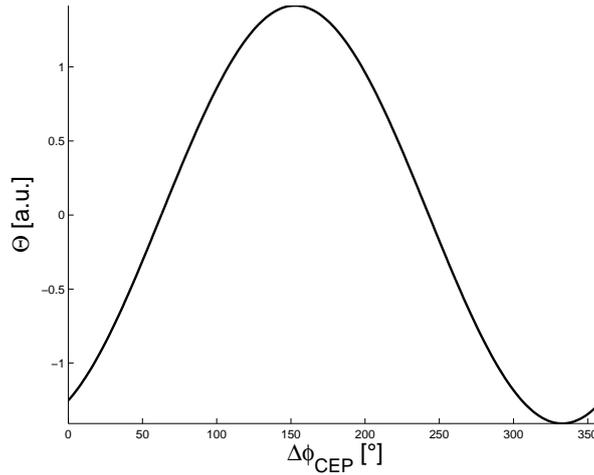


FIGURE 2.29 – Détermination de la CEP d’une impulsion térahertz typique par l’utilisation de la fonction  $\Theta_s$ . Pour l’impulsion considérée ici, la CEP vaut  $-27^\circ$ .

#### 2.4.4 Chirp intrinsèque d’une impulsion térahertz

Les impulsions THz sous-monocycliques comportent systématiquement lors des mesures une dérive en fréquence, reliée au *chirp*<sup>19</sup>, que les modèles physiques et les modèles analytiques simplifiés ne prennent pas en compte ni ne font apparaître.

Pour se rendre compte de l’importance du *chirp*, nous pouvons prendre une impulsion typique (figure 2.30a) mesurée sous atmosphère d’azote (afin que l’on ne puisse pas attribuer la dérive en fréquence à la vapeur d’eau dans l’air), et lui retirer sa phase spectrale dans le domaine fréquentiel :

$$s_{\text{FTL}}(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\{\mathcal{F}\{s\}\}\}(t) \quad (2.51)$$

Le résultat de ce calcul, présenté figure 2.30a montre ce que seraient les impulsions THz si elles étaient *limitées par transformée de Fourier* et de CEP nulle.

Pour évaluer les composantes non-linéaires à la phase spectrale, nous pouvons retirer la partie linéaire spectrale d’un signal typique. La figure 2.31a montre clairement les dépendances d’ordre supérieur de cette phase spectrale. Au second ordre, la dépendance vaut environ  $\frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \simeq 35^\circ \cdot \text{THz}^{-2}$ .

Nous pouvons également faire appel à une représentation temps-fréquence pour nous donner idée de comment les fréquences se répartissent temporellement. Nous choisissons pour cela d’utiliser la distribution de Wigner-Ville<sup>20</sup> du signal :

$$\mathcal{W}(t, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int s^* \left( t - \frac{1}{2}\tau \right) s \left( t + \frac{1}{2}\tau \right) e^{-i\tau\omega} d\tau, \quad (2.52)$$

qui permet (schématiquement) d’évaluer le temps d’arrivée de chaque fréquence (figure 2.31b).

La dérive en fréquence des impulsions serait un **caractère intrinsèque** des impulsions sous-monocycliques, dont celles du domaine THz en particulier [Lin et al., 2010]. Elle prévient d’un confinement temporel de l’énergie trop important (selon [Lin et al., 2006]) et est à rapprocher en cela de la phase de Gouy, qui est son pendant pour le confinement spatial (on ne peut focaliser mieux que la longueur d’onde tout comme on ne réduire temporellement mieux que le cycle optique).

19. « Gazouillis » en anglais, car cela fait penser à au changement de ton des oiseaux lorsqu’ils chantent.

20. Pour le calcul numérique, nous avons utilisé la boîte à outil *Matlab* "TFTB" développée dans le cadre du GdR ISIS disponible à l’adresse : <http://tftb.nongnu.org/>.

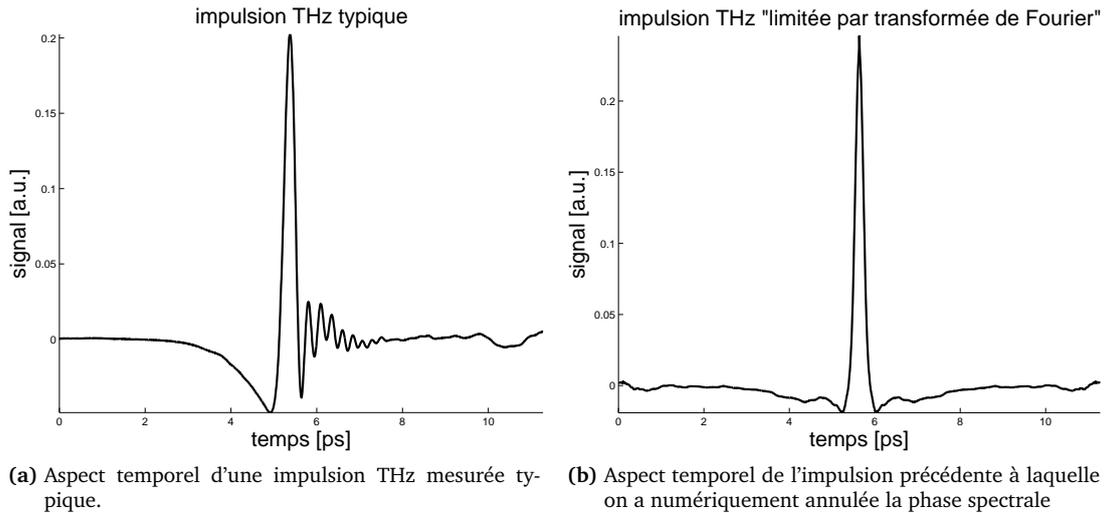


FIGURE 2.30 – Mise en évidence visuelle de la dispersion temporelle intrinsèque des impulsions THz obtenues lors des mesures.

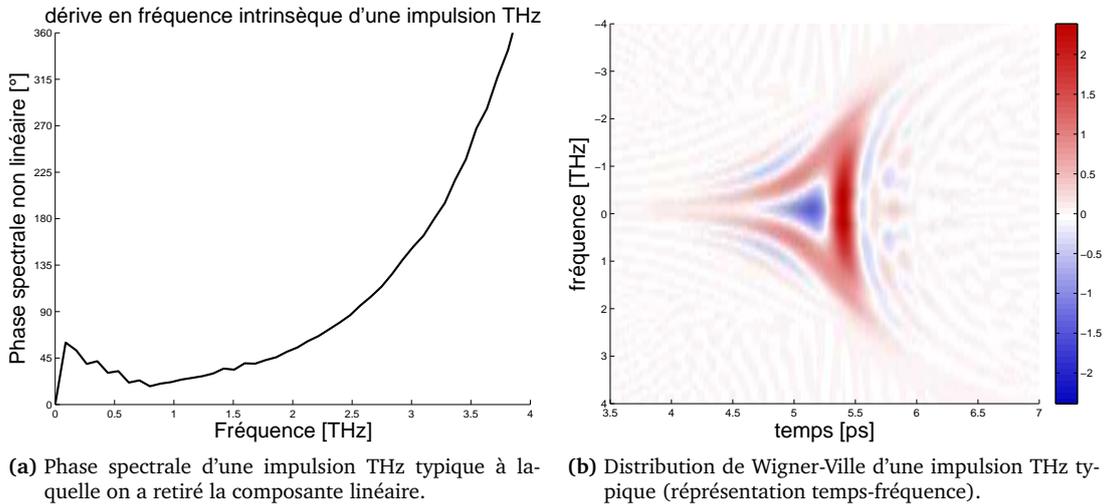


FIGURE 2.31 – Visualisation de la dérive en fréquence.

Le *chirp* intrinsèque ne concerne que la phase d'une onde prise isolément, or la grande majorité des analyses effectuées à l'aide d'impulsions se fait en comparant deux ondes de même origine : le rapport des spectres ne fait pas intervenir cette dérive qui donc nous importe peu. On ne peut de plus guère la contrôler, contrairement à la phase porteuse-enveloppe que nous traiterons dans le chapitre 3.

## Conclusion du chapitre

Nous avons présenté le fonctionnement d'un système de spectroscopie en domaine temporel, pour ensuite proposer une analyse détaillée de ses performances, et mettre en évidence l'influence des fluctuations de chemin optique sur la phase mesurée des impulsions. Nous avons pu par la suite caractériser

les propriétés optiques de certains matériaux, ce qui est essentiel pour juger lesquels sont les mieux adaptés au domaine térahertz, mais également pour préfigurer de nos possibilités lorsque l'on cherchera plus tard à former des images.

Nous avons également éclairci la notion de phase, peu évidente lorsqu'il s'agit d'impulsions sous-monocycliques, et nous avons fait ressortir l'importance de la phase porteuse-enveloppe (CEP). Cette notion nous sera très utile lorsque, dans le chapitre suivant, nous voudrons générer des champs électriques ayant un état de polarisation circulaire. En effet, nous verrons que c'est en modifiant cette phase que nous pourrons élaborer des éléments déphasants achromatiques, tandis que les procédés classiques, qui se contentent d'ajouter une phase linéaire, ne seront plus adaptés pour faire face à nos impulsions.



## Chapitre 3

# Polarisation des impulsions térahertz

"Quarante-deux ! cria Loonquawl. Et c'est tout ce que t'as à nous montrer au bout de sept millions et demi d'années de boulot ?

— J'ai vérifié très soigneusement, dit l'ordinateur, et c'est incontestablement la réponse exacte. Je crois que le problème, pour être tout à fait franc avec vous, est que vous n'avez jamais vraiment bien saisi la question"

- Douglas Adams in "Le Guide du voyageur galactique"

*Les méthodes de génération d'impulsions térahertz sous-monocycliques et de détection résolue en temps du champ électrique permettent en particulier la connaissance de la phase de ces champs électromagnétiques.*

*Dans une approche vectorielle des champs, la phase contrôle l'évolution conjointe des deux composantes ; nous discuterons de quelles informations supplémentaires sur les matériaux nous pouvons espérer obtenir en mettant en jeu le caractère vectoriel des impulsions générées. Nous verrons quelles différences introduit la nature sous-monocyclique des impulsions étudiées et en quoi les éléments optiques polarisants classiques montrent leurs limites et ne permettent pas de maîtriser convenablement l'état de polarisation des implusions.*

*Nous verrons comment il est malgré tout possible d'utiliser certaines propriétés de réflexion entre diélectriques pour concevoir des polariseurs linéaires large bande ainsi que des éléments permettant de modifier la phase des impulsions pour générer des états de polarisation circulaires.*

## Sommaire

---

<b>3.1 La polarisation</b>	<b>73</b>
3.1.1 Les états de polarisation remarquables	74
3.1.2 Formalismes mathématiques	76
3.1.3 Manifestation des effets de la polarisation	81
3.1.4 Polariser une onde monochromatique	84
<b>3.2 Détection des deux composantes de polarisation dans le domaine THz</b>	<b>85</b>
<b>3.3 Polariser rectilignement une impulsion Terahertz</b>	<b>89</b>
3.3.1 Coefficients de Fresnel et angle de Brewster	89
3.3.2 Influence de l'orientation d'un wafer en silicium sur une impulsion térahertz	92
3.3.3 Polariseur linéaire achromatique	94
<b>3.4 Polariser circulairement une impulsion THz</b>	<b>98</b>
3.4.1 Réflexion interne totale	99
3.4.2 Prisme quart d'onde achromatique	103
3.4.3 Étude du prisme quart d'onde en rotation	103
3.4.4 Analyse complémentaire des états de polarisation dans le domaine temporel	109
<b>3.5 Discussion et conclusion du chapitre</b>	<b>112</b>

---

### 3.1 La polarisation

L'étude des rayonnements térahertz et de leur interaction avec la matière est généralement effectuée en ayant recours à une approche scalaire du champs électromagnétique. Les équations de Maxwell sont néanmoins **vectérielles** ainsi que leurs solutions, et certains phénomènes ne peuvent être analysés qu'à l'aune de la nature vectorielle des champs électromagnétiques.

La forme générale d'une onde plane progressive harmonique, qui constitue la base de décomposition pour les ondes électromagnétiques sur laquelle s'effectuent les transformées de Fourier temporelles ( $\mathcal{F}_\omega$ , décomposition en ondes harmoniques) et spatiales ( $\mathcal{F}_\mathbf{k}$ , décomposition en ondes planes) s'écrit

$$\mathbf{E}_{\omega,k}(x, y, z, t) = A_x \cos(\omega t - kz + \phi_x) \mathbf{e}_x + A_y \cos(\omega t - kz + \phi_y) \mathbf{e}_y.$$

Cette expression fait intervenir deux composantes : une selon la direction  $\mathbf{e}_x$  et une autre selon la direction  $\mathbf{e}_y$ , toutes deux perpendiculaires à la direction de propagation  $\mathbf{e}_z$  du champ. Selon ces composantes, il y a deux paires de paramètres d'amplitude et de phase indépendants  $(A_x, \phi_x)$  et  $(A_y, \phi_y)$  qui vont concentrer notre attention durant ce chapitre.

Jusqu'à présent, nous ne nous sommes intéressés qu'au seul aspect ondulatoire des champs térahertz. Cela revenait à considérer soit que (i)  $A_y$  est nul (*i.e.* la composante selon  $e_y$  n'est pas générée au niveau de l'antenne émettrice), (ii) que nous ne détectons pas cette composante ou bien encore (iii) que les effets des matériaux étaient les même sur les couples  $(A_x, \phi_x)$  et  $(A_y, \phi_y)$  (*i.e.* les matériaux considérés sont isotropes).

L'étude simultanée des deux composantes de polarisation dans le cas de mesures résolues en temps dans le domaine térahertz offre une possibilité relativement rare en optique : la capacité d'avoir une **connaissance complète** de la structure de l'onde électromagnétique. Nous passerons donc d'un traitement ondulatoire de l'onde à un traitement électromagnétique plus général (figure 3.1).

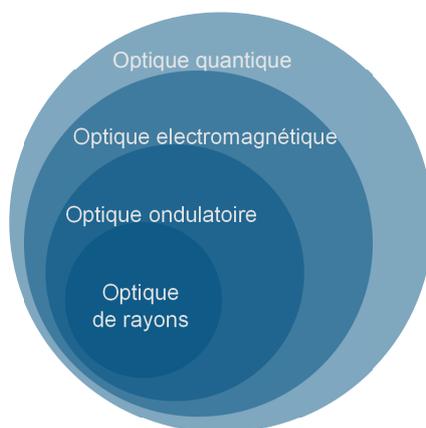


FIGURE 3.1 – Les différents champs d'étude de l'optique (adapté de [Saleh et Teich, 2007]).

L'état de polarisation de l'onde est un paramètre que nous pourrions **manipuler**, à la différence de ses autres propriétés qui nous sont imposées par la mode de génération de l'onde : nous ne pouvons pas modifier à loisir les longueurs d'ondes en présence ni même leur répartition fréquentielle. À l'aide d'éléments optiques que nous allons présenter, nous pourrions modifier séparément l'amplitude et la phase de chaque composante. Remarquons au passage que c'est cette capacité à modifier la phase qui permet de

coder des informations sur des champs électromagnétiques<sup>1</sup> et qui est à la base de la grande majorité des systèmes de communication.

## Conventions d'écriture

La notion d'onde vectorielle fait naturellement apparaître des directions spécifiques qui dépendent du repère dans lequel on se place. Les conventions que nous utilisons dans ce manuscrit sont les suivantes : dans le **repère du laboratoire**, la composante du champ polarisée parallèlement à la table optique sera notée  $\mathbf{E}_x$ . Elle correspond à la direction de la polarisation émise par l'antenne et la composante du champ auquel sera sensible le premier détecteur, notée  $\mathbf{E}_{\parallel}$ . L'autre composante sera notée  $\mathbf{E}_{\text{det}2}$  ou  $\mathbf{E}_{\perp}$  (figure 3.2).

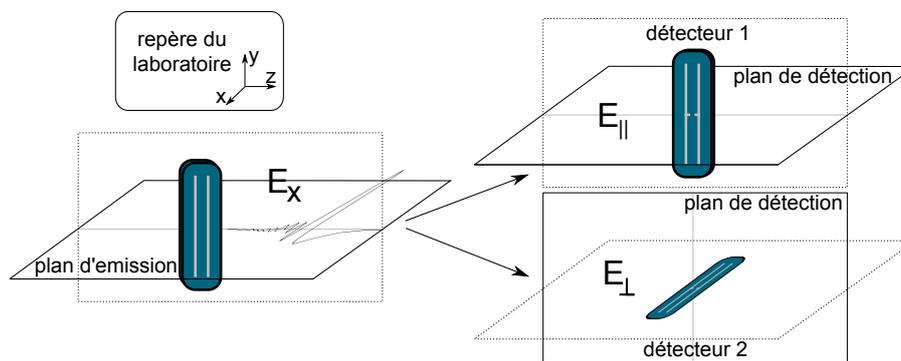


FIGURE 3.2 – Repère du laboratoire.

Il est d'usage dans la cas d'interactions aux interfaces de se placer dans le **repère de l'objet d'étude** via la notion de plan d'incidence et de distinguer la composante dite transverse électrique (abrégée **TE** ou **s**, pour *sankrecht*<sup>2</sup>) dont la direction est perpendiculaire au plan d'incidence, notée  $\mathbf{E}_s$ , qui sera dessinée en **rouge** sur les figures, et la composante transverse magnétique (abrégée **TM** ou **p**, pour *parallel*) dont la direction est parallèle au plan d'incidence, notée  $\mathbf{E}_p$ , qui sera dessinée en **bleu** (figure 3.3).

Sauf dans le cas particulier de l'incidence normale, il n'y a pas d'identité entre les notations  $\mathbf{E}_{\{\parallel, \perp\}}$  et  $\mathbf{E}_{\{s, p\}}$ , malgré des similitudes.

### 3.1.1 Les états de polarisation remarquables

Il existe plusieurs états de polarisation remarquables, *i.e.* pour lesquels il existe une relation entre les amplitudes et les phases respectives des deux composantes d'un champ monochromatique. Il est utile de les rappeler ici afin de pouvoir discuter par la suite des différences qu'introduit le support temporel ultra-court des impulsions THz en régime sous-monocyclique.

Nous définissons l'amplitude relative  $\Delta = A_y/A_x$  et la phase relative  $\Phi = \phi_y - \phi_x$ . Nous nous intéressons pour l'instant seulement au cas où les deux composantes du champs sont cohérentes : on

1. la modulation d'amplitude, dite AM, n'est plus que rarement utilisée pour les télécommunications. Même dans les fibres optiques, les schémas de type **Phase-Shift Keying** sont de plus en plus utilisés.

2. "Perpendiculaire" en allemand.

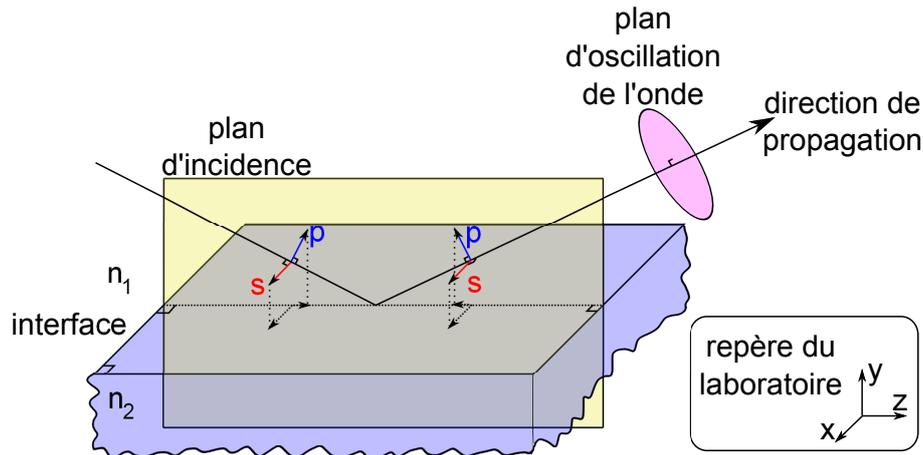


FIGURE 3.3 – Repère du plan d'incidence.

parle de champs parfaitement polarisé si nos deux paramètres ne varient pas dans le temps, *i.e.*  $\Delta(t) = \Delta_0$  et  $\Phi(t) = \Phi_0$ .

### Onde polarisée rectilignement

C'est l'état de polarisation pour lequel l'une des composante du champ est nulle ( $A_x = 0$  ou  $A_y = 0$ ) ou que les deux composantes sont en phase ou en opposition de phase :  $\Phi = 0 [\pi]$  (une réalisation de cet état est représenté dans la figure 3.4). Cet état de polarisation est le plus simple à obtenir : il suffit de supprimer une des composante du champ dans un repère quelconque.

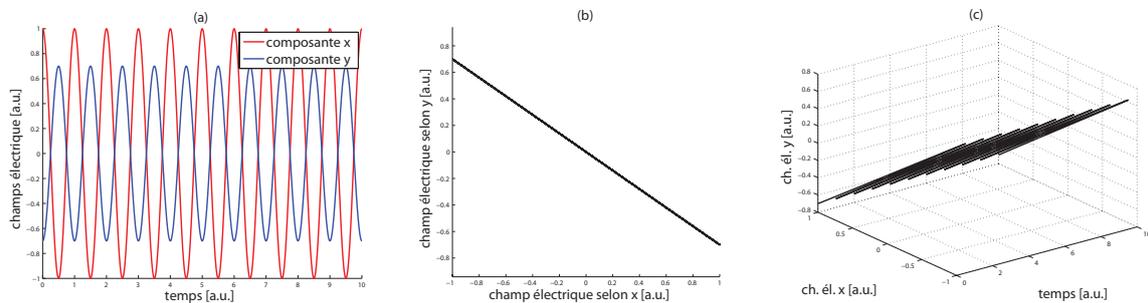


FIGURE 3.4 – Illustration d'une polarisation rectiligne ( $\rho = 0.7, \Phi = \pi$ ). (a) variation temporelle des deux composantes du champ. (b) variation paramétrique (*i.e.* conjointe) des champs. (c) représentation en 3D perspective du champ électrique.

### Onde polarisée circulairement

Cet état de polarisation est le plus contraint et correspond au cas où les amplitude des deux composante sont égales :  $\Delta = 1$  tandis qu'elles sont en quadrature :  $\Phi = \pi/2 [\pi]$ . Comme le montre la figure 3.5, l'évolution conjointe des deux composantes décrit un cercle.

Il y a deux sens de polarisations circulaires. Si le déphasage est positif modulo  $2\pi$ , le sens de rotation du champ électrique suit le sens direct et la polarisation est appelée circulaire gauche (LCP pour *Left-Circularly Polarized*), tandis que s'il est négatif, l'onde est dite polarisée circulairement droite (RCP, pour *Right-Circularly Polarized*).

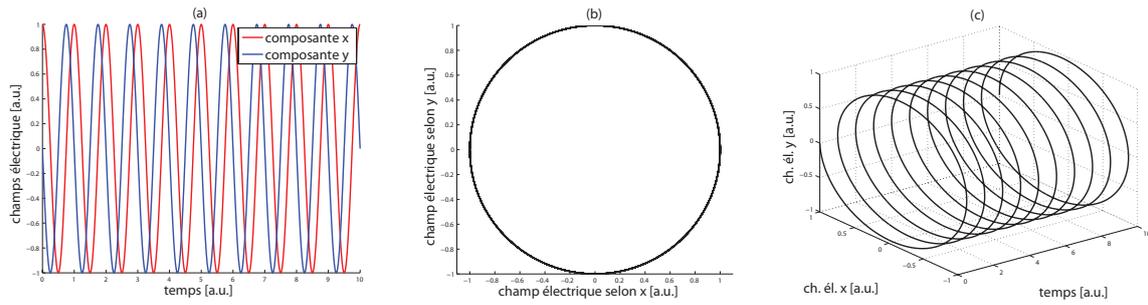


FIGURE 3.5 – Illustration d’une polarisation circulaire gauche ( $\Delta = 1, \Phi = \pi/2$ ). (a) variation temporelle des deux composantes du champs. (b) variation paramétrique (*i.e.* conjointe) des champs. (c) représentation en 3D perspective du champ électrique.

### Onde polarisée elliptiquement

C’est l’état de polarisation (cohérent) le plus général, pour lequel les amplitudes et les phases relatives des deux composantes sont quelconques (figure 3.6). Les polarisations présentées précédemment ne sont que des cas particuliers de polarisation elliptique.

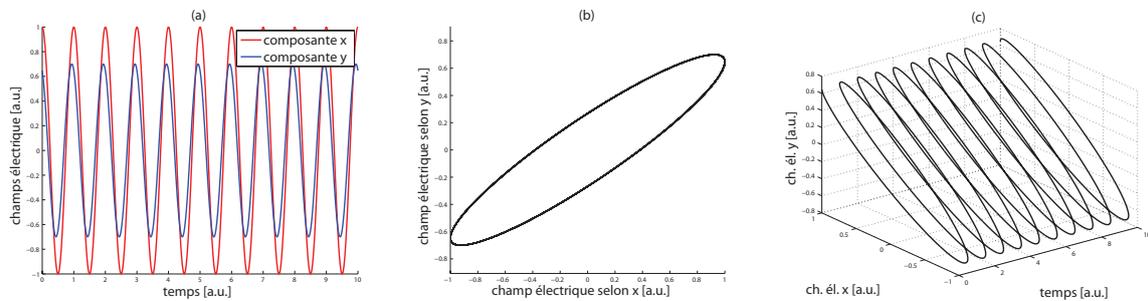


FIGURE 3.6 – Illustration d’une polarisation elliptique ( $\Delta = 0.7, \Phi = 22.5^\circ$ ). (a) variation temporelle des deux composantes du champ. (b) variation paramétrique (*i.e.* conjointe) des champs. (c) représentation en 3D perspective du champ électrique.

### Ondes non-polarisées

Les ondes non polarisées sont celles dont les deux composantes ne vérifient pas de relation de phase ( $\Phi = \Phi(t)$  dépend du temps, le plus souvent de manière aléatoire). La lumière naturelle ainsi que celle produite par les sources de lumière classique font partie de cette catégorie. On peut toutefois se ramener aux cas précédents en utilisant la combinaison d’un polariseur linéaire, qui projette le champ selon une direction (il sera nécessairement cohérent avec lui-même), et d’un élément de phase, qui permet de modifier la phase de la polarisation rectiligne considérée dans une autre base.

Les réflexions diffuses dépolarisent partiellement la lumière en détruisant la cohérence entre les deux composantes du champ par des effets statistiques.

#### 3.1.2 Formalismes mathématiques

Pour traiter mathématiquement de la polarisation, deux formalismes se distinguent : le formalisme de Jones et le formalisme de Stokes-Müller, le premier facilitant le traitement des champs électriques parfaitement polarisés, tandis que le second est plus adapté au traitement des intensités lumineuses,

quantités accessibles à la mesure en optique, et permet d'aborder le cas des ondes partiellement polarisés. Nous verrons les relations que ces deux formalismes entretiennent entre eux.

### 3.1.2.1 Formalisme de Jones

Le formalisme le plus intuitif a été développé par Jones [Jones, 1941a]. L'idée principale consiste à s'intéresser à des ondes planes monochromatiques sous leur forme analytique et à se placer dans un repère tournant pour ne plus faire apparaître que les amplitudes et les phases, en s'affranchissant des oscillations temporelles et spatiales.

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} A_x \cos(\omega t - kz + \phi_x) \\ A_y \cos(\omega t - kz + \phi_y) \end{bmatrix} \xrightarrow[\text{complexe}]{\text{représentation}} \mathcal{E} = \begin{bmatrix} A_x e^{i(\omega t - kz + \phi_x)} \\ A_y e^{i(\omega t - kz + \phi_y)} \end{bmatrix} \xrightarrow[\text{tournant}]{\text{repère}} \mathbf{E}_J = \begin{bmatrix} A_x e^{i\phi_x} \\ A_y e^{i\phi_y} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix}$$

On obtient dès lors un vecteur dont les termes sont indépendants du temps, et on pourra utiliser les règles du calcul matriciel pour déterminer l'action d'un système optique polarisant ou effectuer des changements de repère.

En faisant apparaître le rapport des amplitudes  $\Delta$  et le déphasage relatif  $\Phi$  :

$$\Delta = |E_y/E_x| = A_y/A_x \quad (3.1)$$

$$\Phi = \arg[E_y E_x^*] = \phi_y - \phi_x, \quad (3.2)$$

on peut ré-exprimer le **vecteur de Jones** avec un pré-facteur (de peu d'importance lorsque l'on s'intéresse aux ondes monochromatiques) :

$$\mathbf{E}_J = \begin{bmatrix} A_x e^{i\phi_x} \\ A_y e^{i\phi_y} \end{bmatrix} = A_x e^{i\phi_x} \begin{bmatrix} 1 \\ \Delta e^{i\Phi} \end{bmatrix}.$$

On a alors une expression simple pour les quatre états de polarisation remarquables :

$$\begin{array}{llll} \text{rectiligne horizontal} & \text{rectiligne vertical} & \text{circulaire gauche (LCP)} & \text{circulaire droit (RCP)} \\ \mathbf{H} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} & \mathbf{V} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} & \mathbf{G} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} & \mathbf{D} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \end{array} \quad (3.3)$$

Ces polarisations remarquables constituent deux bases orthogonales pour les états de polarisation : la base des états rectilignes ( $\mathbf{H}, \mathbf{V}$ ) et la base des états circulaires ( $\mathbf{G}, \mathbf{D}$ ). À l'aide de ces bases, on peut décomposer n'importe quel champ polarisé  $\mathbf{E}_{\text{qcq}}$  sur :

- la base des états rectiligne :  $\mathbf{E}_{\text{qcq}} = \alpha_H \mathbf{H} + \alpha_V \mathbf{V}$ , e.g.  $\mathbf{G} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{H} + i\mathbf{V})$  ou  $\mathbf{D} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{H} - i\mathbf{V})$
- la base ds états circulaires :  $\mathbf{E}_{\text{qcq}} = \alpha_G \mathbf{G} + \alpha_D \mathbf{D}$ , e.g.  $\mathbf{H} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{G} + \mathbf{D})$  ou  $\mathbf{H} = \frac{-i}{\sqrt{2}}(\mathbf{G} - \mathbf{D})$

La matrice de changement de base des états rectilignes à celle des états circulaires s'exprime :

$$[A] = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & i \\ 1 & -i \end{bmatrix}. \quad (3.4)$$

Les éléments optiques non-dépolarisants, qui modifient l'état de polarisation d'une onde en entrée  $\mathbf{E}_J^{\text{in}}$  en un état de polarisation de sortie  $\mathbf{E}_J^{\text{out}}$ , peuvent voir leur action résumée sous la forme d'une **matrice**

de Jones  $[\mathbf{J}]$  qui obéit à la relation :

$$\mathbf{E}_J^{out} = [\mathbf{J}]\mathbf{E}_J^{in} \quad \text{avec } [\mathbf{J}] = \begin{bmatrix} j_{11} & j_{12} \\ j_{21} & j_{22} \end{bmatrix}. \quad (3.5)$$

Lorsque l'on connaît la matrice de Jones d'un élément optique dans sa base propre  $[\mathbf{J}^{propre}]$ , on peut utiliser les matrices de rotation  $[\mathbf{R}(\theta)]$  pour l'exprimer dans le repère du laboratoire :

$$[\mathbf{J}_\theta] = [\mathbf{R}(\theta)][\mathbf{J}^{propre}][\mathbf{R}(-\theta)] \quad \text{avec } [\mathbf{R}(\theta)] = \begin{bmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix}. \quad (3.6)$$

Cela revient à exprimer l'onde incidente dans le repère propre de l'élément optique, à effectuer le produit matriciel puis à revenir dans le repère initial de l'onde. Nous nous servons de la relation suivante pour déterminer l'état de polarisation de l'onde en sortie du système :

$$\mathbf{E}_{J_{sortie}} = [\mathbf{R}(\theta)][\mathbf{J}^{propre}][\mathbf{R}(-\theta)]\mathbf{E}_{J_{entree}}. \quad (3.7)$$

De même, la matrice  $[A]$  permet d'exprimer la matrice de Jones d'un matériau dont les vecteurs propres sont des états circulaires en termes de matrice de Jones pour des états rectilignes.

Nous prendrons garde au fait que le produit des matrices de Jones n'est pas commutatif et l'ajout d'un élément se fait par une multiplication à gauche<sup>3</sup>.

Certains éléments polarisants importants ont une expression simple dans leur repère propre :

$$\begin{array}{cc} \text{polariseur linéaire} & \text{polariseur circulaire} \\ [\mathbf{J}_{pl}^{propre}] = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} & [\mathbf{J}_{pc}^{propre}] = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{bmatrix}. \end{array}$$

### 3.1.2.2 Paramètres de Stokes

Le second formalisme présenté se base sur les paramètres de Stokes et les matrices de Müller. Il a une portée un peu supérieure car il permet de traiter les faisceaux partiellement polarisés et les éléments optiques dépolarisant, mais son interprétation est moins transparente. Ce formalisme nous servira essentiellement à faire ressortir des paramètres qui nous seront utiles pour représenter les états de polarisation sur la sphère de Poincaré.

Les paramètres de Stokes  $S_{\{i=0,1,2,3\}}$  sont des quantités auxquelles on peut directement accéder par des mesures d'intensités (tableau 3.1).

Chacun de ses paramètres peut être mesuré à l'aide de détecteurs quadratiques, d'un analyseur et d'une lame quart d'onde :  $\|E_{0^\circ}\|^2$ ,  $\|E_{90^\circ}\|^2$ ,  $\|E_{45^\circ}\|^2$  et  $\|E_{-45^\circ}\|^2$  en orientant l'analyseur à  $0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $-45^\circ$  devant le détecteur ;  $\|E_{LCP}\|^2$  et  $\|E_{RCP}\|^2$  en orientant une lame quart d'onde à  $45^\circ$  devant un analyseur à  $0^\circ$  par rapport au détecteur quadratique.

3. La multiplication à gauche est liée au choix implicite d'exprimer les vecteurs de Jones sous la forme de vecteur colonne.

TABLE 3.1 – Relations entre les paramètres des Stokes et les autres représentations des champs polarisés.

Stokes	mesure	Jones	Ellipse	Poincaré
$S_0$	$= \ E_{0^\circ}\ ^2 + \ E_{90^\circ}\ ^2$	$=  E_x ^2 +  E_y ^2$	I	I
$S_1$	$= \ E_{0^\circ}\ ^2 - \ E_{90^\circ}\ ^2$	$=  E_x ^2 -  E_y ^2$	$I p \cos 2\Delta$	$I p \cos 2\Psi \cos 2\chi$
$S_2$	$= \ E_{45^\circ}\ ^2 - \ E_{-45^\circ}\ ^2$	$= 2\text{Re}(E_x E_y^*)$	$I p \sin 2\Delta \cos \Phi$	$I p \sin 2\Psi \cos 2\chi$
$S_3$	$= \ E_{LCP}\ ^2 - \ E_{RCP}\ ^2$	$= 2\text{Im}(E_x E_y^*)$	$I p \sin 2\Delta \sin \Phi$	$I p \sin 2\chi$

Ensemble, les paramètres de Stokes forment ce que l'on appelle un vecteur de Stokes  $\mathbf{S} = {}^t[S_0, S_1, S_2, S_3]$ . Il y a quatre vecteurs de Stokes<sup>4</sup> qui correspondent à des états de polarisation particuliers :

dépolarisé	rectilignes H et V	rectilignes à $\pm 45^\circ$	circulaire gauche et droit
$\mathbf{S}_0 = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\pm \mathbf{S}_1 = \begin{bmatrix} 1 \\ \pm 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\pm \mathbf{S}_2 = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ \pm 1 \\ 0 \end{bmatrix}$	$\pm \mathbf{S}_3 = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ \pm 1 \end{bmatrix}$

Il ne s'agit pas de vrais vecteurs, car les "vecteurs" de Stokes ne forment pas un espace vectoriel<sup>5</sup>, contrairement aux vecteurs de Jones.

### 3.1.2.3 Sphère de Poincaré

La sphère de Poincaré est un moyen commode de représenter l'état de polarisation d'une onde. À l'aide des paramètres de Stokes présentés précédemment (tableau 3.1), on définit de nouvelles grandeurs qui sont :

- le taux de polarisation :

$$p = \frac{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}{S_0} \quad (3.8)$$

qui vaut 1 si l'onde est parfaitement polarisée et 0 si elle est parfaitement dépolarisée,

- l'angle d'azimuth :

$$\Psi = \arctan \frac{S_2}{S_1} \quad (3.9)$$

qui est relié à l'angle que forme l'ellipse par rapport au repère considéré,

- et l'angle d'ellipticité :

$$\chi = \arctan \frac{S_3}{\sqrt{S_1^2 + S_2^2}} \quad (3.10)$$

qui traduit la taille relative des axes de l'ellipse (à quel point l'onde est dans un circulaire).

Nous pouvons à l'aide de ces quantités représenter sur une sphère tous les états de polarisation (voir figure 3.7).

Elle fournit un moyen commode de représenter l'évolution de l'état de polarisation en fonction d'un paramètre, comme par exemple la fréquence ou la distance de propagation dans un milieu.

4. Attention à ne pas confondre les *vecteurs* de Stokes particuliers  $\mathbf{S}_{\{0,1,2,3\}}$  et les *paramètres* de Stokes  $S_{\{0,1,2,3\}}$ .

5. Pour s'en convaincre, on formera la somme des vecteurs de Stokes de deux états rectilignes croisés polarisés à  $\pm 45^\circ$  pour se rendre compte que le résultat n'est pas celui attendu...

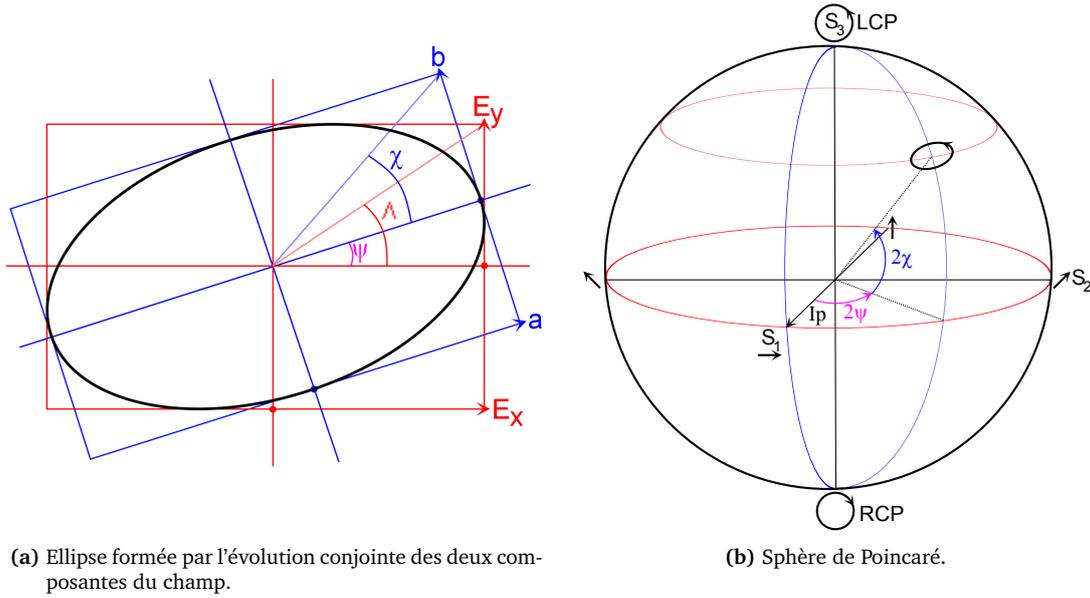


FIGURE 3.7 – Relation entre les paramètres de l'ellipse (a) et les coordonnées de l'état de polarisation sur la sphère de Poincaré (b).

### 3.1.2.4 Matrices de Müller et ellipsométrie

Tout comme pour les vecteurs de Jones, l'action d'un élément optique sur le vecteur de Stokes d'une onde peut être résumée par une matrice de Müller  $[\mathbf{M}]$  :

$$\mathbf{S}^{out} = [\mathbf{M}]\mathbf{S}^{in}. \quad (3.11)$$

On peut enchaîner les matrices de Müller pour déterminer l'action d'un système composé de plusieurs éléments par multiplication à gauche.

La matrice de Müller d'un élément présente l'avantage de pouvoir être déterminée à l'aide de 16 mesures systématiques en intensité (ce qui les rend très utiles en optique). Il s'agit de faire entrer dans l'élément des états de polarisations particuliers (e.g. les vecteurs de Stokes) et d'observer comment ces derniers en ressortent (e.g. déterminer ses paramètres de Stokes).

L'**ellipsométrie** est l'étude des matériaux en utilisant ce principe. Elle tire son nom du fait que l'on s'intéresse à comment l'ellipse décrite par un état de polarisation est modifiée après propagation dans le système. Bien souvent, on utilise non pas les états correspondant aux vecteurs de Stokes, mais des états hybrides qui permettent d'optimiser leur position relative sur la sphère de Poincaré, pour lever certaines dégénérescences qui corrompent l'extraction numérique des informations et améliorer les calibrations des instruments [Compain et al., 1999].

Dans le cas où le système ne contient aucun élément dépolarisant (comme par exemple une réflexion sur une surface diffusante), on peut établir une relation univoque entre sa matrice de Jones  $[\mathbf{J}]$  et sa matrice de Müller  $[\mathbf{M}]$  que l'on nomme dans ce cas matrice de Müller-Jones :

$$M_{ij} = \frac{1}{2} \text{Tr}([\mathbf{J}][\pi_j][\mathbf{J}]^\dagger[\pi_i]) \quad (3.12)$$

où  $Tr(\cdot)$  est la trace de la matrice,  $\dagger$  l'opération de complexe-conjugué et  $[\pi_i]$  sont les matrices de Pauli :

$$[\pi_0] = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad [\pi_1] = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad [\pi_2] = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \quad [\pi_3] = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}. \quad (3.13)$$

Les 16 éléments de la matrice de Müller sont donc sur-déterminés, et il est possible dans certains cas de n'effectuer qu'un nombre réduit de mesures.

La matrice de Müller d'un système peut être décomposée afin de séparer ses différents effets polarimétriques. La décomposition de Lu-Chipman [Lu et Chipman, 1996] se propose de factoriser la matrice de Müller mesurée en trois composantes dichroïque-déphaseur-dépolariseur. Une telle décomposition n'est cependant pas unique, et on trouvera une description intéressante des possibilités de caractérisation des milieux grâce au formalisme de Stokes-Müller dans [Gil, 2007]. Rappelons qu'une telle factorisation pour les matrices de Jones a également été discutée par Jones [Jones, 1941b] lui-même.

C'est en utilisant ce formalisme qu'une équipe du *Laboratoire de Physique des Interfaces et des Couches Minces* a développé différents types d'instruments de mesure en utilisant des moyens polarimétriques. Parmi eux, un ellipsomètre, fonctionnant dans le visible et fondé sur l'utilisation de cristaux liquides [De Martino et al., 2003], qui permet notamment d'imager des tissus cellulaires pour y dépister des fibroses hépatiques [Laude-Boulesteix et al., 2004]. Cette équipe a également mis au point un ellipsomètre **large-bande fonctionnant dans l'infrarouge moyen**, qui s'appuie sur l'utilisation d'un rhomboèdre de Fresnel pour permettre de générer les différents états de polarisation nécessaires à la détermination des coefficients de la matrice de Müller. Nous nous sommes fortement inspirés de cette idée pour concevoir le prisme quart d'onde (section 3.4.2).

On trouvera un traitement plus complet des différents formalismes dans [Huard, 1994].

### 3.1.3 Manifestation des effets de la polarisation

Les phénomènes optiques qui nécessitent un traitement vectoriel du champ lumineux sont nombreux. Rappelons ici les effets majeurs, que nous serons susceptibles de rencontrer lors des expériences.

#### Biréfringence et dichroïsme linéaire

La biréfringence et le dichroïsme linéaire se manifestent lors de la propagation d'une onde dans un matériau dont l'indice (complexe) dépend de la direction de la polarisation. Les matériaux présentant ce genre d'effets sont bien souvent les cristaux non centro-symétriques ou soumis à des contraintes extérieures (électriques pour l'effet électro-optique ou mécaniques pour l'effet acousto-optique). On distingue les matériaux uniaxes qui n'ont que deux indices différents et les matériaux biaxes dont l'indice est différent selon trois axes de propagation. Les vecteurs propres de ces matériaux sont deux polarisations rectilignes orthogonales. Si l'on note  $\tilde{n}_o$  et  $\tilde{n}_e$  les deux indices optiques ordinaires et extraordinaires ainsi que  $L$  la longueur de propagation au sein du matériau, la matrice de Jones de tels milieux dans ses axes propres s'écrit :

$$[\mathbf{J}_L] = \begin{bmatrix} e^{i2\pi\nu\tilde{n}_o L/c_0} & 0 \\ 0 & e^{i2\pi\nu\tilde{n}_e L/c_0} \end{bmatrix}.$$

On parle de **biréfringence** lorsque les indices de réfractions sont différents pour les deux compo-

santes tandis que les coefficients d'extinction restent faibles ou identiques. Lorsque ces derniers sont importants et différents, on parlera plutôt de **dichroïsme**<sup>6</sup> linéaire. La biréfringence est utilisée en optique pour concevoir des lames de phases ou des prismes polarisants, tandis que le dichroïsme linéaire est la base du fonctionnement de polariseurs linéaires comme les polariseurs à grilles ou les *polaroids*.

La biréfringence des matériaux dans le domaine THz a été étudiée par un certain nombre d'équipes. Parmi ces matériaux, le quartz cristallin a été abondamment analysé pour montrer les capacités de certains schémas expérimentaux à résoudre les champs en polarisation : Castro-Camus [Castro-Camus et Johnston, 2009] et Zhang [Zhang et al., 2009] présentent des montages permettant de mesurer simultanément les deux composantes du champ et d'en déduire les propriétés de biréfringence, tandis que l'équipe de Dong et Gong fait tourner l'échantillon lui-même et déploie le formalisme des matrices Müller pour en déduire les propriétés du matériau [Dong et al., 2009]. Ces derniers ont également montré que les tissus de foie de souris blanche exhibent de la biréfringence dans la gamme 0-0.5 THz (au delà, l'absorption des 800  $\mu\text{m}$  de tissus hydratés est trop importante pour conclure) [Gong et al., 2009].

D'autres cristaux présentent également de la biréfringence, comme le saphir, le rutile [Jördens et al., 2009] et le niobiate de lithium [Byrne et al., 2011]. Le bois est également biréfringent [Reid et Fedosejevs, 2006], tout comme certains papiers. Les cristaux liquides nématiques ont été étudiés [Vieweg et al., 2011], et d'autres composants plus exotiques comme les métamatériaux [Kanda et al., 2007] font bien évidemment preuve de biréfringence.

### Activité optique et dichroïsme circulaire

L'activité optique et le dichroïsme circulaire sont des phénomènes qui interviennent également dans les cristaux, soit naturellement soit en présence d'un champ magnétique (effet Faraday), mais également dans les liquides. Dans de tels milieux, ce sont les états de polarisations circulaires qui sont états propres du système, leur propagation soumise aux indices  $\tilde{n}_g$  et  $\tilde{n}_d$ . La matrice de Jones de tels milieux s'écrit dans ses axes propres sur une base de décomposition en ondes circulaires :

$$[\mathbf{J}'_C] = \begin{bmatrix} e^{i2\pi\nu\tilde{n}_g L/c_0} & 0 \\ 0 & e^{i2\pi\nu\tilde{n}_d L/c_0} \end{bmatrix}.$$

En effectuant le changement de la base des états circulaires à la base des états rectilignes, on obtient :

$$[\mathbf{J}_C] = [\mathbf{A}][\mathbf{J}'_C][\mathbf{A}]^{-1} = e^{i\psi} \begin{bmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \sin \theta \end{bmatrix}$$

avec  $\theta = \pi\nu(\tilde{n}_g - \tilde{n}_d)L/c_0$ ,  $\psi = \pi\nu(\tilde{n}_g + \tilde{n}_d)L/c_0$  et  $[\mathbf{A}]$  la matrice de passage entre la base des états circulaires et rectilignes définie dans l'équation 3.4. Si une onde polarisée rectilignement traverse un matériau de ce genre dont les indices sont réels, elle en ressortira toujours polarisée rectilignement, mais selon un autre axe : c'est l'**activité optique**, également nommé pouvoir rotatoire. Cet effet intervient notamment lorsque des molécules chirales comme le glucose sont en solution. Si l'axe de la polarisation est tournée vers la gauche, la solution est dite lévogyre et permet d'identifier le L-glucose. Dans le cas contraire, la solution est dite dextrogyre et permet d'identifier du D-Glucose.

Le **dichroïsme circulaire** est en relation avec la partie imaginaire des indices  $\tilde{n}_g$  et  $\tilde{n}_d$ , et les deux composantes circulaires se voient absorbées différemment. Ces deux effets sont notoirement plus faibles

6. Il ne faut pas confondre le dichroïsme dont il est question ici avec celui des filtres dichroïques, qui ont une action sélective en longueur d'onde.

que leur homologues linéaires, mais se trouvent avoir de fortes dépendances en fréquence ( $(n_g - n_d) \sim 2\pi\Gamma/(n_0\lambda)$ ), où  $\Gamma$  est la giration du matériau et  $n_0$  l'indice classique du matériau, d'après [Huard, 1994]). Par ailleurs, il arrive dans certains matériaux que le dichroïsme circulaire change plusieurs fois de signe sur de plus grandes gammes de fréquence, ce qui permet de caractériser un matériau par son **spectre de zéro** de dichroïsme circulaire.

Ces phénomènes ont été relativement peu étudiés dans le domaine THz. Des équipes ont montré que l'on pouvait observer de l'activité optique dans des métamatériaux [Kanda et al., 2009], l'effet Faraday [Jenkins et al., 2010], ou des effets magnéto-optiques géants ([Shuvaev et al., 2011]), le plus souvent avec des rayonnements THz continus. L'effet Kerr magnéto-optique (similaire à l'effet Faraday) a permis de déterminer les densités de porteurs libres dans les semi-conducteurs ([Yatsugi et al., 2011]) tandis que l'équipe de Hoffman [Hofmann et al., 2011] a tiré parti de l'effet Hall optique pour obtenir des informations complémentaires. Certains auteurs ont fait valoir que les objets spiralés comme les ressorts pouvaient montrer de l'activité optique [Elezzabi et Sederberg, 2009] et que les simulations prédisent un dichroïsme circulaire important des protéines dans le domaine THz, ce qui pourrait par ailleurs nous permettre de "détecter des signes de vie microbienne extraterrestre" (*sic*, [Xu et al., 2003]).

### Réflexion partielle et caractérisation de couches minces

La caractérisation des couches minces (*e.g.* semi-conducteur) déposées sur un substrat ne peut s'effectuer en transmission, en partie à cause de leur épaisseur réduite, mais également parce que le fort dopage de certains matériaux les rend très réfléchissant dans le domaine THz. Pour analyser ces spécimens, il est possible de s'appuyer sur les **réflexions partielles**, dont l'ampleur dépend en particulier de la polarisation. Des procédures d'extraction des paramètres physiques par ellipsométrie ont été développées par Hoffman [Hofmann et al., 2006] pour l'étude de ZnMnSe faiblement dopé, à l'aide d'un rayonnement synchrotron THz, de polariseurs à grille et d'interféromètres à transformée de Fourier. Le silicium fortement dopé et l'arséniure de gallium ont été étudiés respectivement par Nagashima [Nagashima et Hangyo, 2001] et Matsumoto [Matsumoto et al., 2011] en utilisant des techniques de TDS et des polariseurs à grille. La détermination des propriétés s'est faite en analysant l'ellipticité des ondes par l'intermédiaire de la phase extraite des données du domaine temporel.

### Diffusion Rayleigh

La lumière issue de la diffusion Rayleigh d'une onde lumineuse est polarisée perpendiculairement à celle qui l'a produite, car ce phénomène fait intervenir le rayonnement dipolaire dont la composante est nulle dans la direction d'excitation. La puissance diffusée du signal dans le domaine térahertz est extrêmement faible par rapport au signal lui-même, si bien que nous n'avons pas été en mesure d'en tester les effets.

### Dépolarisation

Les matériaux présentant des inhomogénéités ou de la diffusion à cause d'un état de surface rugueux sont dépolarisants : ils vont tendre à faire baisser le taux de polarisation de la lumière en diminuant la longueur de cohérence du faisceau. Il existe des dépolariseurs "de laboratoire", comme le dépolariseur de Lyot ou le prisme dépolarisant de Cornu qui servent à dépolariser la lumière incidente avant détection.

Ils ne dépolarisent pas la lumière à proprement parler mais mélangent spatialement les polarisations [Huard, 1994].

La dépolarisation n'est pas en soit une destruction de l'information, mais dans la majorité des cas, on considèrera qu'elle est bien perdue parce qu'il n'est pas possible d'en tirer des informations claires. La diffusion liée à des homogénéités spatiales sans dépendance temporelle a été étudiée par Pearce [Pearce et al., 2003]. Ces derniers ont montré que le brouillage temporel pouvait être utilisé pour connaître les points de diffusions dans le matériau en utilisant des mesures de corrélation que permet la résolution temporelle du champ électrique.

### 3.1.3.1 Autres effets

Il y a dans la nature d'autres effets subtils liés à la polarisation. Récemment, il a été montré que la carapace du scarabée *Cetonia Aurata* agit comme un dépolarisateurs non diagonal, c'est à dire que la lumière réfléchiée est dépolarisée sauf si la lumière incidente est polarisée d'une certaine manière (circulairement dans ce cas, voir [Ossikovski et al., 2009]).

L'effet Zeeman produit un triplement de raies spectrales en présence d'un champ magnétique, chaque raie émettant un état de polarisation particulier. Kawalec [Kawalec et al., 2004] s'est servi de cet effet pour analyser la polarisation des ondes évanescentes dans le visible. Cet effet est malheureusement très fin spectralement, et il est peut probable que l'on puisse l'étudier à l'aide d'impulsions THz.

Il y a également des recherches en cours sur les argiles de type vermiculite qui semblent avoir tendance à fixer préférentiellement un énantiomère d'une molécule chirale, donnant par là un mécanisme possible pour expliquer la chiralité du vivant [Fraser et al., 2011].

À un niveau plus fondamental, il apparait également que les neutrinos ont une ellipticité gauche (voir [Enge, 1966, Feynman, 1980]), ce qui traduit une asymétrie fondamentale dans les lois de la physique.

## 3.1.4 Polariser une onde monochromatique

Pour finir avec les généralités sur la polarisation, présentons les éléments optiques couramment utilisés pour polariser les ondes monochromatiques, pour voir quels problèmes posent leur transposition directe dans le domaine THz.

### 3.1.4.1 Polariser rectilignement

Pour polariser linéairement une onde monochromatique, trois types distincts d'éléments optiques existent.

Tout d'abord, ceux utilisant le dichroïsme linéaire d'un matériau, comme les **polariseurs à grille**, (les polariseurs de type *Polaroid* ne présentent pas de « grille » à proprement parler ; c'est l'alignement des molécules selon une direction qui joue ce rôle). Ce type de polariseur linéaire est généralement achromatique (si tant est que l'espacement de la grille soit petit par rapport à la longueur d'onde), et sont couramment utilisés dans le domaine des radio-fréquences.

Le second type de polariseur se base lui sur la différence des coefficients de réflexion entre le polariation sur des interfaces air-diélectrique et l'existence de l'**angle de Brewster**. Ils présentent de bonnes propriétés de polarisation et seront l'objet de la section 3.3 .

Le dernier type de polariseur linéaire est celui le plus utilisé en optique. Il se base sur la biréfringence des matériaux pour séparer spatialement les deux polarisations (prisme de Wollaston) ou bien joue sur les conditions de réflexion interne totale pour éliminer une polarisation par choc d'indice (prisme de

Glan-Thompson, prisme de Nicol) en collant **deux prisme biréfringents** taillés et orientés pour obtenir l'effet désiré. Ces polariseurs présentent d'excellentes propriétés de transmission et de sélectivité en polarisation, mais ont des dimensions petites à cause des difficultés que posent leur réalisation, et sont optiquement épais.

Le quartz et le saphir sont des matériaux biréfringents dans le domaine THz, mais il ne sont pas suffisamment transparents dans le domaine THz pour pouvoir s'accomoder de la taille des faisceau sans causer de pertes conséquentes.

### 3.1.4.2 Polariser circulairement

Polariser une onde circulairement est un peu plus délicat. Il s'agit généralement d'agir sur une onde polarisée rectilignement pour ensuite déphaser ses composantes d'une phase de  $\pi/2$ . Pour ce faire, on a recours à trois méthodes.

La première méthode consiste à séparer les deux polarisations, les faire propager les deux polarisations sur une distance légèrement différente de telle sorte qu'elles accusent une différence de marche  $\Delta L$  menant à un déphasage  $\Delta\Phi = k_0\Delta L = \pi/2 [2\pi]$  puis de les recombiner. Parmi les dispositifs qui réalisent cela, on trouve l'**interféromètre de Martin-Puplett** [Röseler et al., 2005, Liu et al., 2010b]. Cette méthode est plus adaptée aux grandes longueurs d'ondes qu'au domaine optique, en raison d'une moindre précision requise. Malheureusement, la différence de marche introduit une phase linéaire qui rend la technique fortement chromatique ; elle n'est donc adaptée qu'aux rayonnements continus spectralement fins.

La seconde méthode utilise des **matériaux biréfringents** et la différence d'épaisseur optique vue par les deux composantes de polarisation. Cette méthode met également en œuvre une phase linéaire ; elle est donc elle aussi intrinsèquement chromatique. Par ailleurs, compte-tenu de la faible biréfringence des matériaux et de la grande longueur d'onde des faisceaux THz, il faut utiliser des matériaux épais, ce qui introduit de la dispersion et de l'absorption. Nous reviendrons plus en détail sur les lames d'onde dans la section 3.4 .

La dernière méthode se base sur le phénomène de **réflexion interne totale**, qui introduit une différence de phase entre les deux polarisations. Dans le domaine optique, les rhomboèdres de Fresnel accomplissent cette fonction. Ils ont l'avantage d'être intrinsèquement achromatiques et nous étudierons des dispositifs similaires pour polariser les ondes THz dans la section 3.4.1.

## 3.2 Détection des deux composantes de polarisation dans le domaine THz

Pour mener à bien l'étude de la polarisation des impulsions THz, il est nécessaire de pouvoir détecter séparément les deux composantes de polarisation. Pour ce faire, différentes approches sont envisageables.

Si l'on utilise un détecteur *insensible* à la polarisation, il est possible de placer devant ce dernier un polariseur linéaire, qui effectuera la projection du champ selon un axe. En effectuant successivement les mesures selon une direction du polariseur puis tournant ce dernier d'un quart de tour (direction orthogonale), on peut mesurer les deux polarisations l'une après l'autre.

Malheureusement, la plupart des antennes photoconductrices et des cristaux électro-optiques sont très dépendants de la polarisation.

Dans le cas où ces derniers ne sont sensibles qu'à une seule polarisation, il est possible d'effectuer une double projection : un polariseur linéaire orienté à  $\pi/4$  par rapport à l'axe de détection de l'antenne et un autre polariseur situé en amont orienté successivement parallèlement et perpendiculairement à l'axe de détection de l'antenne [Ikebe et al., 2010]. On parvient ainsi à mesurer les deux polarisations en deux temps, en perdant néanmoins une partie du signal utile.

Une solution plus élégante consiste à disposer d'un détecteur fibré et à le tourner sur son axe. Cela a été mis en œuvre avec des cristaux de ZnTe orienté  $\langle 110 \rangle$  (orientation classique) [Zhang et al., 2009] ou à l'aide d'une antenne à pointe métallique [Walther et al., 2005].

Il est possible d'utiliser un cristal de ZnTe clivé selon le plan cristallin  $\langle 111 \rangle$  [Van der Valk, 2005]. Cette orientation cristalline est moins usitée car les coefficients électro-optiques sont de magnitude moindre, mais elle est en contrepartie sensible à la polarisation relative du faisceau THz et du faisceau femtoseconde : tourner une lame d'onde en aval du laser femtoseconde permet de sélectionner la composante du champ que l'on souhaite étudier.

Une autre approche envisageable serait d'utiliser un matériau biréfringent épais, orienté à  $45^\circ$  devant le détecteur. La biréfringence du matériau opérerait une séparation temporelle des deux composantes, que l'on pourrait distinguer par fenêtrage temporel. Il faut pour cela un matériau épais, mais nous n'avons pas encore identifié de matériau biréfringent dans le domaine térahertz présentant une absorption et une dispersion suffisamment modérées pour que cela puisse se faire sans déformer les signaux outre mesure.

Des antennes photoconductrices en forme de croix ont également été conçues et fabriquées [Castro-Camus et al., 2005] et sont capables de mesurer les deux composantes simultanément tout en ayant deux sorties indépendantes.

La dernière solution consiste à utiliser deux détecteurs dont les axes de détection sont croisés et à séparer en amont les deux polarisations. Cela peut être fait avec des cristaux de ZnTe [Byrne et al., 2011] ou des antennes photoconductrices [Mittleman et al., 1997a]. Nous avons opté pour cette dernière approche (figure 3.8, photo 3.9).

Notre système est constitué de :

- **Une antenne émettrice** qui émet une polarisation pratiquement rectiligne  $\mathbf{E} = [E_x \ 0]^t$ , ainsi qu'un miroir parabolique hors-axe qui permet d'obtenir un faisceau collimaté.
- **Une lame de silicium** haute-résistivité de 3 mm d'épaisseur est orientée dans le faisceau à  $45^\circ$  et le sépare en deux. Nous pouvons calculer à partir de équations 3.25 et 3.21 le coefficient en transmission (pour le premier bras) qui vaut  $T_p^{BS} = 0.82$  et le coefficient de réflexion (pour le second bras) qui lui vaut  $r_s^{BS} = -0.65$ . Compte tenu de l'épaisseur de la lame de silicium et grâce au fenêtrage temporel, les réflexions internes sont suffisamment décalées dans le temps pour qu'elles n'apparaissent pas dans nos mesures.
- Un premier bras de détection, dans lequel un miroir parabolique focalise le faisceau sur la **première antenne de détection**, dont l'axe de détection de polarisation est le même que l'axe d'émission de l'antenne émettrice et détecte ainsi  $E_{\parallel}$ .
- Un second bras, similaire mais cette fois équipé d'une **seconde antenne de détection** orientée à  $90^\circ$  par rapport à la première et à l'antenne émettrice, ce qui lui permet de détecter  $E_{\perp}$ .

Les antennes de détection sont chacune reliées à un amplificateur à détection synchrone. Une ligne à retard manuelle est présente sur le second bras de mesure, afin de pouvoir régler finement et égaliser les chemins optiques du laser femtoseconde entre les deux bras.

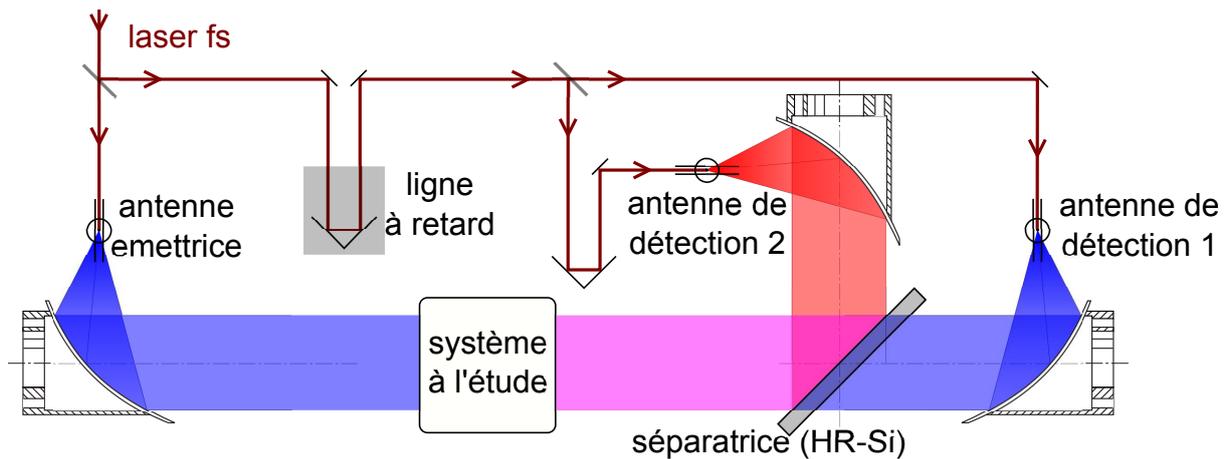


FIGURE 3.8 – Schéma du montage à détection de polarisation.

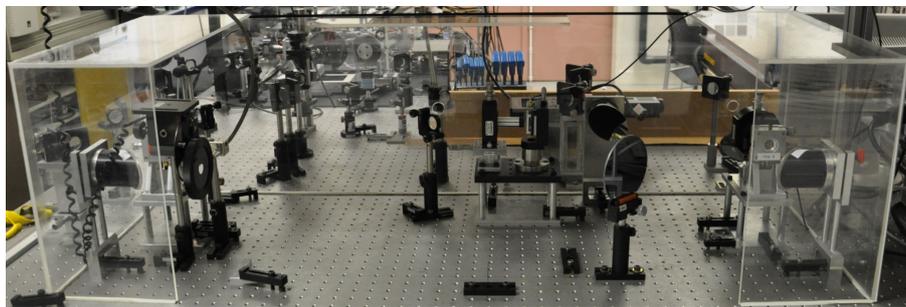


FIGURE 3.9 – Photo du montage de polarisation.

## Emission elliptique et sensibilité des détecteurs à la composante croisée

Les impulsions THz émises ne sont pas tout à fait polarisée rectilignement. A l'aide de polariseurs, nous avons pu évaluer l'importance relative de la composante croisée ; son amplitude est de l'ordre de 10% en amplitude (soit 1% en intensité) mais l'aspect temporel de cette composante est très différent de celle de la composante principale (il est délicat même de parler d'*ellipticité*). Comme nous utiliserons presque systématiquement un polariseur orienté à 45° dans le repère du laboratoire pour équilibrer les deux voies, cette composante croisée est projetée et ne vient donc pas perturber les mesures.

Les détecteurs sont eux légèrement sensibles à la composante croisée, à hauteur de 5% en amplitude. Elle reste toutefois négligeables dans le cas qui nous concerne, car la séparatrice en silicium a elle-même une certaine sélectivité en polarisation qui réduit l'influence de la composante croisée.

Selon les mesures effectuées par [Van Rudd et al., 2001], le diagramme de rayonnement n'est pas plus le même pour les deux composantes de polarisation, la composante croisée étant moins régulière que la composante principale. D'autre part, l'ellipticité de l'émission dépend type d'antenne employées : les antennes de type *Bow-Tie* ont une composante croisée plus importante que les antennes dipolaires que nous utilisons.

## Phase de Gouy différentielle

Il nous est apparu au début des expériences que les deux détecteurs orthogonaux n'avaient pas une réponse similaire aux impulsions THz : les formes temporelles des impulsions étaient dissemblables (figure 3.10), ainsi que leur contenu spectral. Après quelques investigations, il semblerait que cela est

essentiellement dû à des différences de focalisation au niveau des détecteurs. En effet, les deux détecteurs n'étaient alors pas équipés des mêmes lentilles de focalisation en silicium et le faisceau THz n'était pas donc focalisé de manière identique sur les deux antennes (le problème persiste si les deux lentilles de focalisations sont identiques mais que les distances entre les miroirs paraboliques hors-axes et les détecteurs sont différentes).

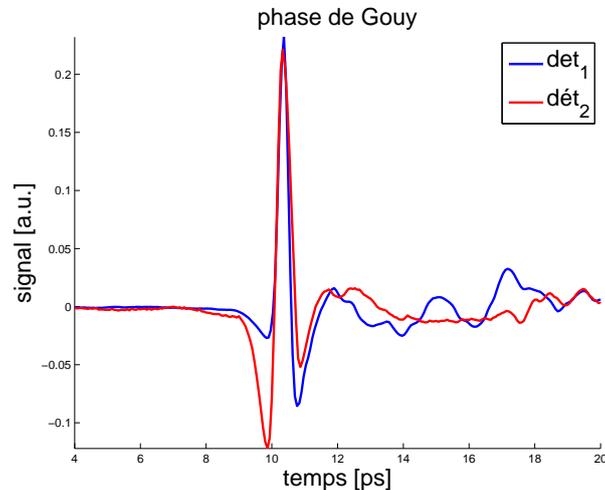


FIGURE 3.10 – Manifestation possible de la phase de Gouy causée par la défocalisation.

La défocalisation se manifeste spectralement par deux phénomènes : un décalage vers le rouge (les hautes fréquences ont un poids moindre, figure 3.11a) et une phase de Gouy  $\zeta$  non-triviale [Feng et al., 1998] qui varie rapidement autour du point de focalisation (figure 3.11b). Cette dernière s'exprime  $\zeta(z) = \arctan(z/z_R(\nu))$  (où  $z_R = \nu w_0^2(\nu)/c_0$  est la distance de Rayleigh du faisceau gaussien à la fréquence  $\nu$ , et de taille à la gorge  $w_0(\nu)$ ), et dépend de la fréquence de manière combinée.

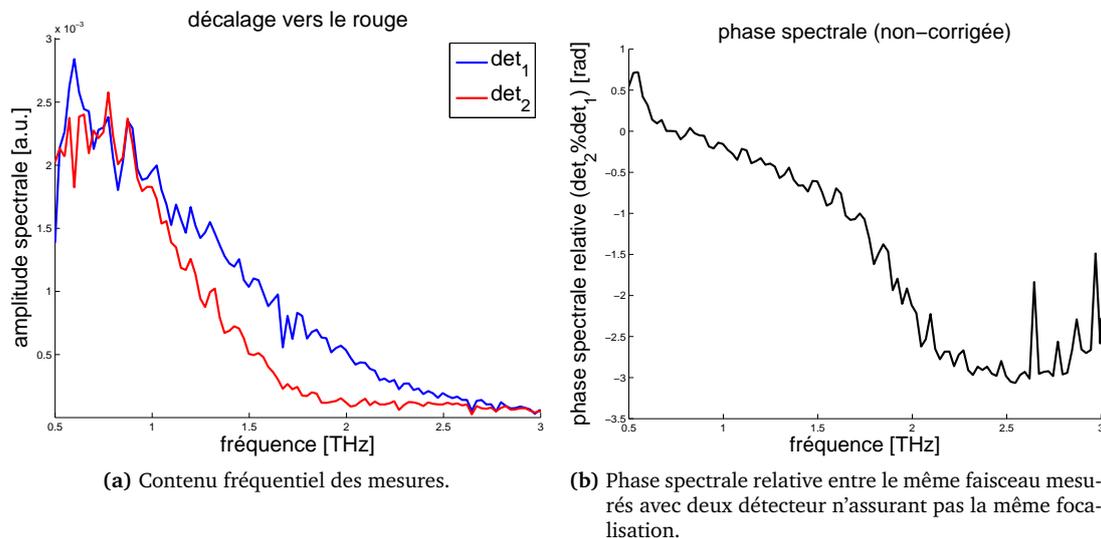


FIGURE 3.11 – Manifestation spectrale des effets de défocalisation.

N'ayant une connaissance fine d'aucun des paramètres du faisceau gaussien au niveau de l'antenne, il nous est difficile de modéliser l'effet de la phase de Gouy. Il nous semblait utile cependant de préciser ce point pour qui voudrait utiliser deux détecteurs en parallèle.

Après avoir installé des lentilles en silicium identiques sur chacun des deux détecteurs et optimisé des réglages du système, nous avons convergé vers un système dont les fonctions de réponse des deux détecteurs sont très proches, que nous avons utilisé par la suite.

### 3.3 Polariser rectilignement une impulsion Terahertz

L'obtention d'un état de polarisation rectiligne selon une direction déterminée, à partir d'une impulsion térahertz quelconque, est la première étape dans la maîtrise de la polarisation de ces ondes. Il s'agit donc de trouver une manière de procéder qui convienne aux particularités du domaine THz.

Dans le domaine optique, on utilise généralement des polariseurs à prismes dits Glan-Thomson ou de Nicol pour polariser les faisceaux ; leur principe de fonctionnement consiste à créer une condition de réflexion interne totale différente pour les deux polarisations à l'interface entre deux prismes biréfringents accolés, de telle manière qu'un état de polarisation soit transmis tandis que l'autre est totalement réfléchi, écarté de l'axe optique. Cependant, compte-tenu de l'épaisseur des prismes, de l'absorption et de la dispersion des matériaux biréfringents disponibles dans le domaine THz, nous n'y pouvons transposer ces idées sans que nos impulsions ne soient fortement perturbées.

Dans le domaine des ondes radio-fréquences, la polarisation des ondes s'effectue directement sur l'antenne en mélangeant des ondes en phase polarisées orthogonalement ou bien en utilisant des polariseurs à grille. Les polariseurs à grille ont été étudiés et portés dans le domaine térahertz, à base de fils d'aluminium [Cherkassky et al., 2007, Yamada et al., 2009] ou de nanotubes de carbone [Ren et al., 2009]. Certains polariseurs à grille peuvent être réalisés à l'aide d'imprimantes à jet d'encre modifiées [Kondo et al., 2003], tandis que d'autres sont disponibles commercialement. Nous nous en sommes procurés mais, bien que fonctionnels, ils présentent quelques défauts : ils absorbent une bonne partie du rayonnement incident (60%) et ne présentent pas des réponses fréquentielles suffisamment neutres. D'autres techniques ont pour inconvénients de déformer les impulsions THz [Sun et al., 2010], d'être trop délicates à mettre en œuvre ou pas suffisamment achromatiques, comme des dispositifs à bases de couches minces [Awasthi et al., 2008].

Nous avons donc cherché à développer un polariseur qui se base sur la **différence de réflexion entre les deux composantes de polarisation** incidentes et les propriétés remarquables de l'angle de Brewster ; les résultats de ces travaux ont donné lieu à la publication d'un article [Wojdyla et Gallot, 2011].

Pour ce faire, nous avons utilisé des **wafers de silicium**, qui présentent l'avantage de ne nécessiter un empilement que d'un faible nombre d'éléments et d'être peu onéreux grâce à leur grande disponibilité pour l'industrie des semi-conducteurs. Leur faible épaisseur (devant les longueurs caractéristiques d'absorption) permet en particulier de ne pas avoir recours à du silicium haute-résistivité.

#### 3.3.1 Coefficients de Fresnel et angle de Brewster

Les coefficients de réflexion  $r_{\{s,p\}}^{1 \rightarrow 2}$  et de transmission  $t_{\{s,p\}}^{1 \rightarrow 2}$  de Fresnel (en amplitude) sur une interface entre deux matériaux d'indices  $n_1$  et  $n_2$  vue par les composantes **s** et **p** sous une incidence  $i$  et refractées

selon l'angle  $r$  (voir figure 3.12) s'expriment [Born et Wolf, 1999] :

$$r_s^{1 \rightarrow 2}(i, r) = \frac{n_1 \cos i - n_2 \cos r}{n_1 \cos i + n_2 \cos r} \quad (3.14)$$

$$r_p^{1 \rightarrow 2}(i, r) = \frac{n_1 \sec i - n_2 \sec r}{n_1 \sec i + n_2 \sec r} = \frac{n_2 \cos i - n_1 \cos r}{n_2 \cos i + n_1 \cos r} \quad (3.15)$$

$$t_s^{1 \rightarrow 2}(i, r) = (1 + r_s^{1 \rightarrow 2}(i, r)) = \frac{2n_1 \cos i}{n_1 \cos i + n_2 \cos r} \quad (3.16)$$

$$t_p^{1 \rightarrow 2}(i, r) = (1 + r_p^{1 \rightarrow 2}(i, r)) \left( \frac{\cos i}{\cos r} \right) = \frac{2n_1 \cos i}{n_2 \cos i + n_1 \cos r}. \quad (3.17)$$

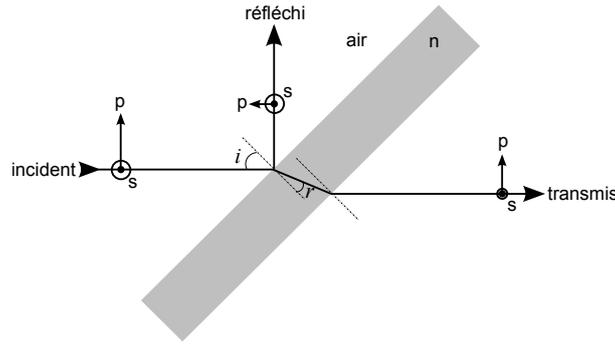


FIGURE 3.12 – Schéma d'une lame et notations.

(on notera que dans le cas  $n_1 > n_2$ , les coefficients de Fresnel en transmission sont supérieurs à 1<sup>7</sup>.) Ces deux expressions vérifient notamment les relations de Stokes :

$$r_{\{s,p\}}^{1 \rightarrow 2}(i, r) = -r_{\{s,p\}}^{2 \rightarrow 1}(r, i). \quad (3.18)$$

$$t_{\{s,p\}}^{1 \rightarrow 2}(i, r) t_{\{s,p\}}^{2 \rightarrow 1}(r, i) + r_{\{s,p\}}^{1 \rightarrow 2}(i, r)^2 = 1. \quad (3.19)$$

En utilisant la loi de Snell-Descartes

$$n_1 \sin i = n_2 \sin r \quad \Rightarrow \quad \cos r = \sqrt{1 - \left( \frac{n_1}{n_2} \sin i \right)^2}, \quad (3.20)$$

on peut ré-exprimer les coefficients 3.14 et 3.15 dans une forme indépendante de  $r$  :

$$r_s^{1 \rightarrow 2}(i) = \frac{n_1 \cos i - n_2 \sqrt{1 - \left( \frac{n_1}{n_2} \sin i \right)^2}}{n_1 \cos i + n_2 \sqrt{1 - \left( \frac{n_1}{n_2} \sin i \right)^2}}, \quad (3.21)$$

$$r_p^{1 \rightarrow 2}(i) = \frac{n_2 \cos i - n_1 \sqrt{1 - \left( \frac{n_1}{n_2} \sin i \right)^2}}{n_2 \cos i + n_1 \sqrt{1 - \left( \frac{n_1}{n_2} \sin i \right)^2}}, \quad (3.22)$$

dont l'allure est représentée figure 3.13

À l'interface entre deux diélectriques, l'**angle de Brewster**  $i_B$  est l'angle d'incidence pour lequel le rayon réfléchi et le rayon réfracté sont orthogonaux (soit  $n_1 \sin i_B = n_2 \sin(\frac{\pi}{2} - i_B)$ ) ; cet angle s'exprime

7. La densité d'énergie électrique dans un milieu vaut  $\frac{1}{2}(n|E|)^2$  [Saleh et Teich, 2007] ; il ne faut pas oublier que la transmission à travers système fait intervenir deux coefficients de transmission, dont le produit est inférieur à 1.

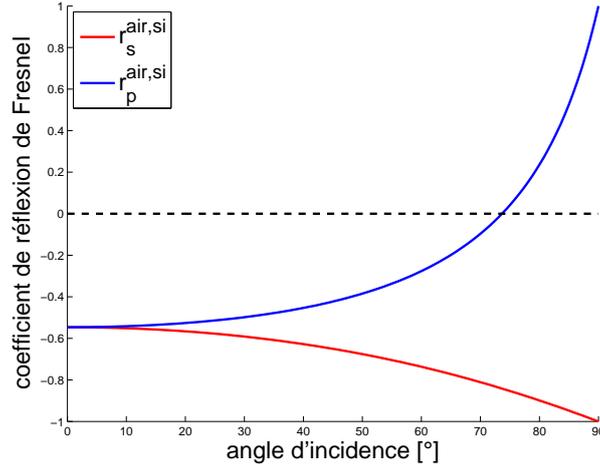


FIGURE 3.13 – Coefficients de réflexion pour une interface air→silicium en fonction de l’angle d’incidence et de la polarisation (équations 3.21 et 3.22) — le croisement de la courbe en zéro marque l’angle de Brewster. L’indice du silicium est  $n_{si} = 3.41$

par :

$$i_B = \arctan\left(\frac{n_2}{n_1}\right). \quad (3.23)$$

Pour cette condition, on peut vérifier que le **coefficient de réflexion pour une onde polarisée p est nul**, tandis qu’il est non-négligeable pour la composante polarisée s. Comme l’indique équation 3.18, la condition de Brewster dans le cas d’une lame à faces planes parallèles se conserve sur la deuxième interface (par inversion des rôles de  $r$  et  $i$ ) : il n’y a donc pas non plus de réflexion sur cette dernière et donc pas d’effet étalon (pas d’échos).

Les coefficients de transmissions globaux *en amplitude* au travers d’une lame à faces parallèles ont pour expression :

$$T_s^{1,2}(i) = t_s^{1 \rightarrow 2}(i, r) \times t_s^{2 \rightarrow 1}(r, i) = 1 - r_s^{1 \rightarrow 2}(i)^2 \quad (3.24)$$

$$T_p^{1,2}(i) = t_p^{1 \rightarrow 2}(i, r) \times t_p^{2 \rightarrow 1}(r, i) = 1 - r_p^{1 \rightarrow 2}(i)^2. \quad (3.25)$$

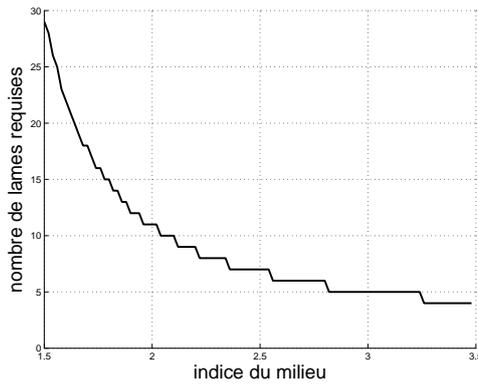
L’équation 3.25 nous assure qu’à l’angle de Brewster l’onde polarisée p est **complètement transmise**, tandis que l’onde polarisée s est partiellement réfléchi.

Il nous est possible d’empiler plusieurs lames parallèles afin d’éliminer la deuxième composante par réflexions partielles successives afin de constituer un polariseur linéaire. Nous souhaitons obtenir un rapport 100 entre l’amplitude transmise de la composante p et celle de la composante s en négligeant (pour l’instant) les réflexions internes qui ont lieu au sein ou entre les wafers pour la polarisation s). Le nombre minimum  $k$  de lames nécessaires pour atteindre un tel taux d’extinction doit vérifier :

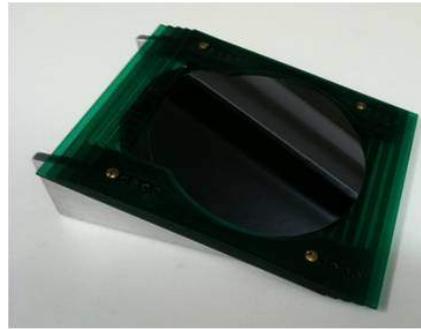
$$k \geq -2 \log_{10}(T_s(i_B)). \quad (3.26)$$

Le nombre de lames nécessaires diminue fortement à mesure que l’indice de la lame augmente (figure 3.14a), si bien que seulement quatre lames sont nécessaires si l’on utilise des wafers en silicium (figure 3.14b), contrairement à une vingtaine dans le visible.

Un polariseur linéaire est décrit dans son repère propre par la matrice d’un projecteur. Si la polarisa-



(a) Nombre de lames d'indice orientées à l'angle de Brewster en fonction de l'indice  $n$  de la lame, pour polariser à 99% le faisceau incident.



(b) Quatre wafers en silicium empilés pour constituer un polariseur linéaire.

FIGURE 3.14 – Constitution d'un polariseur linéaire.

tion en entrée est rectiligne selon la direction  $\mathbf{e}_x$  ( $\mathbf{E} = {}^t[E_0 \ 0]$ ), et que le polariseur forme un angle  $\alpha$  avec cette direction, le champ électrique en sortie du polariseur vaut :

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} E_{\parallel} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha \\ \sin \alpha & \cos \alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha \\ -\sin \alpha & \cos \alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_0 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_0 \cos^2 \alpha \\ E_0 \cos \alpha \sin \alpha \end{bmatrix} \\ &= \frac{E_0}{2} \begin{bmatrix} 1 + \cos(2\alpha) \\ \sin(2\alpha) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (3.27)$$

L'expression de  $E_{\parallel}$  ressemble à la loi de Malus, bien qu'elle soit sans rapport direct<sup>8</sup>. On note en particulier que dans cette expression, le signe de  $E_{\perp}$  est libre de s'inverser, ce que nous aurons l'occasion de vérifier.

### 3.3.2 Influence de l'orientation d'un wafer en silicium sur une impulsion térahertz

Aux effets reliés aux coefficients de Fresnel dont nous souhaitons tirer parti, d'autres considérations relatives à l'aspect temporel et spatial des faisceau THz interviennent lors de l'étude d'un wafer en silicium. En effet, l'inclinaison de ce dernier modifie la structure des réflexions internes (figure 3.15), tant en modulant l'épaisseur optique traversée qu'en terme d'intensité des réflexions.

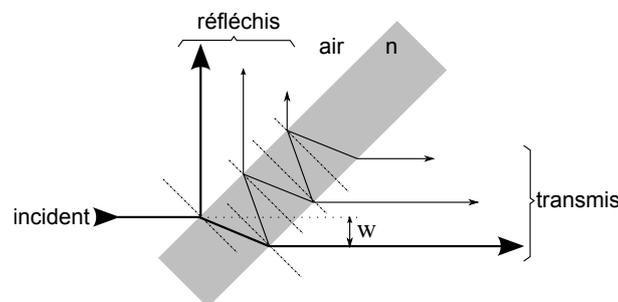


FIGURE 3.15 – Schéma descriptif des réflexions internes, du décalage latéral, et notations.

8. La loi de Malus est une loi sinusoidale *en intensité*.

Le rallongement du chemin optique causé par la lame introduit un délai pour l'impulsion transmise directement :

$$\Delta t = \frac{e}{c} \frac{1}{\cos r} (n_{si} - \cos(i - r)). \quad (3.28)$$

Les réflexions multiples au sein de la lame manifestent par un train d'impulsions en sortie ; cet effet d'étalon s'exprime dans le domaine fréquentiel<sup>9</sup> par :

$$FP(\omega) = T e^{i\phi_1} (1 + R e^{i\phi_2} + R^2 e^{2i\phi_2} + R^3 e^{3i\phi_2} + \dots) \quad (3.29)$$

avec

$$\phi_1 = \frac{2\pi\nu}{c} e \left( \frac{n_{si}}{\cos r} - \frac{\cos(i - r)}{\cos r} \right) = 2\pi\nu\Delta t \quad (3.30)$$

$$\phi_2 = \frac{2\pi\nu}{c} e \left( \frac{2n_{si}}{\cos r} - 2 \tan r \sin i \right), \quad (3.31)$$

où  $R = - \left[ r_{\{s,p\}}^{\text{lame}}(i, r) \right]^2$  et  $T = 1 + R$  dépendent évidemment de la direction de la polarisation incidente.

La réfraction du faisceau dans une lame vue sous un angle d'incidence non-nul provoque un léger décalage latéral  $w$  que l'on nomme *walk-off* en anglais et qui rend le système légèrement asymétrique. Ce décalage a pour expression :

$$w = e \frac{\sin(i - r)}{\cos(r)} = e \left( \sin i - \frac{\cos^2 i}{\sqrt{\left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2 - \sin^2 i}} \right). \quad (3.32)$$

Il est inférieur à l'épaisseur de la lame, elle-même considérée comme fine, et sera ignoré par la suite dans la mesure où l'on aura toujours affaire à des faisceaux collimatés. Ce décalage peut néanmoins être compensé en disposant les lames en quinconce, ce qui se fait au détriment de la compacité du système.

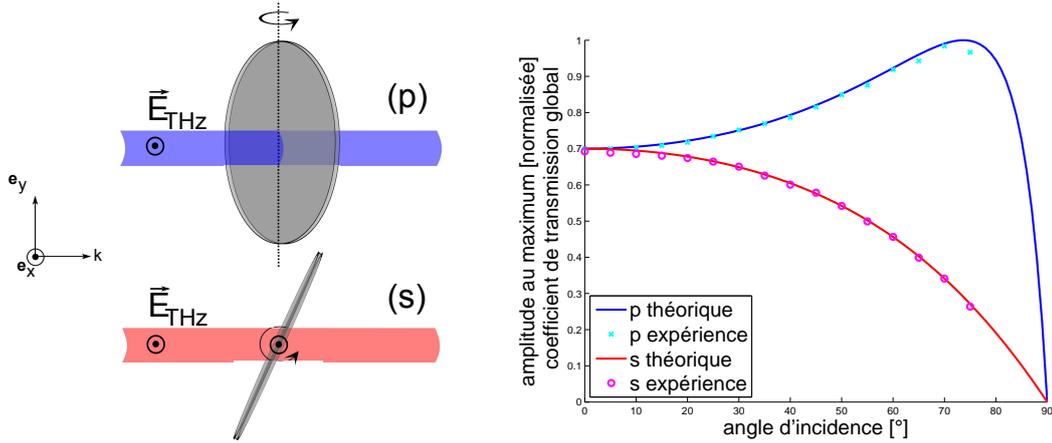
Pour procéder aux expériences, nous utilisons tout d'abord un wafer en silicium (d'indice  $n_{si} = 3.42$ ) 4 pouces (101,6 mm) de diamètre et de 525  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Les mesures sont effectuées à l'aide d'une seule antenne de détection alignée avec l'antenne d'émission, qui elle émet des impulsions polarisées rectilignement. Il faut donc procéder à deux séries de mesures, en plaçant le wafer sur un support rotatif dont l'axe de rotation est parallèle à la polarisation étudiée (figure 3.16a). Dans la première série de mesure nous avons donc la correspondance  $E_{\parallel} = E_p$ , et dans la seconde série  $E_{\parallel} = E_s$ .

Les mesures (figure 3.16b) montrent un très bon accord avec la théorie (equations 3.24 et 3.25). À l'angle de Brewster  $i_B^{si} = 73.7^\circ$ , le faisceau arrivant avec une polarisation **s** est fortement atténué ( $T_s^{\text{air,si}}(i_B^{si}) = 0.29$ ) tandis que la transmission quasiment totale pour la polarisation **p** :  $T_p^{\text{air,Si}}(i_B^{si}) \simeq 1$  (l'écart que l'on peut constater est attribué à l'ouverture réduite du système aux forts angles).

D'un point de vue temporel, nous pouvons constater que l'augmentation de l'angle d'incidence jusqu'à l'angle de Brewster produit un affaiblissement progressif du pic principal pour la polarisation **s** accompagné d'un renforcement des échos (figure 3.17a), tandis que la polarisation **p** voit l'amplitude de son pic principal augmenter et ses échos disparaître (figure 3.17a).

La figure 3.18a présente une modélisation des réflexions internes à l'aide de l'expression 3.29 pour

9. On fera attention à ne pas passer à la limite et de sommer la suite géométrique : la fenêtre temporelle de la mesure est limitée et l'application d'un tel filtre est sensible aux repliements.



(a) Schéma de l'expérience. Sur les deux dessins sont indiqués les axes de rotation correspondant aux axes selon lesquels les wafers ont été tournés pour effectuer les mesures. (b) Amplitudes au maximum des impulsions mesurées (relativement à une mesure effectuée sans wafer) en fonction de l'angle d'incidence, et coefficients de transmission globaux  $T_s^{1,2}$  et  $T_p^{1,2}$  des équations 3.25 et 3.24.

FIGURE 3.16 – Mesure des coefficients de transmission d'un wafer en silicium en fonction de l'angle d'incidence, pour les deux polarisations rectilignes.

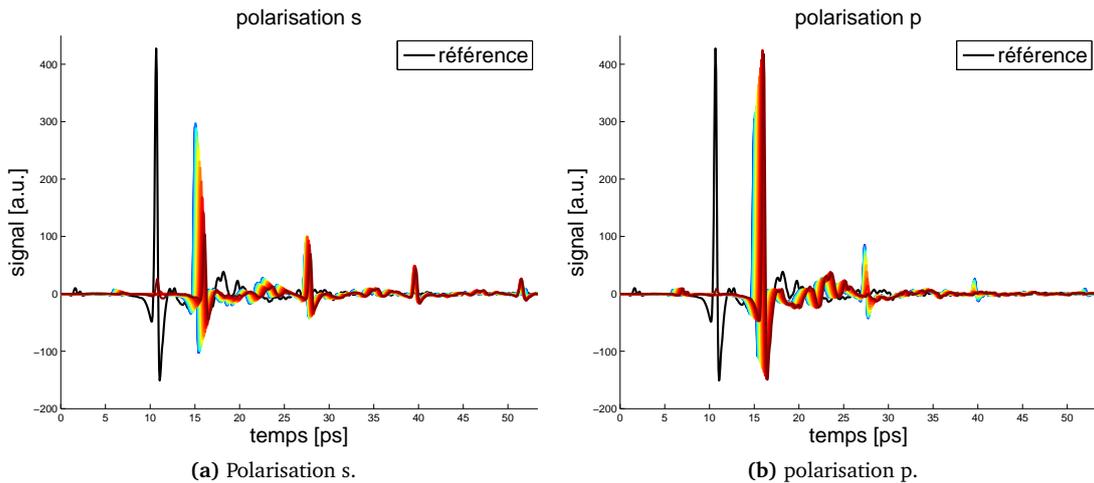


FIGURE 3.17 – Evolution temporelle des impulsions THz en fonction de l'angle d'incidence de  $0^\circ$  à  $75^\circ$  pour les deux états de polarisation rectiligne (le dégradé suit l'augmentation de l'angle).

un angle d'incidence de  $45^\circ$ . Le modèle limité à quatre termes reproduit fidèlement les résultats de l'expérience et confirme que l'absorption du wafer est négligeable.

### 3.3.3 Polariseur linéaire achromatique

Pour constituer un polariseur linéaire ayant un taux d'extinction en amplitude  $\rho = T_p/T_s$  supérieur à 100, nous avons assemblé quatre wafer en silicium (figure 3.19a) sur un support permettant de conserver l'inclinaison des wafer par rapport au faisceau. Ce polariseur est achromatique car les coefficients de Fresnel ne dépendent de la fréquence que par l'intermédiaire de l'indice du matériau qui se trouve être non dispersif sur toute la gamme considérée.

L'évaluation de performances du polariseur linéaire achromatique se fait en plaçant le support du

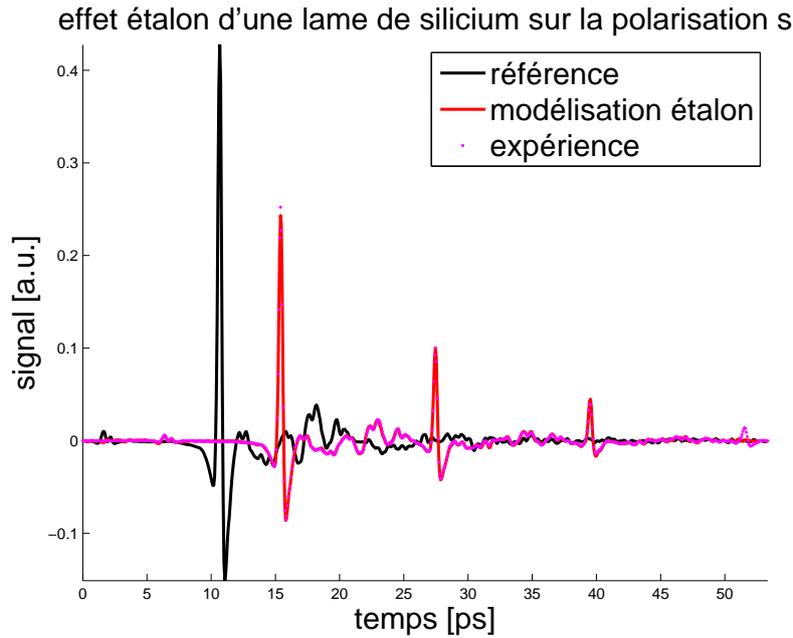


FIGURE 3.18 – Effet étalon dû aux réflexions internes dans un wafer en silicium : expérience et modélisation.

polariseur linéaire sur un support rotatif et en le plaçant dans le faisceau. Le rayonnement incident est polarisé rectilignement, et chacun des deux détecteurs orthogonaux ne détecte qu'une seule composante de polarisation du champ électrique, respectivement  $E_{\parallel}$  et  $E_{\perp}$  dont l'évolution est décrite par l'expression 3.27. Pour chaque orientation du polariseur la totalité de l'impulsion Thz est mesurée.

Les mesures temporelles pour la composante  $E_{\parallel}$  sont normalisées par rapport à une mesure de référence faite en l'absence de polariseur, tandis que les mesures pour la composante  $E_{\perp}$  sont normalisées de manière à ce que les maximums des mesures coïncident avec le modèle théorique (en l'absence de polariseur linéaire, cette composante est nulle). On constate que l'accord entre les mesures et le modèle est excellent (figure 3.19b). Une étude dans le domaine fréquentiel confirme que l'extinction des composantes ne dépend pas de la fréquence (non présenté ici).

Un polariseur linéaire peut dans une certaine mesure être considéré comme un atténuateur dont le comportement est exactement connu. L'absence de déformations entre les mesures et le modèle permet donc de confirmer l'hypothèse faite implicitement que les détecteurs que nous utilisons sont linéaires en champ électrique.

## Performances du polariseur

Les performances du polariseur sont déterminées selon deux critères :

- le taux de transmission, qui traduit les pertes par insertion :  $\tau^* = \frac{E_{\parallel}(\theta = 0^\circ)}{E_0}$ ,
- le taux d'extinction, qui traduit la pureté de la polarisation de sortie :  $\rho^* = \frac{E_{\parallel}(\theta = 0^\circ)}{E_{\perp}(\theta = 0^\circ)}$

Pour déterminer le taux de transmission, nous plaçons deux polariseurs linéaires à la suite tous deux orientés dans le sens de la polarisation de l'antenne émettrice, le premier restant fixe et ayant pour but de

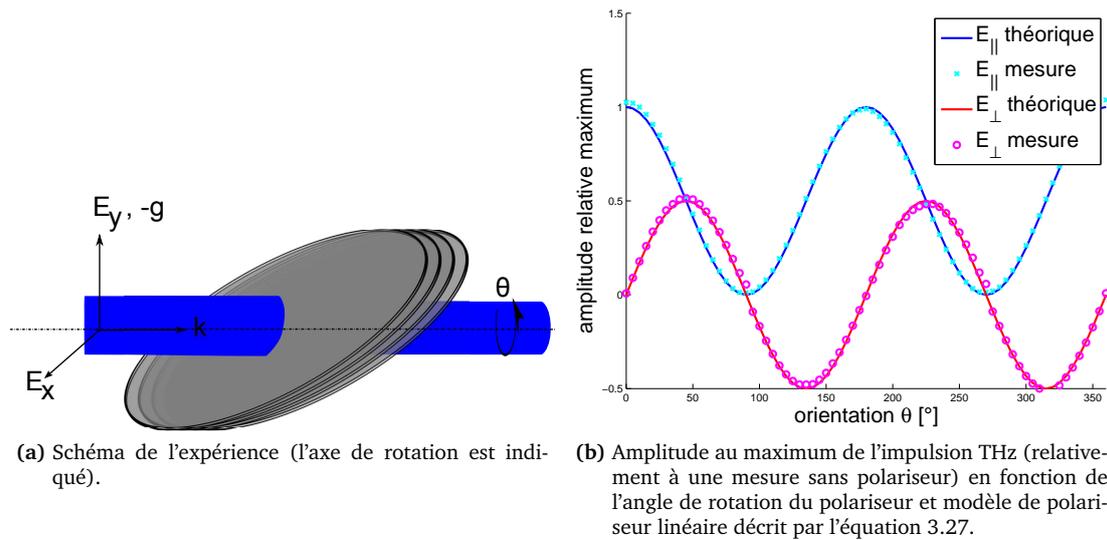


FIGURE 3.19 – Effet du polariseur de Brewster.

polariser le faisceau issu de l'antenne, le second permettant de déterminer les pertes par insertion. Nous effectuons les mesures seulement à l'aide de l'antenne de détection parallèle à la composante d'émission, afin de pouvoir procéder à des comparaisons quantitatives (les deux antennes de détections n'ont pas la même sensibilité, ce qui perturberait la comparaison).

La comparaison des mesures effectuées en l'absence (non présentée) et en la présence (figure 3.20a, courbe en noir) du second polariseur indiquent que le taux de transmission  $\tau^*$  est supérieur à 99% et démontrent une absence totale d'échos liés au polariseur lui-même.

Ces mesures permettent en outre de discuter de la structure des signaux sur de grandes extensions temporelles que nous avons passé sous silence jusqu'à présent (figure 3.20a). L'impulsion principale intervient au temps 18 ps, tandis qu'à 80 ps, on observe un écho qui correspond aux réflexions internes dans la séparatrice en silicium. À 145 ps et au delà, on observe la réflexion parasite des signaux au sein l'antenne (phénomène que l'on observe également sur le montage de spectroscopie).

Pour mesurer le résidu de la composante de polarisation croisée, effectuons maintenant les mesures en croisant le second polariseur avec le premier. Les résultats sont présentés figure 3.20b.

Le premier pic que l'on observe correspond à la composante croisée transmise directement. Le taux d'extinction est de  $\rho^*=80$ , légèrement inférieur au critère que nous nous étions fixé. La longue série de pics ultérieurs correspond aux réflexions internes entre les wafer et au sein même de ces derniers. Ces répliques se trouvent être plus intenses que l'impulsion transmise directement. Elles interviennent toutefois longtemps après la première impulsion et seront dans toutes les mesures ultérieurs filtrées par fenêtrage temporel. L'énergie totale contenue dans la composante croisée est de l'ordre de 10% de celle contenue dans la composante principale, cela malgré l'espacement que nous avons introduit entre les wafers : la composante s reste "emprisonnée" dans la structure du polariseur, mais décalée et diluée dans le temps.

Nous avons tenté de modéliser la structure de ces échos avec le formalisme des réseaux de Bragg, mais la structure air-wafer n'est pas suffisamment périodique pour bien décrire les données collectées ; les réflexions sur d'autres éléments du montages ne peuvent pas non plus être prises en compte.

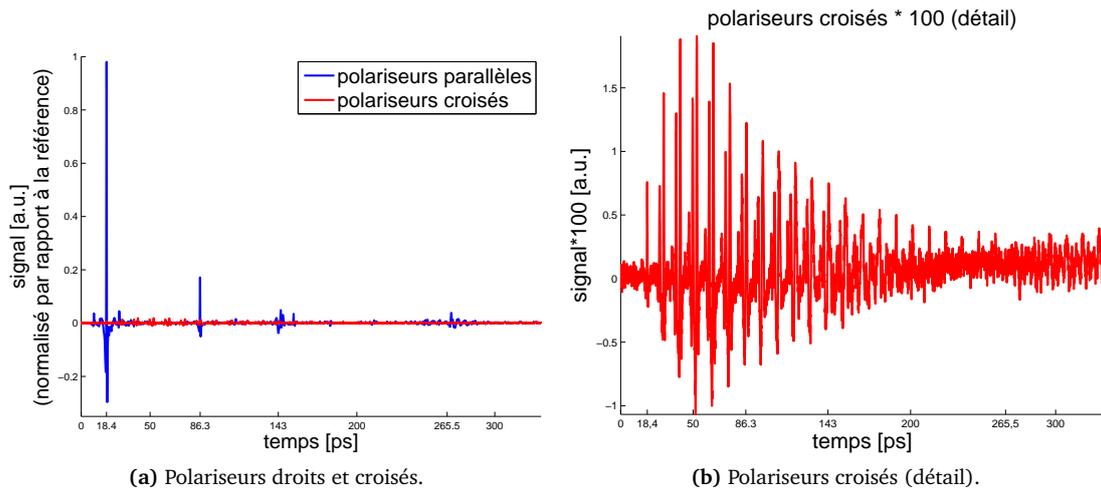


FIGURE 3.20 – Mesure des taux de transmission et de polarisation.

### Inversion de polarité

L'expression 3.27 prévoit que la composante  $E_{\perp}$  doit changer de polarité, ce que l'on observe bien sur les mesures temporelles de l'impulsion lorsque le polariseur est orienté entre  $90^{\circ}$  et  $180^{\circ}$  par rapport à la direction de la polarisation incidente (figure 3.21b), tandis que l'autre composante ne se voit pas son signe changer (figure 3.21a).

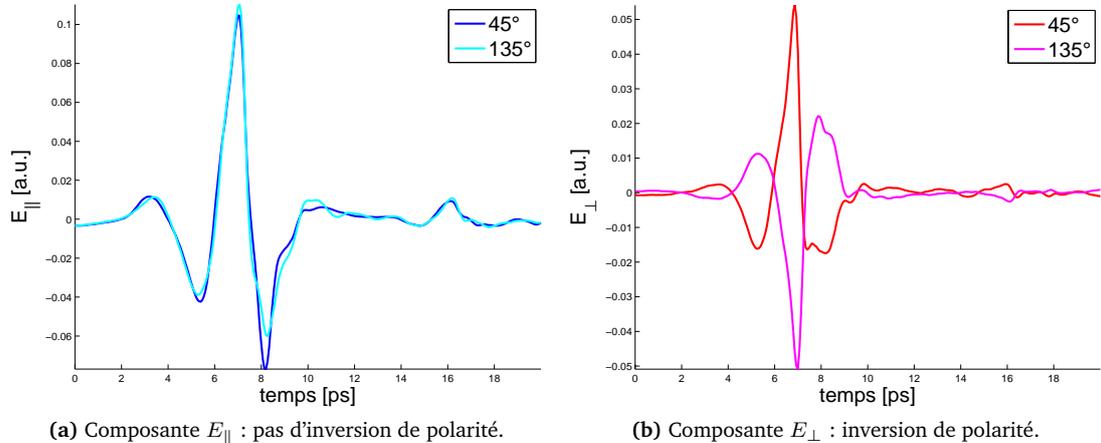


FIGURE 3.21 – Inversion de polarité des impulsions THz pour certaines orientations du polariseur linéaire.

### 3.4 Polariser circulairement une impulsion THz

Après avoir vu comment il est possible de créer une polarisation rectiligne et développé quelques considérations sur la phase des impulsions THz, intéressons-nous désormais aux possibilités qui s'offrent à nous pour générer des impulsions THz polarisés circulairement.

Dans le domaine visible, la méthode la plus communément utilisée pour générer des polarisations circulaires consiste à utiliser ce que l'on nomme des lames de phase. Ces lames de phases sont fabriquées à partir de matériaux biréfringents, de telle sorte que les polarisations se propageant respectivement selon l'axe ordinaire et l'axe extraordinaire (d'indices  $n_o$  et  $n_e$ ) sont déphasées d'un quart de longueur d'onde après propagation sur une longueur  $L$  telle que  $L = \frac{\lambda}{4} \frac{1}{n_o - n_e}$  (d'où leur nom de lame quart d'onde). Ce qui en terme de phase se traduit par un déphasage relatif de  $\pi/2$  :

$$\Delta\Phi = k_o L - k_e L = \frac{2\pi}{\lambda} L (n_o - n_e) = \frac{\pi}{2}.$$

Si l'on choisit un matériau tel que le quartz ( $n_o = 1.544$ ,  $n_e = 1.553$ ) pour fabriquer une telle lame quart d'onde à 600 nm, son épaisseur doit être de 15  $\mu\text{m}$  environ. Cette valeur est assez faible, ce qui explique que ce que l'on nomme quart d'onde est souvent une multi-onde<sup>10</sup> avec une partie fractionnaire telle que  $\Delta\Phi = \frac{\pi}{2} + 2k\pi$ ,  $k \in \mathbb{Z}$ .

La principe de fonctionnement d'une lame quart d'onde s'appuie donc sur la différence de phase linéaire qui s'introduit entre les deux composantes orthogonales de l'onde au cours de leur propagation. Malheureusement pour les impulsions térahertz, on observe que ce déphasage dépend linéairement de la fréquence, et qu'il est par là intrinsèquement chromatique sans même prendre en compte la dispersion des matériaux.

Une solution, proposée par Masson [Masson et Gallot, 2006b], consiste à empiler des lames d'ondes d'épaisseurs et d'orientations variables, afin que plusieurs fréquences correspondent à des déphasages de  $\frac{\pi}{2}$ , par un jeu de compensation (voir le schéma 3.22).

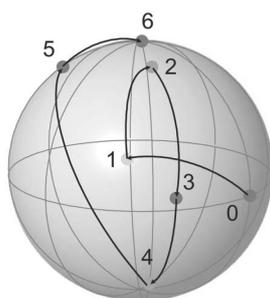


FIGURE 3.22 – Evolution de l'état de polarisation pour une fréquence au passage de chaque lame de quartz de la lame quart d'onde achromatique proposé par Masson [Masson et Gallot, 2006b] (image extraite de l'article).

Chaque fréquence parcourt une trajectoire différente mais aboutit au même état pour un large gamme spectrale (0.25-1.75 THz).

La compensation se fait en utilisant un nombre important de lames de quartz, assez épaisses par

10. pour faciliter leur réalisation en optique conventionnelle, les lames d'ondes sont souvent d'ordre supérieur ( $k > 1$ ). On peut également réaliser une lame quart d'onde en empilant deux lames multi-ondes dont les axes propres sont inversés : différence de marche vaut finalement  $\lambda/4$ . Dans le cas des impulsions femtosecondes, les termes en  $2\pi k$  prennent cependant toute leur importance et les lames sont quart d'onde au sens propre, ce qui les rend délicates à réaliser.

ailleurs, ce qui mène au final à une absorption importante.

Pour polariser circulairement la lumière de manière achromatique, il faut donc mettre de côté les méthodes basées sur des différences de phase linéaires et s'inspirer d'un autre élément de l'optique conventionnelle introduisant un déphasage entre les composantes : le rhomboèdre de Fresnel, dont le principe se base sur certaines caractéristiques de la réflexion interne totale.

### 3.4.1 Réflexion interne totale

La réflexion interne totale est un cas particulier des équations de Snell-Descartes (3.20) et des coefficients de Fresnel (3.14, 3.15). Elle se produit lorsqu'un faisceau qui se réfléchit forme un angle  $i$  avec une interface  $n_1 \rightarrow n_2$ , tel que  $n_1 > n_2$  et que le sinus de l'angle réfracté calculé avec l'expression 3.20 soit supérieur à 1, *i.e.* si l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique  $\alpha_c$  défini par :

$$\alpha_c = \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right). \quad (3.33)$$

Dans ces circonstances, les coefficients de Fresnel  $r_s^{1 \rightarrow 2}$  et  $r_p^{1 \rightarrow 2}$  (3.21 et 3.22) deviennent complexes et peuvent être réécrits sous la forme<sup>11</sup> :

$$r_s = |r_s|e^{i\phi_s} = \frac{n_1 \cos i + n_2 \sqrt{\left(\frac{n_1}{n_2} \sin i\right)^2 - 1}}{n_1 \cos i - n_2 \sqrt{\left(\frac{n_1}{n_2} \sin i\right)^2 - 1}} \quad (3.34)$$

$$r_p = |r_p|e^{i\phi_p} = \frac{n_2 \cos i + n_1 \sqrt{\left(\frac{n_1}{n_2} \sin i\right)^2 - 1}}{n_2 \cos i - n_1 \sqrt{\left(\frac{n_1}{n_2} \sin i\right)^2 - 1}} \quad (3.35)$$

Ces coefficients sont tous deux de module unité ( $|r_{s,p}| = 1$  car les numérateurs et les dénominateurs sont complexes conjugués), d'où le nom de réflexion totale et possèdent des arguments non-nuls qui s'expriment par :

$$\phi_s = 2 \arctan\left(\sqrt{\left(\frac{\cos \alpha_c}{\cos i}\right)^2 - 1}\right) \quad (3.36)$$

$$\phi_p = 2 \arctan\left(\frac{-1}{\sin^2 \alpha_c} \sqrt{\left(\frac{\cos \alpha_c}{\cos i}\right)^2 - 1}\right). \quad (3.37)$$

Ces arguments vont causer un déphasage particulier pour les deux composantes du champ. On peut donc définir un **déphasage différentiel**

$$\Delta\Phi = \phi_p - \phi_s, \quad (3.38)$$

qui est la phase relative des deux faisceaux après réflexion sur l'interface. Cette quantité dépend uniquement de l'angle d'incidence et de l'indice des matériaux en présence et donc implicitement de la longueur d'onde. Ainsi, si les matériaux d'indice  $n_1$  et  $n_2$  ne sont pas ou peu dispersifs, **le déphasage différentiel est constant quelle que soit la longueur d'onde.**

11. Il faut faire attention au signe devant la racine carré du nombre complexe ; celle-ci doit être négative pour que les résultats restent cohérents avec la dérivation des coefficients de Fresnel. Le logiciel Matlab prend par défaut la racine positive...

Si l'on choisit un matériau ayant un indice  $n_1$  en supposant que le milieu extérieur est l'air ( $n_2 = 1$ ), que l'on considère le spectre de deux composantes  $\tilde{S}(\nu)$  et  $\tilde{P}(\nu)$  et que l'on s'arrange pour que l'angle d'incidence du matériau permette de réaliser la condition

$$\arg[\tilde{P}(\nu)\tilde{S}^*(\nu)] = \Delta\phi(\nu) = \Delta\Phi = \pi/2 \quad \text{pour } \nu > 0, \quad (3.39)$$

il sera alors possible de concevoir un élément qui pourra **produire un état de polarisation circulaire**.

En considérant deux composantes de polarisation  $s(t)$  et  $p(t)$  réfléchies en interne dont les transformées de Fourier sont  $\tilde{S}(\nu)$  et  $\tilde{P}(\nu)$ , on a :

$$|\tilde{S}(\nu)| = |\tilde{P}(\nu)| \quad \text{et} \quad \arg[\tilde{P}(\nu)\tilde{S}^*(\nu)] = \text{sign}(\nu)\frac{\pi}{2}.$$

La seconde composante se trouve donc être en quadrature et s'exprime également comme l'opposée de la transformée de Hilbert (expression 1.23) de la première :

$$\tilde{P}(\nu) = \imath \text{sign}(\nu)\tilde{S}(\nu) = -\tilde{S}_H(\nu). \quad (3.40)$$

On obtient donc une expression simple du signal analytique des deux signaux à partir d'eux-mêmes :

$$s(t) - \imath p(t) = s(t) + \imath s_H(t) = \hat{s}(t) = -\hat{p}(t). \quad (3.41)$$

Si le déphasage différentiel est suffisamment important, une seule réflexion interne totale à un angle adéquat suffit (figure 3.23b), mais il faut parfois cumuler deux réflexions pour y parvenir (figure 3.23a). C'est pour cette raison que l'on utilise généralement dans le visible des *rhomboides* de Fresnel, au sein desquels le faisceau se réfléchit deux fois en accumulant à chaque fois une phase de  $\pi/4$ .

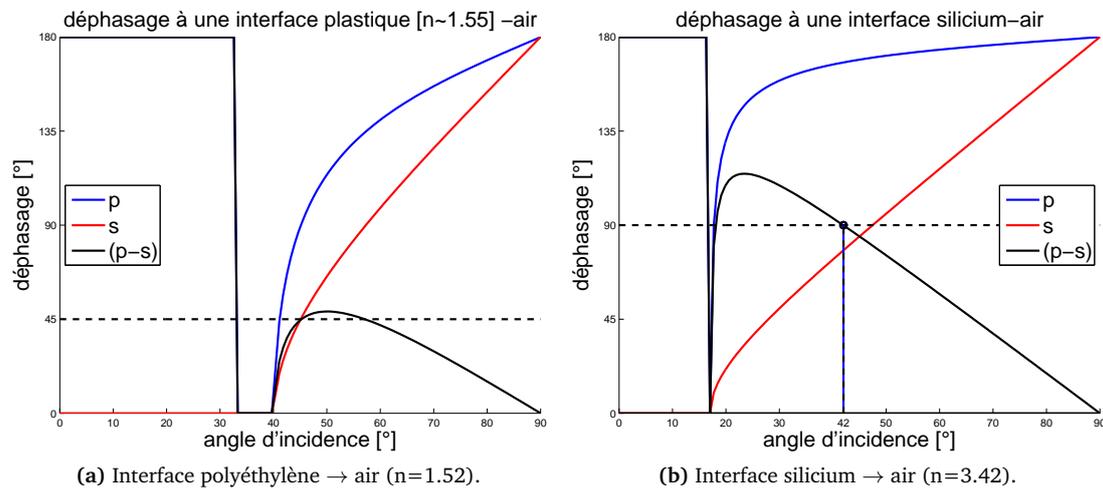


FIGURE 3.23 – Phases des coefficients de Fresnel complexes en réflexion pour différentes interfaces à l'air en fonction de l'angle d'incidence.

Shan et son équipe [Shan et al., 2009] ont conçu un rhomboïdre de Fresnel en polyéthylène. Nous avons fait de même, en faisant fabriquer par l'atelier du laboratoire deux rhomboïdres, l'un en PSX, l'autre en polyéthylène, dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 3.2. Leur réalisation est

relativement aisée à mettre en œuvre avec des outils d'usinage classique, compte tenu des dimensions caractéristiques du domaine térahertz (photo 3.24a).

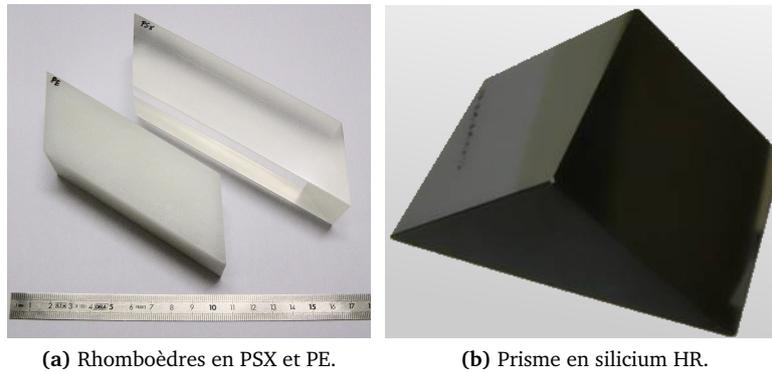
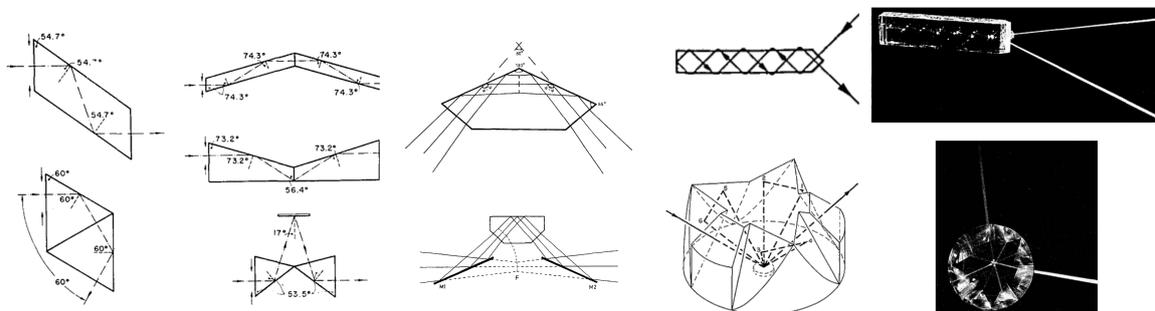


FIGURE 3.24 – Éléments de polarisation.

TABLE 3.2 – Propriétés géométriques et physiques de quelques éléments polarisants basés sur l'utilisation de la réflexion interne totale.

matériau	indice moyen	angle de TIR	réflexions	$\phi_s$	$\phi_p$
Polystyrène réticulé (PSX)	1.59	58.4°	2	190.5°	280.5°
Polyéthylène Haute Densité (HDPE)	1.52	55.4°	2	165°	255°
Silicium haute résistivité (HR-Si)	3.41	42°	1	78°	168°

Toutefois, la dimension d'un tel rhomboèdre doit être relativement importante pour avoir des ouvertures acceptables, ce qui conduit à des problèmes de d'absorption et de dispersion. Le silicium haute résistivité (HR) est un matériau qui, comme nous l'avons vu précédemment, possède d'excellentes propriétés dans le domaine THz : un très faible absorption, un indice très élevé ( $n_{si} = 3.42$ ) et une dispersion négligeable. Son indice très élevé permet de réaliser la condition de l'équation 3.39 en une seule réflexion, et donc de concevoir un prisme plutôt qu'un rhomboèdre. Nous avons par ailleurs tenté de déterminer des géométries (telles que celles proposées dans [Bennett, 1970, Korte et al., 1988], voir figure 3.25) qui auraient permis de conserver le faisceau dans l'axe ou de réduire la distance de propagation dans le milieu d'indice, mais la nécessité d'une ouverture suffisante et l'indice très élevé du silicium HR modèrent l'imagination.



(a) Configurations classiques (Extrait de [Bennett, 1970, Korte et al., 1988]). (b) Configurations exotiques (extrait de [Harrick, 1966a, Harrick, 1966b]).

FIGURE 3.25 – Quelques configurations proposées pour polariser un faisceau par réflexion interne totale.

Nous avons conçu un **prisme isocèle à angles de base de 42°** dont les faces d'incidence mesurent 50 mm, de sorte à ce que le faisceau entre et sorte du prisme sous incidence normale (schéma 3.26a). Pour sa fabrication nous avons contacté plusieurs entreprises qui malheureusement nous ont livré par deux fois des prismes qui n'étaient pas conformes à nos attentes, présentant des absorptions bien trop élevées<sup>12</sup>. Finalement, l'entreprise russe *Tydex* nous a livré un produit qui répondait à nos spécifications (photo 3.24b).

Des prismes similaires ont été utilisés par plusieurs équipes. Parmi elles, celle de Keiding [Keiding et Grischkowsky, 1990] utilise un prisme isocèle à angle droit en silicium HR pour discuter du déphasage des impulsions THz, celle d'Hirori [Hirori et al., 2004] utilise des prismes en Téflon et en MgO disposé en configuration de Dove pour faire de la spectroscopie par réflexion interne totale tandis ce celle d'Hirota [Hirota et al., 2006] utilise un prisme isocèle similaire au nôtre pour générer des impulsions THz polarisés circulairement.

Il est possible d'utiliser le prisme selon deux configurations. La première, que l'on appellera **configuration d'incidence normale** (schéma 3.26a), consiste à faire entrer le faisceau THz dans le prisme en incidence normale. Il est ensuite réfléchi (l'angle de réflexion interne totale est alors de 42°, correspondant à un déphasage différentiel de  $\pi/2$ ). La seconde configuration, appelée **configuration de Dove** (schéma 3.26b), consiste à aligner le faisceau avec la face de la base du prisme. Le faisceau incident est réfracté, puis subi un réflexion interne totale à l'angle 54.5° (ce qui introduit un déphasage différentiel de 67.3°), pour ensuite être à nouveau réfracté et ressortir dans le même axe que le faisceau incident. Cette configuration est intéressante car elle ne nécessite pas de miroirs de renvois pour revenir dans l'axe du faisceau. Cependant, l'angle d'incidence sur les faces d'entrée et sortie n'est pas nul, ce qui introduit une différence de coefficients de transmissions globaux. Par ailleurs, il n'est pas possible de concevoir un prisme en silicium de taille raisonnable dont l'angle de réflexion interne totale serait de 42° dans cette configuration.

Le tableau 3.3 résume les propriétés des deux configurations.

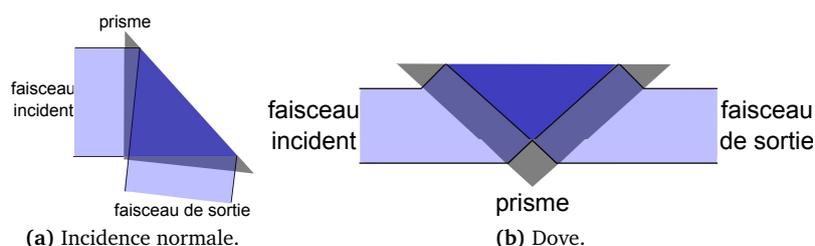


FIGURE 3.26 – Configurations d'utilisation du prisme.

TABLE 3.3 – Propriétés de polarisation des deux configurations.

configuration	angle à la TIR	$\phi_s$	$\phi_p$	$\Delta\phi$	$T_s$	$T_p$	$T_p/T_s$
incidence normale	42°	78°	168°	90°	0.70	0.70	1.00
Dove	54.5°	105°	172.5°	67.5°	0.56	0.84	1.51

12. La première entreprise contactée nous a fourni du silicium avec une résistivité 1  $\Omega$ .cm, tandis que nous avons spécifié une résistivité > 10 k $\Omega$ .cm ...

### 3.4.2 Prisme quart d'onde achromatique

Nous pouvons utiliser le prisme en silicium comme un élément de polarisation quart d'onde<sup>13</sup>. Pour cela, le prisme est monté sur un support rotatif, et trois miroirs de renvois permettent d'aligner les axes optiques du faisceau d'entrée et du faisceau de sortie (photo 3.27).

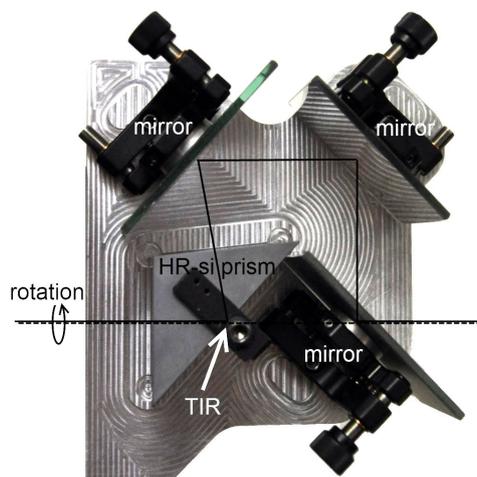


FIGURE 3.27 – Photographie du prisme quart d'onde achromatique et ses miroirs de renvois pour conserver l'axe optique.

La matrice de Jones  $[J_{cp}]$  d'un tel système dans son repère propre, en omettant les facteurs de phase linéaire qui sont dus au temps de propagation dans le système, est :

$$[J_{cp}] = T \begin{bmatrix} e^{i\phi_s} & 0 \\ 0 & e^{i\phi_p} \end{bmatrix} \quad (3.42)$$

avec  $\phi_s = 78^\circ$  et  $\phi_p = 168^\circ$  les déphasages de chaque composantes et  $T = T_{\{s,p\}}^{\text{air,si}}(i=0) = 0.70$  le coefficient de transmission du prisme qui prend en compte les pertes par réflexion sur les faces d'entrée et de sortie du prisme (que nous négligerons par la suite). Contrairement au traitement classique des lames d'onde, il est nécessaire ici de **conserver les phases absolues**, plutôt que d'utiliser le paramètre de déphasage différentiel. Les deux vecteurs propres de cette matrice sont les états de polarisation rectiligne horizontale et verticale (les axes sont définis dans la base propre de la matrice) et sont associés à des valeurs propres complexes. Comme nous l'avons vu dans la partie 2.4.3, l'ajout de cette phase produit une déformation des l'aspect temporel des impulsions. Il n'y a donc pas réellement d'« impulsion propre », que la traversée du prisme laisserait temporellement inchangée.

### 3.4.3 Étude du prisme quart d'onde en rotation

Afin de procéder à l'analyse du prisme quart d'onde, nous polarisons d'abord le faisceau afin d'obtenir une polarisation rectiligne orientée à  $45^\circ$  dans le repère du laboratoire de manière à ce que l'énergie des impulsions soit équitablement répartie entre les deux composantes, à l'aide d'un polariseur linéaire tel que décrit dans la section 3.3.3. Les deux antennes de détections étant respectivement sensibles aux composantes  $E_{\parallel}$  et  $E_{\perp}$ , cela nous permet de les calibrer en détectant le champ d'entrée (en l'absence de

13. Le prisme est quart d'onde pour toutes les longueurs d'ondes, contrairement au lames quart d'onde qui se réfèrent implicitement à une longueur d'onde particulière.

prisme quart d'onde)  $\mathbf{E}^{\text{in}} = {}^t[E_{\parallel}^{\text{in}} E_{\perp}^{\text{in}}] = E_0/\sqrt{2} {}^t[1 \ 1]$ . Bien que les deux détecteurs n'aient pas une réponse parfaitement identique (figure 3.28a), leurs réponses fréquentielles sont suffisamment proches (figure 3.28b), pour que l'on puisse se contenter de faire une simple correction de gain (linéaire).

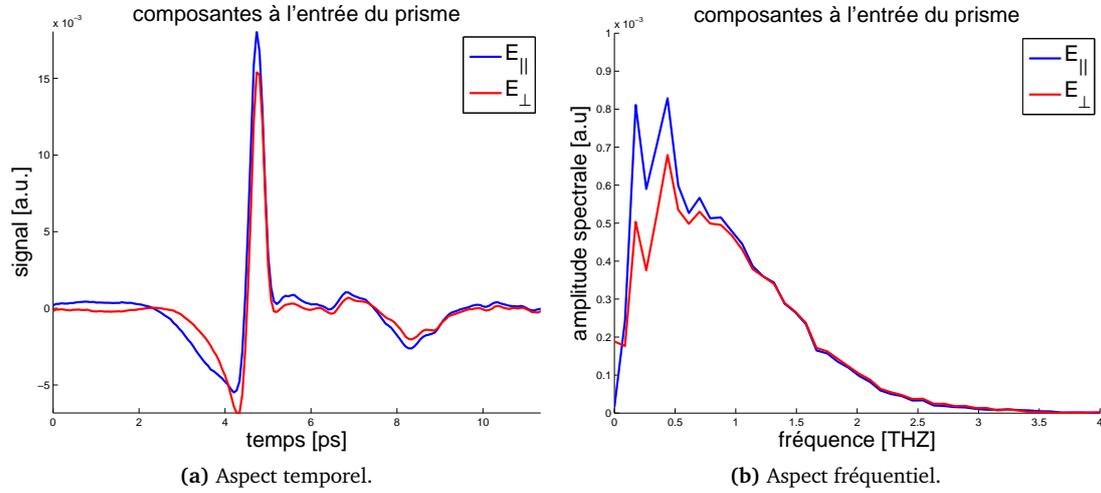


FIGURE 3.28 – Polarisation en entrée du prisme quart d'onde.

Nous plaçons, à la suite du polariseur linéaire, le prisme quart d'onde sur un support rotatif (photo 3.29) et nous enregistrons les impulsions THz pour chaque orientation  $\theta$  du berceau.

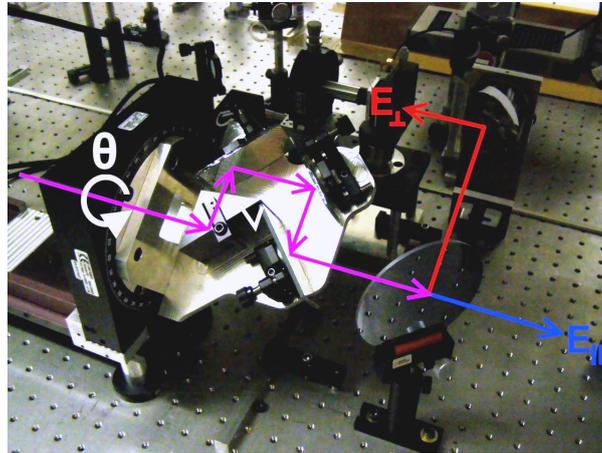


FIGURE 3.29 – Photographie du prisme quart d'onde achromatique sur son berceau de rotation.

Le champ en sortie du prisme quart d'onde orienté avec un angle  $\theta$  par rapport à ses axes propres dans le repère du laboratoire s'exprime :

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} E_{\parallel} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} &= [\mathbf{R}(\theta)][\mathbf{J}_{cp}][\mathbf{R}(-\theta)]\mathbf{E}^{\text{in}} \\ &= \frac{E_0 T}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} (\cos^2 \theta e^{i\phi_s} + \sin^2 \theta e^{i\phi_p}) + \cos \theta \sin \theta (e^{i\phi_s} - e^{i\phi_p}) \\ (\sin^2 \theta e^{i\phi_s} + \cos^2 \theta e^{i\phi_p}) + \cos \theta \sin \theta (e^{i\phi_s} - e^{i\phi_p}) \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (3.43)$$

La figure 3.30 présente une superposition de l'ensemble des mesures, pour chacun des détecteurs,

ainsi que le module du signal analytique  $|s_a|$  d'une des mesures (les signaux analytiques sont pratiquement identiques quelque soit la mesure). On retrouve bien que l'ensemble des mesures temporelles est borné par le module de leur signal analytique. Les deux composantes du champ ont une évolution similaire mais non synchrones lors du changement d'orientation du prisme quart d'onde.

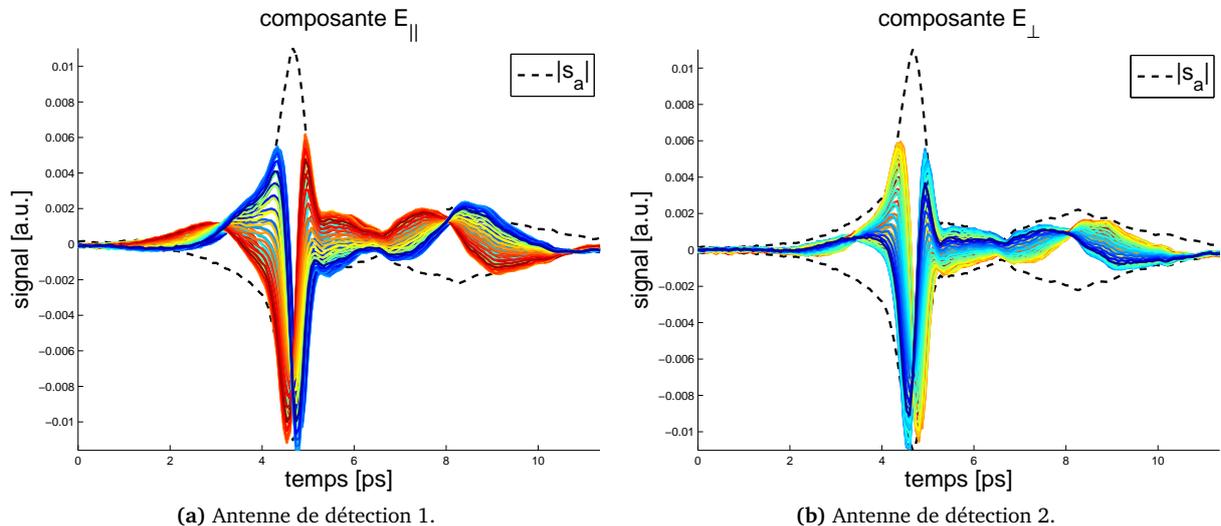


FIGURE 3.30 – Aspect temporel des deux composantes pour toutes orientations du prisme quart d'onde.

L'étude de l'équation 3.43 nous indique qu'il y a certaines orientations remarquables. Tout d'abord, les états rectilignes qui apparaissent pour les orientations :

- $\theta = 45^\circ \pm 180^\circ$  correspond au premier axe propre du polariseur. Les deux composantes détectées sont en phase après avoir subi un déphasage  $\phi_p$  :

$$\begin{bmatrix} E_{||} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} = e^{i\phi_s} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}},$$

- $\theta = -45^\circ \pm 180^\circ$  correspond au second axe propre du polariseur. Les deux composantes détectées sont en phase après avoir subi un déphasage  $\phi_p$  :

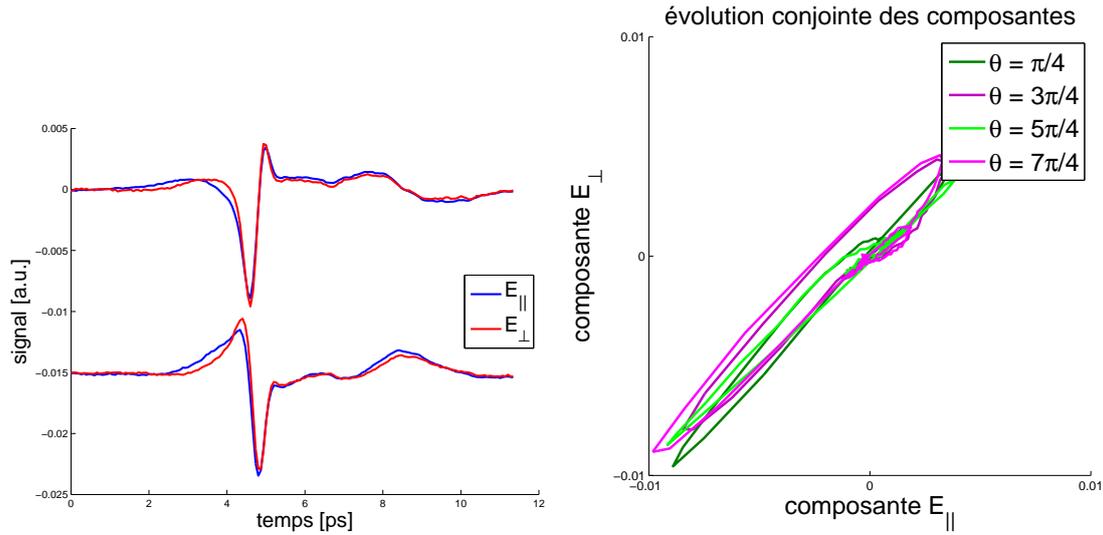
$$\begin{bmatrix} E_{||} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} = e^{i\phi_s} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}}.$$

Les deux états de polarisation rectilignes sont représentés sur la figure 3.31. Les deux composantes sont bien en phase et d'amplitude similaire (sous-figure 3.31a) pour chacun des états, mais ces derniers ne sont pas identiques entre eux. En effet, l'addition d'une **phase constante modifie la CEP** et donc l'aspect temporel de l'impulsion.

Les états de polarisation ne sont pas tout à fait purs, en raison de la légère différence de réponse des antennes de détection ainsi qu'à de légers défauts d'alignements<sup>14</sup>.

Les états circulaires apparaissent pour les orientations :

14. Les degrés de libertés du système sont nombreux et il est assez difficile de le régler parfaitement, problème récurrent lorsque l'on fait des mesures dans le domaine THz.



(a) Évolution temporelle  
 – en haut les ondes déphasées de  $\phi_s$ ,  
 – en bas les ondes déphasées de  $\phi_p$  (décalée).

(b) États de polarisation rectilignes.

FIGURE 3.31 – Aspect temporel des deux composantes pour les états de polarisation rectilignes.

–  $\theta = 0^\circ \pm 180^\circ$  correspond à l'état de polarisation circulaire gauche :

$$\begin{bmatrix} E_{\parallel} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e^{i\phi_s} \\ e^{i\phi_p} \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}} = e^{i\phi_s} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}},$$

–  $\theta = 90^\circ \pm 180^\circ$  correspond à l'état de polarisation circulaire droit :

$$\begin{bmatrix} E_{\parallel} \\ E_{\perp} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e^{i\phi_p} \\ e^{i\phi_s} \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}} = e^{i\phi_p} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \frac{TE_0}{\sqrt{2}}.$$

Sur la figure 3.32, on observe les deux états de polarisation circulaires gauche et droit. En raison de leur caractère sous-monocycliques, le « cercle » (figure 3.32b) que forment les deux composantes est décentré.

En poursuivant l'analyse avec la phase spectrale différentielle

$$\Delta\phi(\nu, \theta) = \arg \left[ \tilde{E}_y(\nu, \theta) \tilde{E}_x^*(\nu, \theta) \right], \quad (3.44)$$

la figure 3.33a nous montre qu'elle est relativement indépendante de la fréquence et que son comportement en rotation du polariseur suit le modèle théorique (différence des arguments des deux composantes de l'expression 3.43, figure 3.33a).

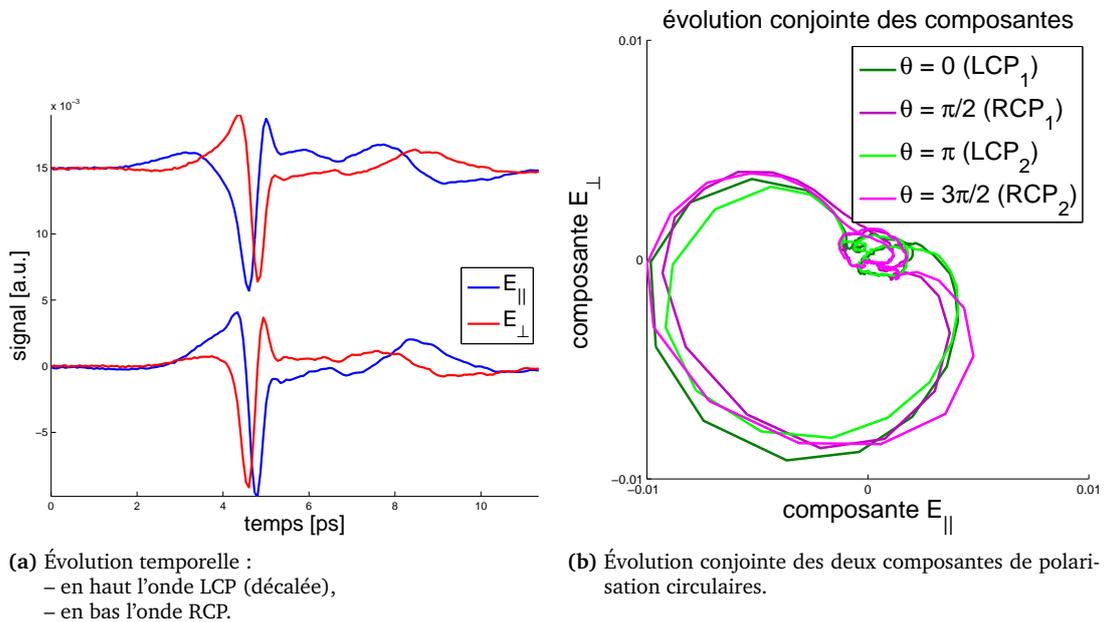


FIGURE 3.32 – Aspect temporel des deux composantes pour les états de polarisation circulaires.

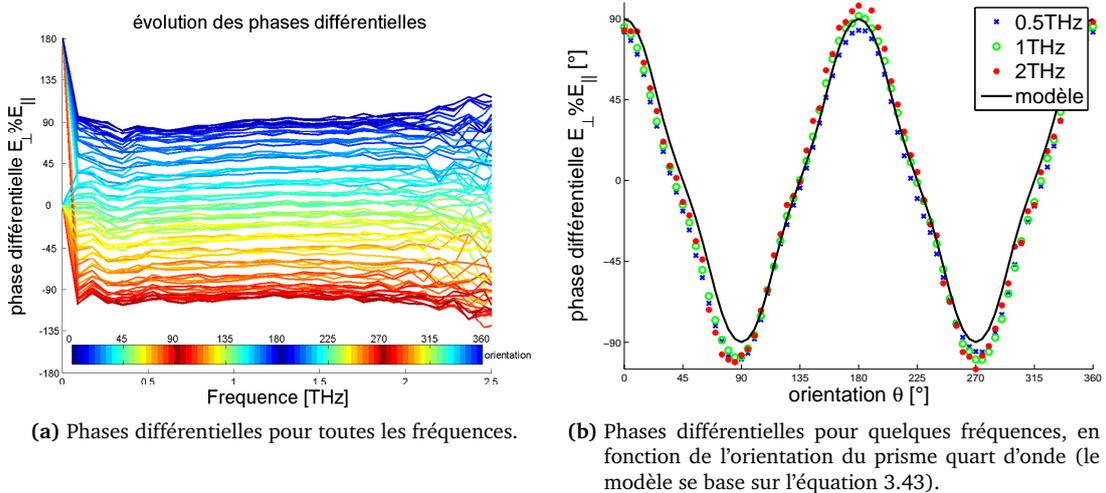


FIGURE 3.33 – Phases différentielles.

### 3.4.3.1 Sphère de Poincaré

La sphère de Poincaré permet de visualiser la dispersion en fréquence de l'état de polarisation (figure 3.34) ainsi que l'évolution des états de polarisations en fonction de l'orientation du prisme quart d'onde (figure 3.35).

Ces représentations ne permettent toutefois pas de distinguer les deux états de polarisation rectilignes, qui diffèrent d'une phase constante.

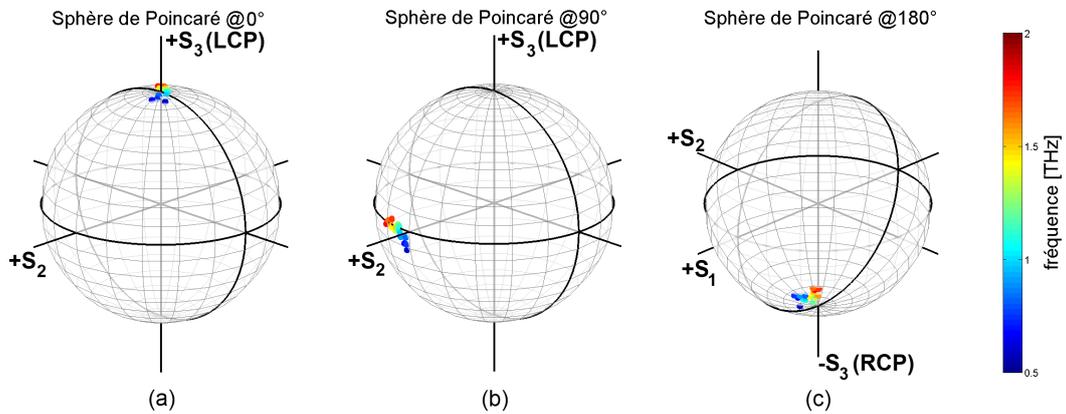


FIGURE 3.34 – Etat de polarisation de quelques fréquences, représentées sur la sphère de Poincaré pour différentes orientations du prisme quart d'onde.  
 (a) polarisation circulaire gauche ( $\theta = 0^\circ$ ),  
 (b) polarisation rectiligne ( $\theta = 45^\circ$ ),  
 (c) polarisation circulaire droite ( $\theta = 90^\circ$ )

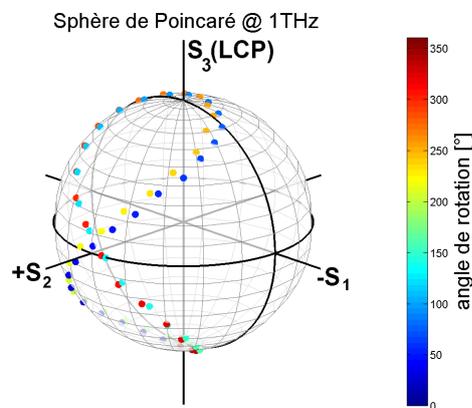


FIGURE 3.35 – Evolution de l'état de polarisation pour en fonction de l'orientation du prisme quart d'onde, représentée sur la sphère de Poincaré.

### 3.4.4 Analyse complémentaire des états de polarisation dans le domaine temporel

La mesure direct des champs électriques des deux composantes impulsionnelles nous donnent le loisir d'approfondir l'analyse classique de la polarisation.

#### 3.4.4.1 Invariance en rotation

Les aspects temporels des impulsions THz soumis à un déphasage sont difficiles à analyser, en raison de la restructuration des impulsions. Pour pouvoir mener à bien une étude temporelle, il est nécessaire de rechercher une combinaison de signaux qui soit invariante par déphasage. On remarque que la différence des deux composantes satisfait à cette condition :

$$E_{\parallel} - E_{\perp} = E_0 (e^{i\phi_s} - e^{i\phi_p}) \cos(2\theta) = 2t \sin(\Delta\phi) e^{-i(\phi_s + \phi_p)/2} \cos(2\theta). \quad (3.45)$$

La phase de cette quantité est bien invariante lors de la rotation du prisme quart d'onde. Cette combinaison correspond à ce que l'on mesurerait en ajoutant derrière le prisme quart d'onde un polariseur linéaire **croisé** par rapport à la polarisation rectiligne d'entrée.

La figure 3.36a montre l'évolution de cette combinaison en fonction de l'orientation du prisme quart d'onde : on dénote l'absence de déformation de sa structure temporelle, et la figure 3.36b) présente la variation sinusoidale du maximum d'amplitude (à  $\tau=5$  ps) de ce signal différence.

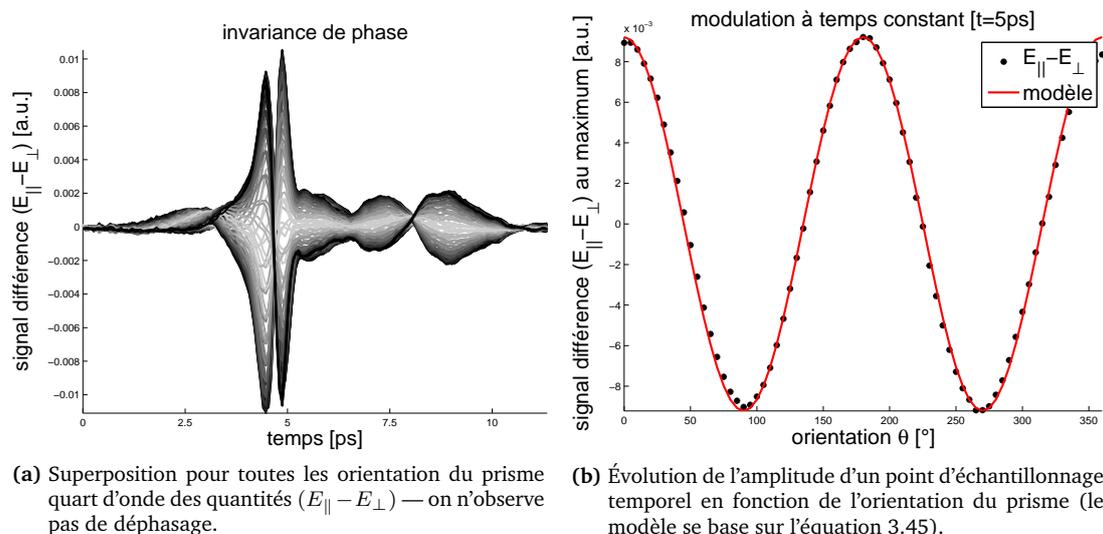


FIGURE 3.36 – Quantité insensible au déphasage pour la rotation du prisme quart d'onde achromatique.

Les extremums sont atteint lorsque l'on se trouve en présence d'états circulaires, et les annulations lorsque il s'agit d'états rectilignes. Cela correspond au résultat classique d'optique selon lequel l'ajout d'une phase à une composante du champ lui permet de passer au travers un polariseur linéaire croisé par rapport à l'état rectiligne initial.

#### 3.4.4.2 Signal analytique à partir des états circulaires

Dans le cas d'un état de polarisation circulaire, les deux composantes sont en quadrature. A partir de l'équation 3.40, on montre que l'on peut obtenir les signaux analytiques  $E_{\perp}^a$  et  $E_{\parallel}^a$  complexes en

combinant les deux composantes d'une polarisation circulaire :

$$E_{\perp}^a = -E_{\parallel}^a = E_{\perp} - iE_{\parallel}. \quad (3.46)$$

La figure 3.37 nous montre que le module de ces quantités est bien en effet égal, hormis quelques variations dues à la différence de réponse des deux antennes de détection.

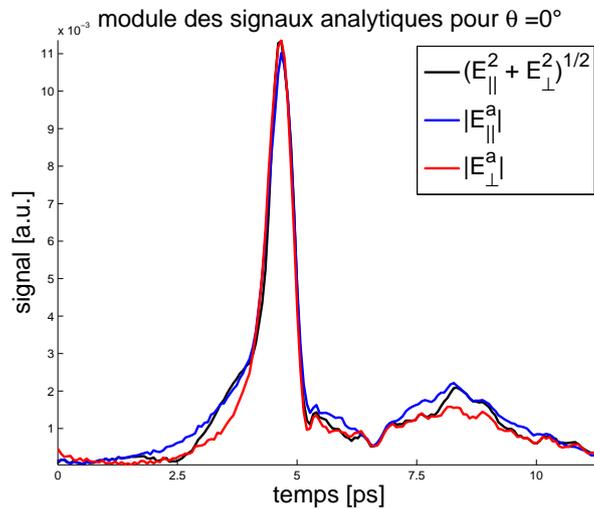


FIGURE 3.37 – Module du signal analytique obtenu à partir de la somme des deux composantes réelles.

### 3.4.4.3 Détermination de la CEP dans le domaine temporel

Déterminer la phase porteuse-enveloppe d'une impulsion sans avoir recours à un traitement fréquentiel est utile dans la mesure où la phase linéaire est très difficile à corriger entre deux mesures. Nous avons pour cela présenté dans le chapitre 2 la fonction  $\Theta$ , pour nous permettre d'estimer la CEP d'une impulsion en utilisant la notion de phase temporelle.

Appliquée à l'impulsion de référence, la fonction  $\Theta$  indique que celle-ci présente une CEP de  $\Phi_s^{\text{CEP}} = -42^\circ$ , tandis que son application aux états particuliers (figure 3.38) nous permet de déterminer leur CEP absolues et relatives, présentées dans le tableau 3.4.

TABLE 3.4 – Phases porteuse-enveloppe absolues des deux composantes pour différents états de polarisation.

mesure	$\Phi_s^{\text{CEP}}$	$\Phi_p^{\text{CEP}} [^\circ]$	$\Delta_s^p \Phi^{\text{CEP}} [^\circ]$	$\Delta_{\text{ref}}^s \Phi^{\text{CEP}} [^\circ]$	$\Delta_{\text{ref}}^p \Phi^{\text{CEP}} [^\circ]$
rectiligne s	115	121	6	73	79
rectiligne p	207	212	5	165	170
circulaire gauche	123	211	88	81	169
circulaire droit	206	121	-85	164	79

Les valeurs déterminées de cette manière correspondent aux valeurs attendues  $\phi_s = 78^\circ$  et  $\phi_s = 168^\circ$  à  $5^\circ$  près, ce qui est mieux que la détermination que nous pouvons obtenir depuis le domaine fréquentiel. En effet, l'analyse dans le domaine spectral souffre soit de la phase linéaire lorsqu'il s'agit de déterminer la CEP absolue, soit de la différence de réponse des détecteurs, qui introduit malgré tout une distorsion dans la phase spectrale relative.

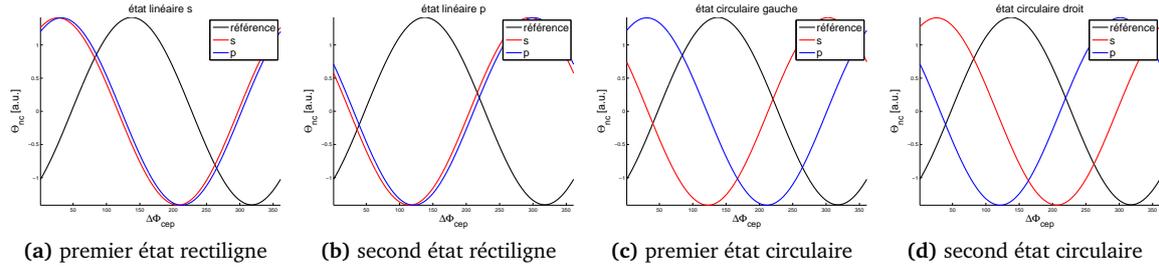


FIGURE 3.38 – Fonctions  $\Theta$  pour les états de polarisation remarquables.

### 3.4.4.4 Vitesses angulaire des impulsions polarisés circulairement

Les impulsions polarisées circulairement ne sont pas tout à fait circulaires au sens propre ; elles forment en réalité une spirale autour de l'origine (voir figure 3.32b). La mesure résolue en temps des deux composantes du champ électrique nous permet de proposer des caractérisations supplémentaires d'une impulsion polarisée circulairement, à savoir celles reliées à la vitesse angulaire ou à la direction moyenne du champ électrique.

Si nous nous intéressons à des polarisations circulaires, les champs forment des spirales pour lesquelles nous pouvons en chaque point calculer la vitesse angulaire :

$$\Omega = \frac{(\mathbf{E} \times \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}) \cdot \mathbf{e}_z}{|\mathbf{E}|^2} = \frac{E_{\perp} \frac{\partial E_{\parallel}}{\partial t} - E_{\parallel} \frac{\partial E_{\perp}}{\partial t}}{E_{\perp}^2 + E_{\parallel}^2} \quad (3.47)$$

La vitesse angulaire étant mal définie en l'absence de signal et donc très sensible au bruit, on peut mieux rendre compte du caractère rotatoire de l'onde grâce à la vitesse tangentielle :

$$v_t = |\mathbf{E}| \Omega, \quad (3.48)$$

que nous présentons figure 3.39 pour les états de polarisation rectiligne, circulaire gauche et circulaire droit.

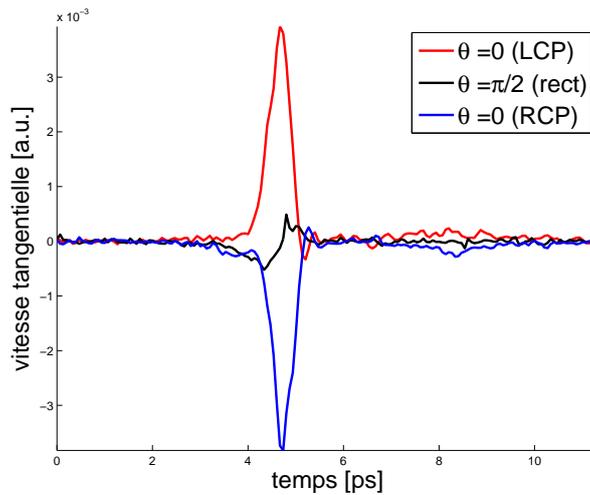


FIGURE 3.39 – Vitesse tangentielle de quelques états de polarisation (rectiligne, circulaire gauche et circulaire droit).

Le résultat s'accorde bien avec l'intuition : l'état rectiligne présente une vitesse tangentielle pratiquement nulle, tandis que l'état de polarisation circulaire gauche a une vitesse tangentielle positive (rotation dans le sens direct) opposée de celle de l'état de polarisation circulaire droit.

### 3.5 Discussion et conclusion du chapitre

Le système de génération et de détection résolue en temps et en polarisation que nous avons mis en place permet de profiter de certaines particularités techniques des impulsions THz et d'étudier d'un point de vue temporel les phénomènes touchant à la polarisation. Il nous a servi en particulier à développer des éléments polarisants adaptés au caractère large-bande des impulsions térahertz.

Le polariseur linéaire basé sur une pile de Brewster en silicium montre d'excellentes performances, avec des pertes par insertion très modérées ( $\simeq 1\%$ ) et un taux d'extinction élevé ( $> 99\%$  en amplitude). Bien qu'il soit constitué de wafers, qui sont le siège de réflexions internes multiples qui occasionnent généralement des interférences spectrales, les conditions de réflexion sont telles que les impulsions ne sont pas déformées et exemptes d'échos perceptibles. Par ailleurs, un tel polariseur linéaire présente l'avantage d'être intrinsèquement achromatique et simple à mettre en œuvre.

Le prisme quart d'onde permet de générer des états de polarisation circulaires, quelle que soit l'étendue fréquentielle de l'onde considérée. Cette propriété est utile dans le domaine infrarouge et sert de base au fonctionnement des ellipsomètres large bande : ces derniers nécessitent de pouvoir générer les quatre états qui correspondent aux paramètres de Stokes afin de pouvoir déterminer la phase des ondes en utilisant des détecteurs quadratiques.

Toutefois dans le domaine THz, nous sommes capables de détecter le champ électrique et dès lors de déterminer directement la phase de chacune de ses composantes. L'ellipsométrie ne nécessite en conséquence plus l'utilisation de déphaseurs, et l'illumination alternée de l'échantillon par deux états de polarisation rectilignes suffit pour se pouvoir livrer à des analyses basées sur les matrices de Müller [Dong et al., 2009, Yandong et al., 2010].

Dans l'analyse de la biréfringence des matériaux, l'utilisation d'un prisme quart d'onde ne présente pas d'avantages, car les phases linéaires accumulées lors de la propagation dans les matériaux sont différentes et décalent temporellement les composantes, en rompant l'état de polarisation circulaire incident.

En présence d'un matériau doté de dichroïsme circulaire par contre, les états circulaires resteraient synchrones, facilitant l'analyse des signaux. De plus, les matériaux qui présentent du dichroïsme permettent d'obtenir un spectre de zéros (les fréquences auxquelles s'annule le dichroïsme circulaire sont bien déterminées), constituant une signature unique avantageuse. Cependant, le dichroïsme circulaire est un effet faible, surtout présent dans les liquides (qui absorbent fortement les rayonnements térahertz), quand dans les solides il est généralement accompagné de dichroïsme linéaire.

Aussi, le prisme quart d'onde sera mieux adapté lorsqu'il s'agira d'utiliser des rayonnements continus et des détecteurs quadratiques tandis que l'on cherchera à couvrir une vaste gamme de longueurs d'ondes.

En optique linéaire, la cohérence temporelle que nous avons cherchée à conserver avec le prisme quart d'onde n'intervient pas dans la réponse des matériaux : l'effet d'un champ composé étant la somme des effets de ses éléments pris séparément. Nous n'avons pas réussi à débusquer dans ce régime de phénomènes pour lesquels la cohérence de l'onde présente une importance.

Justement, l'une des pistes les plus intéressantes pourrait se trouver dans le domaine de l'optique non-linéaire, où la direction instantanée du champ peut jouer un rôle important, comme lorsqu'il s'agit d'ioniser des atomes de Rydberg [Bensky et al., 1997] ou d'effectuer le contrôle cohérent des ondes de spin grâce à la composante magnétique du champ d'impulsions très intenses.

Malgré tout, la modification de la phase porteuse-enveloppe de l'onde que permet le prisme quart d'onde peut s'avérer utile en pratique, car elle permet de forger l'impulsion, pour éventuellement rendre des mesures plus sensibles en certains points d'échantillonnages temporels : la capacité de rester statique dans le temps de l'onde rend cette déformation particulièrement utile.

En ce qui concerne l'imagerie, les très lentes vitesses d'acquisition ne nous ont pas permis de combiner dispositif d'imagerie et ellipsomètre.

Nous avons trouvé une autre utilité au prisme quart d'onde : celle de servir de support à l'imagerie en réflexion interne totale, dont il sera en grande partie question dans le chapitre 4.



## Chapitre 4

# Imagerie térahertz et application à biologie

"As I was moving ahead occasionally I saw brief glimpses of beauty"

- Jonas Mekas

*Les propriétés optiques typiques des matériaux dans le domaine térahertz, la bonne résolution spatiale des ondes ainsi que la résolution temporelle du champ électrique offrent de nombreux arguments pour l'imagerie dans le domaine térahertz.*

*Nous verrons quels sont les modalités d'imagerie que l'on peut concevoir, quels sont leurs avantages et leurs limites et nous étudierons comment il est possible d'extraire de l'information à partir des données récoltées, en gardant à l'esprit que les images produites sont tridimensionnelles.*

*Nous montrerons jusqu'à quel point les techniques développées peuvent servir l'intérêt de l'imagerie en biologie, et que l'eau, constituant principal des objets biologiques, constitue une difficulté mais apporte une source de contraste unique à l'imagerie térahertz. Pour contourner ces obstacles, nous appliquerons les connaissances acquises au fil des chapitres précédents pour présenter une nouvelle technique d'imagerie, l'imagerie térahertz en réflexion interne totale, qui permet de s'affranchir des limitations imposées par la forte absorption des liquides polaires en utilisant les ondes évanescentes comme sonde de la matière.*

## Sommaire

---

<b>4.1 Intérêt de l'imagerie dans le domaine térahertz</b>	<b>117</b>
<b>4.2 Imagerie à l'aide d'impulsions THz résolues en temps</b>	<b>119</b>
4.2.1 Imagerie en transmission	120
4.2.2 Imagerie en réflexion	122
4.2.3 Extraction des contrastes	127
4.2.4 Traitement et filtrage	129
<b>4.3 Les limitations des procédés d'imagerie</b>	<b>130</b>
4.3.1 Critère de Rayleigh	130
4.3.2 Temps d'acquisition	131
<b>4.4 L'imagerie térahertz en biologie</b>	<b>131</b>
4.4.1 L'absorption de l'eau	132
4.4.2 Contraste ionique	134
4.4.3 Comparaison de la sensibilité aux ions en solution des différentes modalités d'imagerie	135
<b>4.5 Imagerie par réflexion interne totale</b>	<b>136</b>
4.5.1 Configuration pour la réflexion interne totale	137
4.5.2 Onde évanescente	137
4.5.3 Focalisation du faisceau térahertz à travers une interface	139
4.5.4 Mobilité de l'échantillon et pastille de silicium	141
4.5.5 Étude d'un objet de phase : la croix gravée sur de l'aluminium	142
4.5.6 Étude d'un objet menant à une réflexion interne atténuée : une goutte d'eau	143
4.5.7 Spectroscopie par réflexion totale atténuée	144
4.5.8 Concentrations en ions dans les cellules et échanges avec le milieu extérieur	147
4.5.9 Nerf sciatique de grenouille	147
4.5.10 Imagerie de couche cellulaire	149
4.5.11 Résolution longitudinale du procédé d'imagerie par réflexion interne totale	149
4.5.12 Conclusions et perspectives	153

---

## 4.1 Intérêt de l'imagerie dans le domaine térahertz

L'imagerie est le domaine d'application privilégié de l'optique, le tout premier instrument optique étant l'œil humain. L'élaboration d'instruments plus performants, des microscopes aux télescopes, a constitué un élément-clé pour de grandes avancées en sciences, de la découverte des bactéries à celle des exo-planètes. Cela nous amène donc à nous demander comment il est possible d'utiliser les impulsions térahertz pour former des images et comment nous pouvons exploiter leurs propriétés.

Comme nous l'avons vu au cours des chapitres précédents, le domaine térahertz se caractérise par des longueurs d'ondes sub-millimétriques ( $\simeq 300 \mu\text{m}$ ), ce qui permet l'étude d'objets dans des résolutions comparable à celle de l'œil humain. En effet, le pouvoir de résolution d'un système d'imagerie à 1THz ouvert à  $f/1$  ( $\lambda = 300 \mu\text{m}$ ) est comparable au pouvoir de résolution de l'œil humain pour un objet placé à bout de bras<sup>1</sup>.

Au-delà de ce pouvoir de résolution convenable, il est possible de tirer parti des propriétés optiques particulières des matériaux dans le domaine térahertz (bien souvent différentes de celles que l'on peut avoir en optique), tout en limitant en partie les problèmes de diffusion dans les matériaux. Bien des matériaux usuels comme les polymères (plastiques, peintures), les fibres (vêtements, bois), les roches ou les semi-conducteurs sont relativement transparents aux rayonnements térahertz. Cela donne la possibilité d'utiliser ces derniers pour sonder la matière là où l'optique montre ses limites.

Partant de ce constat, certaines équipes de scientifiques ont utilisées les faisceaux THz pour étudier les couches internes des œuvres d'art [Fukunaga et al., 2007], dissocier les palimpsestes [Labaune et al., 2010], faire de la dendrochronologie [Jackson et al., 2009], de l'inspection industrielle d'appareils électroniques (principalement composés de plastiques et de semi-conducteurs, figure 4.1a) [Mittleman et al., 1997b]. En parallèle, d'autres se sont intéressés à leur emploi dans le domaine de la sécurité pour analyser le contenu des enveloppes (pour la détection de drogues [Kawase et al., 2003] ou la lecture des correspondances) ou de contenus (littéralement) explosifs [Federici et al., 2005, Ikeda et al., 2005]. L'application la plus proche de notre quotidien est encore l'utilisation de scanners corporels THz, présents dans certains aéroports, qui laissent voir à travers les vêtements pour y révéler des objets cachés, sans avoir recours à des rayonnements ionisants comme les rayons X.

Un autre intérêt de l'imagerie dans le domaine térahertz est que l'on peut profiter de l'aspect résolu en temps des impulsions : on est alors en mesure de conjuguer le pouvoir de **résolution latérale** (perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau) au pouvoir de **résolution longitudinale** lié à l'aspect temporel. Cela permet d'étudier les objets en profondeur : c'est la tomographie par **temps de vol**.

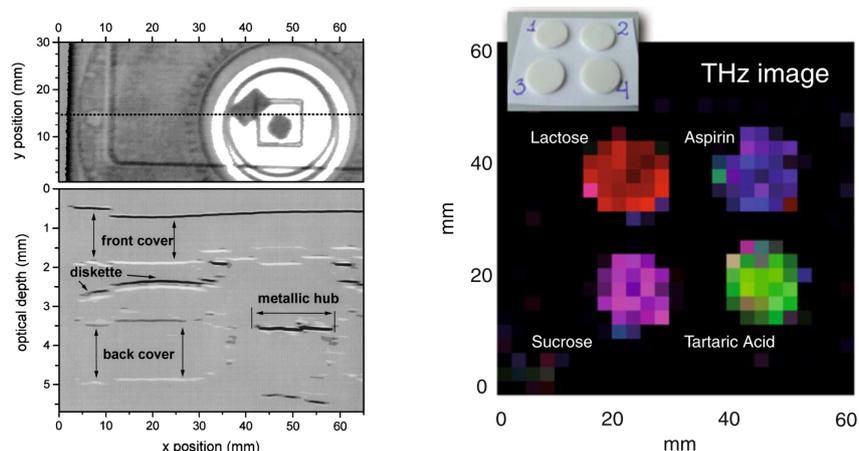
C'est à ce niveau que les qualités des procédés d'imagerie optique se combinent à celles des radars. En optique, on n'acquiert d'informations tridimensionnelles qu'au moyen de procédés interférométriques (quand il s'agit d'obtenir des informations temporelles *e.g.* par microscopie à contraste de phase ou tomographie par cohérence optique (OCT, pour *Optical Coherence Tomography*)) ou par des techniques d'optique focales ou non-linéaire (quand il s'agit de discriminer longitudinalement). D'un autre côté, les radars permettent d'exploiter les informations de temps de vol, mais sont limités par leurs résolutions spatiales trop faibles, que l'on ne peut améliorer que grâce à l'emploi de techniques comme le radar à ouverture synthétique (SAR, pour *Synthetic Aperture Radar*, voir [Bandyopadhyay et al., 2006] pour un

---

1. Si l'on considère que la résolution angulaire de l'œil est de 1 minute d'arc ( $300 \mu\text{rad}$ ) et qu'un bras mesure 1 m.

application au THz du SAR).

Pour effectuer une étude tomographique des objets au moyen de faisceaux THz, plusieurs méthodes se distinguent. La première, que nous étudierons plus en détail par la suite, se base sur une mesure résolue en temps d'impulsions THz, ce qui permet d'analyser les temps de vol des impulsions (figure 4.1a) mais également d'extraire des informations spectroscopiques (figure 4.1b).



(a) Tomographie d'une disquette par TDS.  
 – (haut) image optique de la disquette  
 – (bas) B-scan selon la coupe représentée sur l'image du haut (extrait de [Mittleman et al., 1997b]).

(b) Discrimination fréquentielle de médicaments à partir de mesure en TDS (extrait de [Walther et al., 2010b]).

FIGURE 4.1 – Imagerie THz par TDS.

Toutefois, ces méthodes peuvent se révéler lentes et certains préfèrent utiliser des faisceaux incohérents et/ou continus, généralement plus puissants. Ils compensent la perte d'information temporelle par de plus grandes vitesses d'acquisition ce qui permet de faire des mesures selon une grande diversité d'angles ; les données acquises permettent de faire de la tomographie axiale calculée par ordinateur (CT-Scan ou CAT-Scan pour *Computed Axial Tomography*) à l'aide des sinogrammes ainsi acquis qui sont ensuite traités par transformée de Radon pour reconstituer l'objet en 3D (figure 4.2, [Recur et al., 2011]). Ces techniques s'inspirent beaucoup de celles utilisées par les scanners médicaux employant des rayons X.

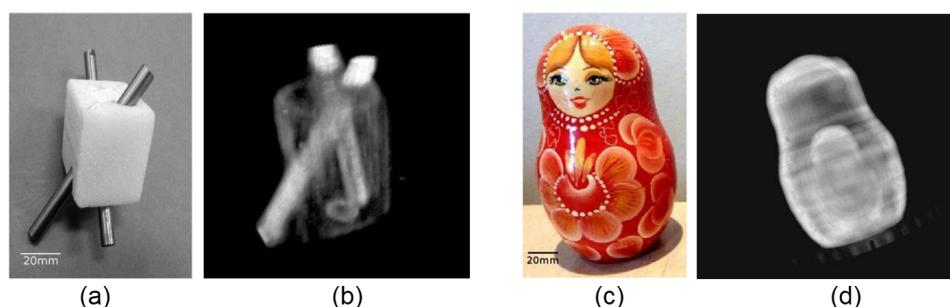


FIGURE 4.2 – Tomographie par CT-scan d'un fantôme et de deux poupées russes emboîtées.  
 (a,c) images optiques — (b,d) reconstructions 3D THz par CT-scan (adapté de [Recur et al., 2011]).

En plus de ces deux grandes classes, de nombreuses autres approches ont été proposées à des fins d'imagerie dans le domaine THz :

- L'utilisation de **lentilles de Fresnel** [Wang et Zhang, 2003] permet d'imager plusieurs plans (perpendiculaire à l'axe de propagation) à la fois en utilisant la propriété qu'ont ces lentilles de faire dépendre la longueur focale de la fréquence.
- Des **lentilles liquides à focale variable** à base d'huiles ont été présentées dans le domaine THz, [Scherger et al., 2011].
- L'imagerie **mono-pixel par diffraction** [Lee et Ahn, 2010] consiste à utiliser une cale triangulaire pour déplacer la figure de diffraction d'un objet. Cela permet d'imager les objets sans avoir à bouger le détecteur ou l'objet à l'étude.
- La technique de **compressive sensing** se base sur la théorie développée par Candès [Candès et Wakin, 2008] et permet d'obtenir des images en utilisant un nombre restreint de mesures, ce qui diminue le temps d'acquisition. Elle a été transposée au domaine THz par Xu [Xu et CAO, 2010].
- Les techniques de TDS permettent d'avoir accès au spectre des impulsions, et des procédures de **déconvolution** ou de débruitage par **ondelettes** ont été discutées et appliquées par Ferguson [Ferguson et Abbott, 2001].
- Des techniques de **CT-Scan locale utilisant des QCL** et des procédures de segmentation couplées à de l'analyse par ondelette ont été montrées par Yin [Yin et al., 2010].
- Un scanner couleur rapide utilisant une **conversion électro-optique spatio-temporelle** (cristal de ZnTe oblique) permet de faire l'image d'objets défilants sur un tapis en temps réel [Schirmer et al., 2010].
- L'imagerie en **champs proche** permet d'améliorer la résolution latérale lors de l'étude d'objets avec des ondes THz [Masson et Gallot, 2006c, Lecaque, 2006], récemment démontrée pour des applications en temps réel [Blanchard et al., 2011].
- L'imagerie résolue **en temps et en polarisation** a été expérimentée par van der Valk [Van der Valk, 2005, Wang et al., 2010].

## 4.2 Imagerie à l'aide d'impulsions THz résolues en temps

Nous allons passer en revue quelques configurations expérimentales d'imagerie à l'aide d'impulsions THz résolues temporellement, chacune offrant des informations plus ou moins adaptées aux caractéristiques des objets étudiés. Le but commun de toutes ces techniques d'imagerie est d'établir des contrastes en s'appuyant sur les inhomogénéités spatiales des objets qui introduisent des différences d'épaisseur optique, d'absorption ou des chocs d'indices qui donnent lieu à des réflexions partielles.

Pour former l'image d'un objet, il est nécessaire de le parcourir **spatialement selon deux directions** (que l'on dénommera  $x$ - $y$ ) avec un faisceau THz focalisé ; deux dimensions de l'ensemble des données collectées correspondent à des informations spatiales. Comme nous sommes de plus capables d'échantillonner le champ électrique pour chaque point ( $x$ - $y$ ), une dimension supplémentaire, **le temps**, est explorée et constitue une troisième dimension pour les données collectées. Nous aurons donc à notre disposition des **informations tridimensionnelles**<sup>2</sup>.

---

2. Cela est aussi vrai pour les mesures de CT-Scan : la troisième dimension n'est plus le temps mais la diversité d'angles sous lesquels est scruté l'objet.

À partir de ces mesures, il nous faudra procéder à une **réduction de dimensionnalité** du jeu de données 3D, pour en extraire les informations utiles les présenter sous forme d'images tout en faisant ressortir les contrastes intéressants (figure 4.3).

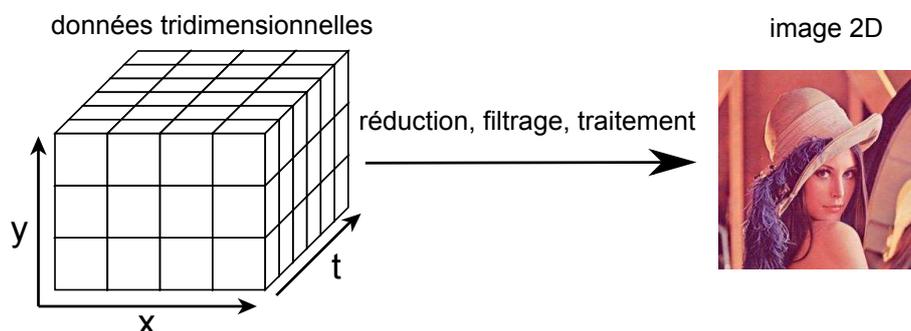


FIGURE 4.3 – L'ensemble des données évolue selon trois dimensions : deux dimensions spatiales et une dimension temporelle.

### 4.2.1 Imagerie en transmission

L'imagerie en transmission est la configuration la plus simple à mettre en œuvre. Il s'agit de faire traverser un objet par un faisceau THz focalisé. L'objet est déplacé spatialement et pour chaque position le champ électrique est enregistré, résolu temporellement (figure 4.4).

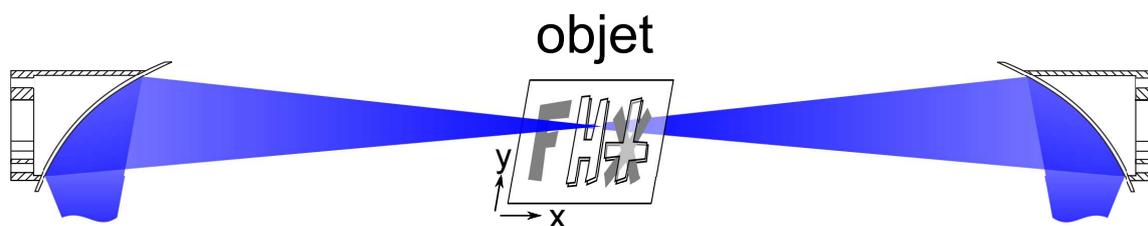


FIGURE 4.4 – Schéma de principe de l'imagerie en transmission.

Nous avons produit quelques images d'objets en transmission sur le montage de spectroscopie. Le premier objet est une feuille de papier sur laquelle trois motifs sont inscrits : le premier motif est la lettre *F* dessinée au crayon, le second motif la lettre *H* constitué de ruban adhésif et le troisième motif la lettre *X* dessinée au crayon sur laquelle une croix en ruban adhésif est superposée (image 4.5a). Le second objet présenté est un rasoir caché dans une enveloppe de papier opaque (image 4.5b).

Afin d'obtenir des images sur une grande étendue avec une bonne résolution spatiale tout en conservant un temps d'acquisition acceptable, nous n'avons pas mesuré le champ électrique complet, mais seulement pour quelques positions spécifiques de la ligne à retard. Les images sont en fausses couleurs<sup>3</sup> qui reproduisent l'amplitude au point considéré.

La résolution des images à temps constant étant limitée en raison du poids plus important des basses fréquences dans le spectre des impulsions, nous avons placé un diaphragme d'ouverture variable  $\varnothing$  au point focal du système, juste devant l'objet, pour éliminer la contribution de ces grandes longueurs d'ondes (elles sont fortement dispersées par des effets de diffraction). Nous avons vérifié que nous opérons bien un filtrage spatial passe-bas en faisant différentes mesures temporelles pour différentes ouvertures du diaphragme : complètement ouvert, fermé au maximum ( $\varnothing = 1.4 \text{ mm}$ ) et fermé de manière

3. Il s'agit de l'espace des couleurs *jet* de *Matlab*, qui associe faibles valeurs au bleu et les hautes valeurs au rouge ; les valeurs intermédiaires suivent un dégradé proche de celui d'un arc-en-ciel.

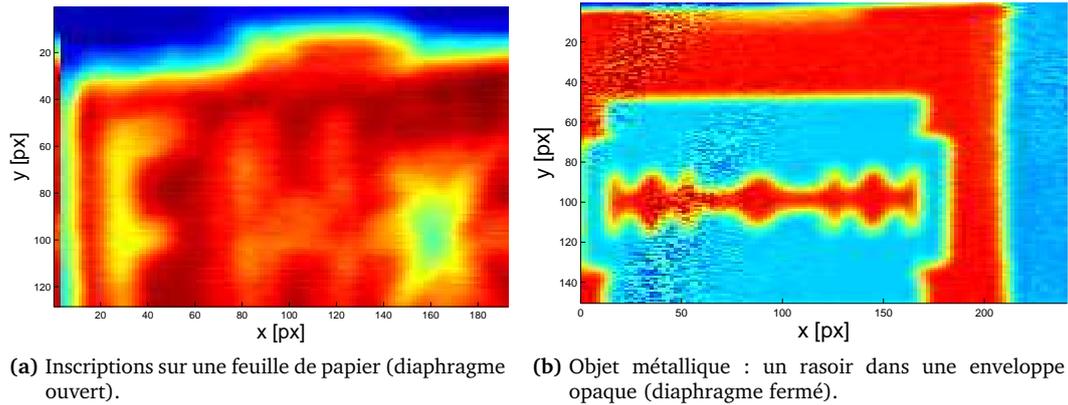


FIGURE 4.5 – Images THz en transmission (coupe à temps constant).

à diminuer l'amplitude au maximum de l'impulsion d'un facteur 2 (voir figure 4.6a). L'analyse fréquentielle nous montre que ce procédé permet bien la diminution du poids relatif des basses fréquences (figure 4.6b).

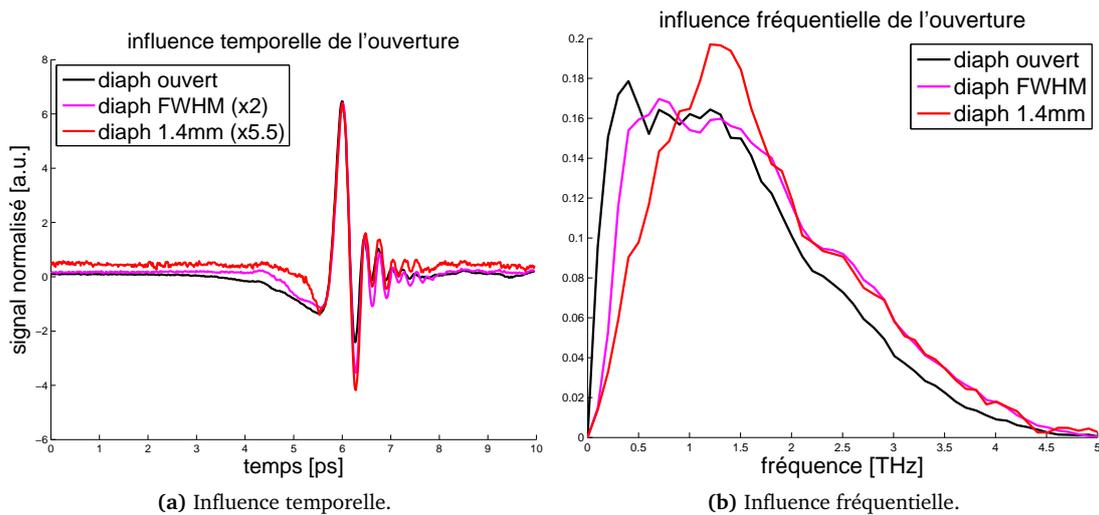


FIGURE 4.6 – Influence de la fermeture du diaphragme au point focal du système : diminution du poids relatif des basses fréquences.

On observe que pour le même objet, l'image 4.7a acquise après fermeture du diaphragme présente une résolution spatiale bien meilleure que sur l'image 4.5a.

En changeant la position de la ligne à retard (image 4.7b), il est possible de distinguer les zones soumises à une diminution du signal (le crayon, constitué de carbone, est réfléchissant) et celles soumises à un décalage dans le temps (le ruban adhésif a une épaisseur optique plus importante).

Cette technique permet de différencier des épaisseurs optiques globales, mais **non de déterminer l'ordre de traversée des matériaux**. Elle est par ailleurs peu utile lorsque les matériaux sont fortement absorbants.

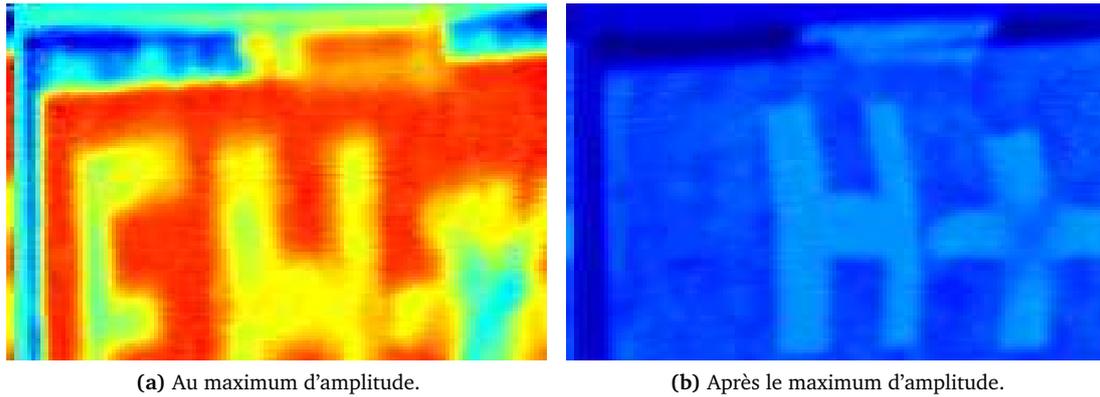


FIGURE 4.7 – Imagerie en transmission à temps constant, effectuée en plaçant un diaphragme fermé devant l’objet.

### 4.2.2 Imagerie en réflexion

Une autre manière de former des images à l’aide d’un faisceau THz est d’utiliser une configuration en réflexion, qui présente pour intérêt d’être moins sensible à l’absorption et plus sensible aux chocs d’indices. Il s’agit d’éclairer l’objet à l’étude par un faisceau THz focalisé en plaçant un objet au point focal, soit seul, soit placé sur un miroir, et de mesurer le champ réfléchi. On peut pour cela procéder en incidence normale ou bien en incidence oblique.

Nous avons mis cette technique en œuvre en plaçant nos objets sur des miroirs selon une configuration d’incidence oblique (figure 4.8).

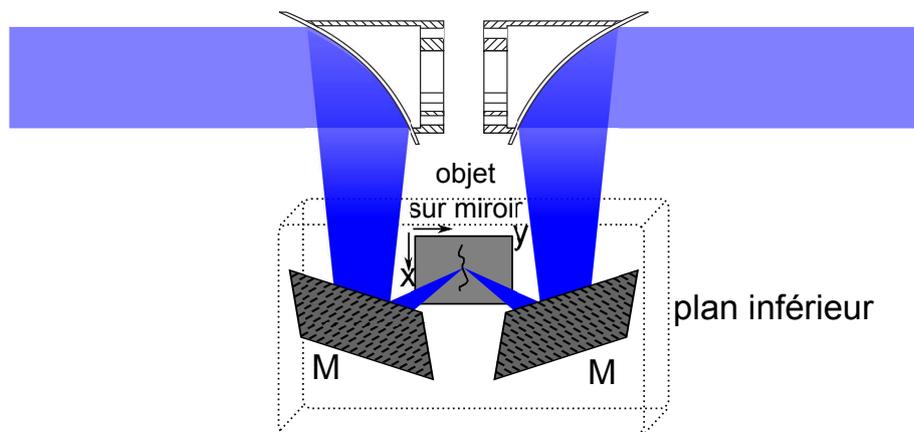


FIGURE 4.8 – Schéma de du montage d’imagerie en réflexion mis en œuvre. Les miroirs M renvoient le faisceau focalisé dans un autre plan où se situe l’échantillon.

Chaque interface au sein de l’objet donne lieu à des réflexions partielles et l’absorption des matériaux diminue l’amplitude du signal. Les décalages temporels (temps de vol) entre les impulsions réfléchies permettent de connaître la profondeur à laquelle s’est produite la réflexion, et donc la structure interne du matériau.

Il s’agit d’une des techniques les plus communément employées, et c’est une méthode de choix lorsqu’il s’agit d’étudier des objets biologiques : il n’est pas besoin en effet de traverser le matériau pour l’imager. Cela nécessite souvent une connaissance préalable de l’objet et un travail approfondi pour arriver à extraire les informations utiles des signaux.

Nous avons notamment mis en œuvre cette technique pour imagier un cheveu noir et épais de  $120\ \mu\text{m}$ . Nous pouvons clairement le distinguer sur les images de la figure 4.9, lesquelles représentent l'objet à différentes fréquences. On observe également une l'amélioration de la résolution avec la montée en fréquence, à mettre en rapport avec la dépendance du critère de Rayleigh en longueur d'onde.

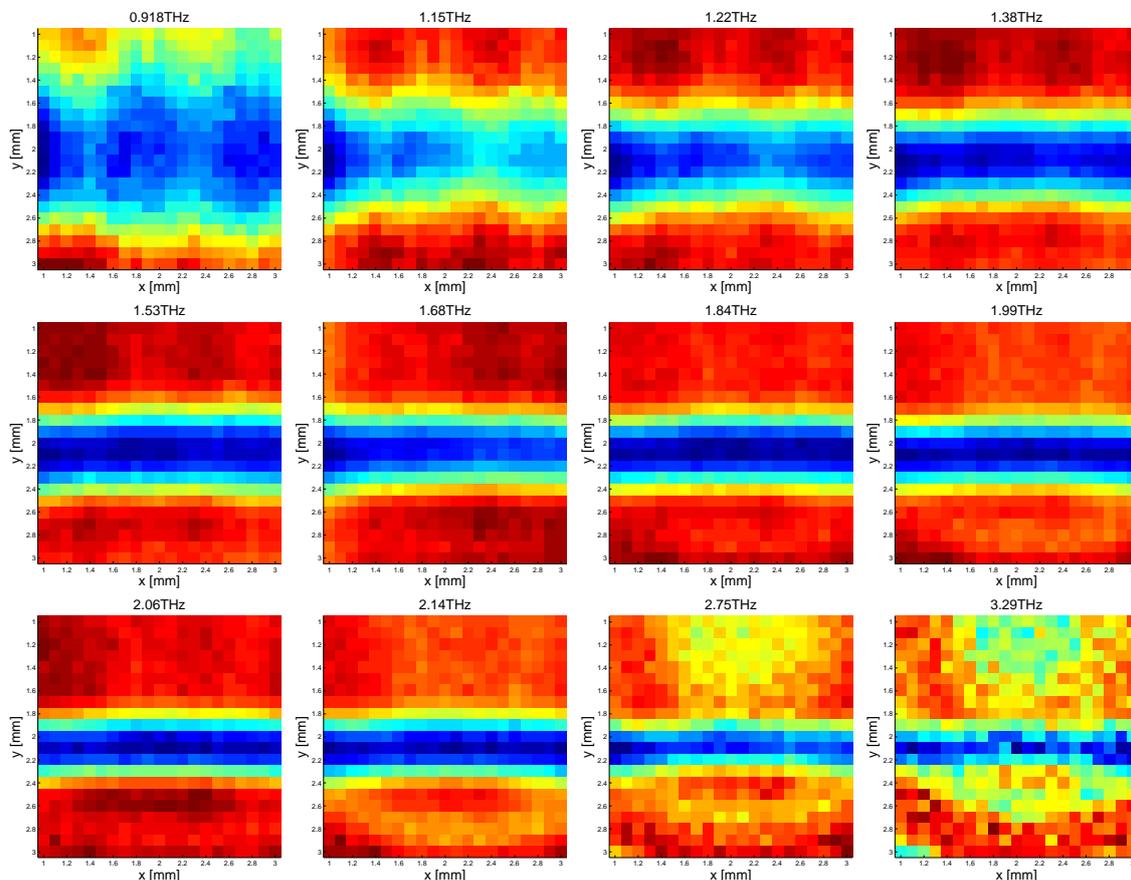


FIGURE 4.9 – Image d'un cheveu à différentes fréquences, allant de 0.9 THz à 3.3 THz ( $300\ \mu\text{m}$  -  $90\ \mu\text{m}$ ).

D'un point de vue fréquentiel, le cheveu semble absorber préférentiellement les hautes fréquences (figure 4.10), mais une analyse plus fine est risquée car on se situe en limite de diffraction, ce qui est à même de fausser les conclusions que nous pourrions être amené à tirer. Nous avons essayé avec un cheveu blanc, mais il n'a pas été possible de le distinguer sur les images. Nous ne pouvons donc pas déterminer si cela est en rapport avec son absence de pigmentation ou de sa finesse extrême ( $40\ \mu\text{m}$ ).

### Discrimination des échos

Pour illustrer une possibilité de l'imagerie en réflexion, nous avons imagé une feuille sur laquelle est dessiné au crayon de papier un quadrillage, recouverte elle-même par une autre feuille (voir schéma 4.11)

Les champs électriques mesurés présentent un ou deux pics principaux, le premier dû à la réflexion sur le miroir, et le second dû à la réflexion sur le crayon de papier (d'autres pics plus faibles sont dus aux réflexions partielles sur les couches de papier). Les réflexions sur les zones marquées au crayon précédant temporellement celles ayant lieu sur le miroir, on est en mesure de les distinguer en les **fenêtrant temporellement**.

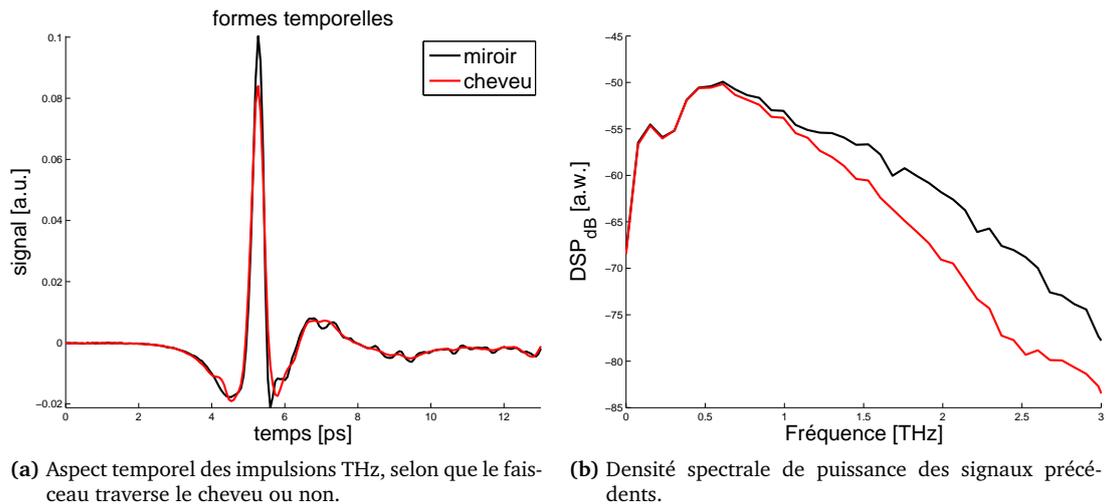


FIGURE 4.10 – Structure des signaux lors de l'imagerie d'un cheveu.

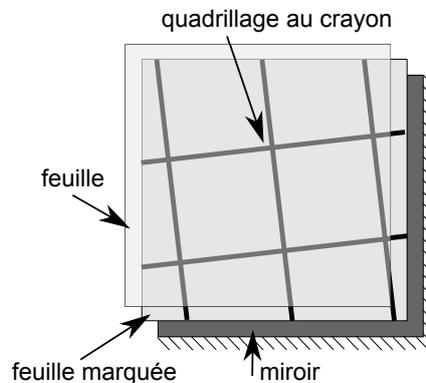


FIGURE 4.11 – Schéma du quadrillage étudié.

L'image 4.12a nous montre la puissance récoltée en chaque point de l'image, dont les variations ne font apparaître aucune structure évidente (toute l'énergie est réfléchi, que ce soit par le graphite ou le miroir), tandis que la seconde image permet de distinguer le quadrillage au crayon de papier en isolant temporellement.

#### 4.2.2.1 Imagerie par optical switching

Une des limites pratiques de l'imagerie THz est liée au fait que le détecteur est ponctuel (mono-pixel) et qu'il est souvent délicat de le déplacer en raison des contraintes d'alignement avec le laser femtoseconde : on ne peut imaginer que point à point, contrairement aux matrices CCD classiques utilisées en optique. C'est la raison pour laquelle dans les configurations présentées précédemment, c'est l'objet qui est mobile plutôt que le détecteur.

Une technique initialement proposée par Kitoh [Kitoh et al., 2001] permet de contourner ce problème. Son principe consiste à illuminer un semi-conducteur avec un laser dont les photons ont une énergie supérieure au *bandgap* du semi-conducteur. Ces derniers vont donc générer localement des photoporteurs et le silicium devient localement conducteur de ce nuage d'électrons libres, ce qui augmente le pouvoir de réflexion du silicium pour un faisceau THz incident en cet endroit. Cela produit schématiquement

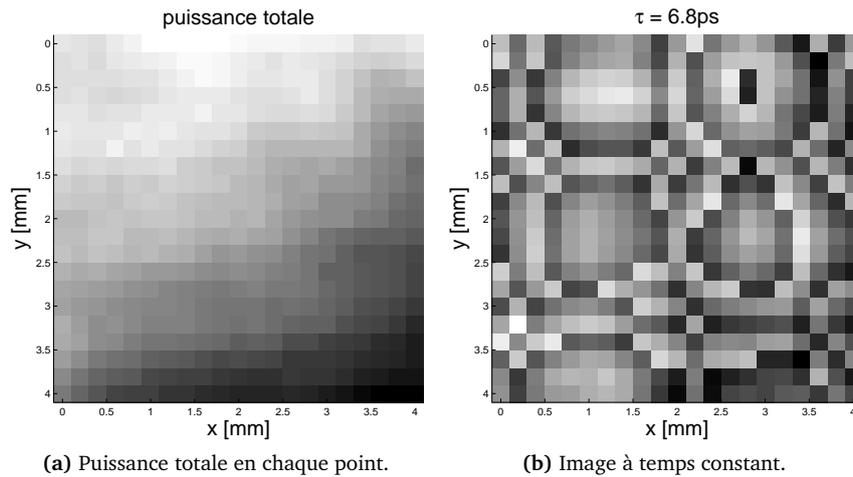


FIGURE 4.12 – Reconnaissance d'un motif caché par fenêtrage temporel.

ment<sup>4</sup> une atténuation locale du faisceau THz et diminue l'énergie globale des impulsions détectée par le détecteur, qui intègre spatialement le champ électrique. Les mesures obtenues nous donnent ainsi en négatif la contribution du point illuminé par rapport au champ électrique total.

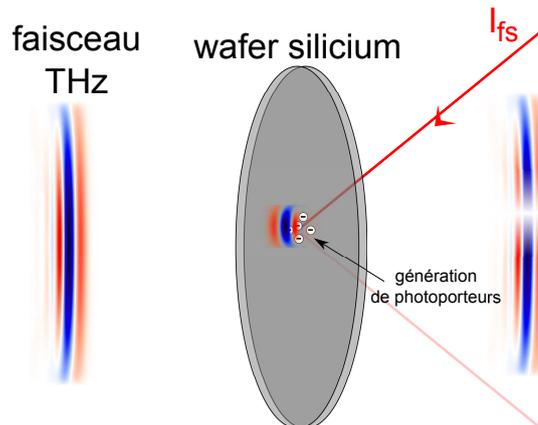


FIGURE 4.13 – Schéma de principe de l'optical switching.

Pour les expériences, nous avons utilisé une fuite du laser femtoseconde (d'une puissance moyenne  $P \simeq 100 \text{ mW}$ ) et nous avons illuminé un wafer en silicium placé au foyer du faisceau. Après s'être assuré que le temps de vie des photo-porteurs était bien supérieur au taux de répétition du laser ( $\tau_{pp} \gg 1/f_{\text{rep}} = 13 \text{ ns}$ ), nous avons considéré que nous pouvions négliger les effets transitoires. Afin d'accroître le rapport signal à bruit, nous modulons le faisceau laser (au lieu du faisceau THz) ; le signal récolté est donc acquis en fond noir : une diminution de l'amplitude THz globale se traduit par une augmentation du signal.

Avec l'aide précieuse d'Alexander Fisher, étudiant de St. Lawrence University (Michigan, É-U) en stage au laboratoire durant l'été 2009, nous avons pu imager le profil du faisceau THz au foyer du faisceau. Pour cela, nous nous sommes placés au maximum du signal et nous avons balayé le wafer avec le laser (la mesure complète nécessite une demi-heure).

On observe sur la figure 4.14 que le faisceau a bien une allure globalement gaussienne, quoique légè-

4. On ne cherchera pas ici à modéliser les effets de diffraction.

rement asymétrique. Nous attribuons l'origine de cette asymétrie à des défauts d'alignement des lentilles en silicium, des miroirs paraboliques hors-axes et à l'asymétrie dans le diagramme d'émission de l'antenne.

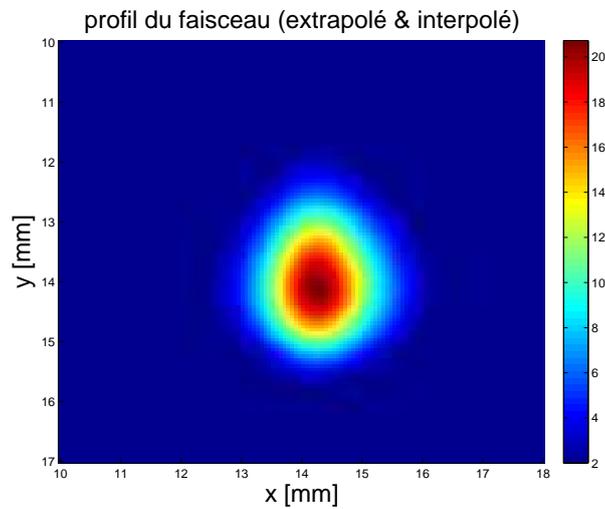


FIGURE 4.14 – Profil du faisceau au waist et au maximum d'amplitude obtenu par optical switching.

L'aspect temporels des impulsions pour certains points particuliers (le point central et des points situé au demi-maximum (FWHM) dans chaque direction) est présenté figure 4.15.

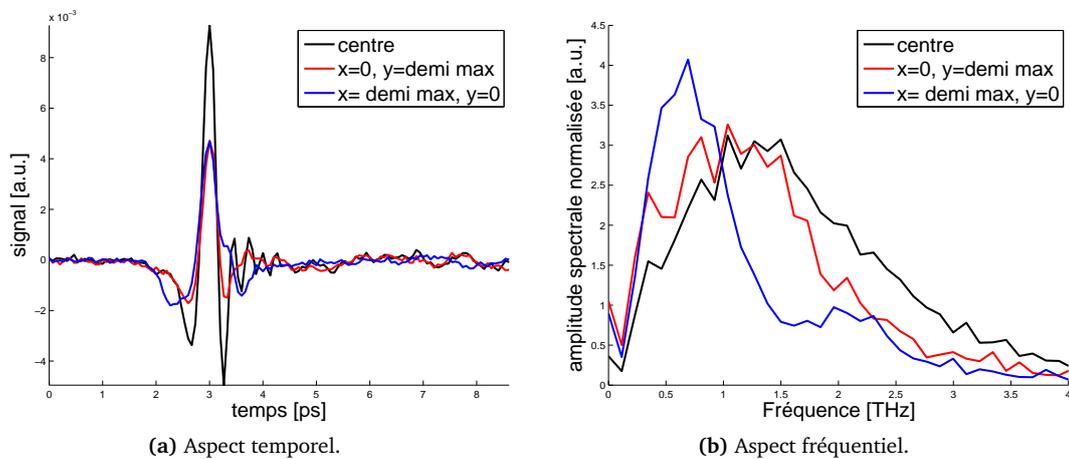


FIGURE 4.15 – Contribution au signal de différents point du faisceau, obtenus par optical switch.

Une analyse fréquentielle fait apparaître que la répartition fréquentielle de l'énergie en chaque point n'est pas la même (figure 4.15b). Comme on peut s'y attendre, les basses fréquences sont majoritairement présentes sur les flancs (elles sont moins focalisées), tandis que le centre concentre plus de composantes à haute fréquences, cela en raison de la dépendance en longueur d'onde de la taille de la tache focale.

Nous souhaitions pouvoir imager un faisceau collimaté ; bien que la résolution spatiale attendue semble pouvoir être meilleure que dans le cas de l'imagerie par transmission classique [Chen et al., 2000], les puissances relatives du laser et du faisceau THz ne nous ont pas permis d'obtenir un rapport

signal à bruit suffisant pour effectuer des mesures exploitables.

Poursuivant sur une idée similaire, nous avons envisagé de former une image intermédiaire d'un objet sur le wafer pour la sonder avec le laser, dont la vitesse de balayage à l'aide d'un scanner galvanométrique aurait été bien meilleure que la vitesse de déplacement d'un objet, mais les mêmes considérations de rapport signal à bruit nous ont empêchés de mettre en œuvre ce procédé d'imagerie.

#### 4.2.2.2 Imagerie en champs proche

À proximité d'un objet d'étude illuminé, le champ électromagnétique possède des composantes évanescentes qui ne peuvent se propager et dont l'influence est sensible sur des distances de l'ordre de la longueur d'onde. L'information qu'elles contiennent est perdue à grande distance. Or, la résolution spatiale des ondes THz est parfois insuffisante, lorsque l'on étudie des objets de petite dimension comme une majorité des objets biologiques. Pour contourner les limites imposées par les phénomènes de diffraction, les techniques d'imagerie de champ proche ont été appliquées au domaine THz.

Pour recueillir ces ondes évanescentes, une source quasi-ponctuelle peut être amenée très près de l'objet ; il est également possible d'utiliser une ouverture de taille très inférieure à la longueur d'onde que l'on placera à proximité de l'échantillon afin qu'elle agisse comme une source secondaire [Masson et al., 2006, Podzorov, 2009].

Une autre approche consiste à placer le détecteur cette fois au plus proche de l'échantillon pour qu'il puisse détecter les composantes évanescentes. L'échantillon peut être déposé sur un substrat qui est lui-même le cristal électro-optique utilisé pour la détection temporelle [Wang et al., 2009] ; on peut également utiliser des détecteurs taillés en pointe, faisant office de sonde.

L'utilisation des techniques de champ proche permet d'obtenir des résolutions de l'ordre de  $\lambda/20$  et peuvent également servir à faire des analyse de micro-spectroscopie, non sans que qu'il faille émettre quelques réserves [Knab et al., 2010]. Récemment, de dispositifs d'imagerie de champ proche en temps réel ont été présentés [Blanchard et al., 2011].

Notre équipe a utilisé cette technique pour des expériences passées et nous y reviendrons sur quelques résultats dans la section 4.4.

#### 4.2.3 Extraction des contrastes

Les données acquises au moyen des différentes méthodes présentées parcourent généralement trois dimensions, ce qui ne permet pas une visualisation directe par l'opérateur. Il faut donc entreprendre une réduction du jeu de données ; il y a une infinité de façon de procéder, mais seules certains projections présentent un réel intérêt. Nous allons présenter celles qui sont les plus évidentes à appréhender, pour que nous puissions les employer ultérieurement dans l'analyse de nos données sans qu'il y ait d'ambiguïté.

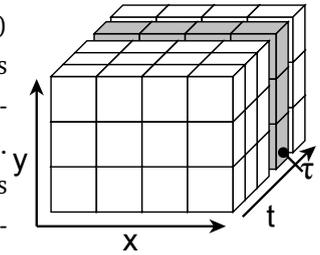
Nous noterons le jeu de données  $s(x, y, t)$  et l'image obtenue après réduction  $I(x_i, y_i)$  ( $x_i$  et  $y_i$  ne sont pas nécessairement des coordonnées spatiales).

##### 4.2.3.1 Analyse temporelle

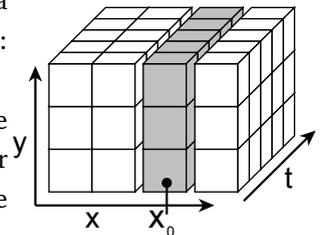
L'analyse temporelle consiste à s'intéresser principalement au temps de vol des impulsions, qui sont atténuées et décalées de manière différente selon la position du faisceau sur l'objet. C'est l'analyse la plus

directe que l'on puisse mener, car il s'agit d'opérer des coupes franches sur le jeu de données.

**Coupe à temps constant** La coupe à temps constant consiste à extraire du jeu de données les mesures effectuées pour un temps (délai de ligne à retard) constant :  $I_\tau(x_i, y_i) = s(x, y, t = \tau)$  Les images que l'on obtient sont identiques à celles que l'on acquerrait en déplaçant spatialement l'objet d'étude sans jamais déplacer la ligne à retard. Les images 4.5 et 4.7 illustrent ce procédé. Cette projection présente un intérêt quand les objets à l'étude sont stratifiés et constitués de matériaux d'épaisseur optique variable ; en cela, elle se rapproche dans l'esprit de l'imagerie interférométrique en optique.

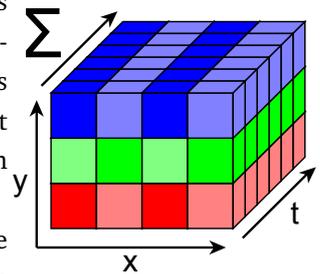


**B-scan ou coupe selon une dimension spatiale** Le B-scan consiste à extraire une coupe selon une dimension spatiale en fonction du temps :  $I_{x_0}(x_i, y_i) = s(x = x_0, y, t)$ . L'image que l'on obtient s'apparente dans l'esprit aux images d'échographie prénatale. L'image 4.1a illustre cette projection, qui permet de mettre en valeur les chocs d'indice à l'intérieur des matériaux par le biais des réflexions interne et des décalages.



**Puissance** Il est possible pour chaque pixel (x,y) de calculer la puissance du champs électrique :  $I_P(x_i, y_i) = \int s^2(x, y, t)dt$ . C'est le type d'image qui se rapproche le plus de celles obtenues dans le visible. Elle permet de connaître les zones d'absorption forte sans se soucier des déphasages dus aux inhomogénéités d'indice. Toutefois, parce que les basses fréquences ont un poids plus important, la résolution des images ainsi obtenues est souvent limitée (cela est également vrai pour les coupes à temps constant ; ces dernières permettent en revanche de séparer les zones d'épaisseur optique différente).

On peut également s'intéresser à la puissance intégrée sur un certain intervalle  $I_{P,t_0,t_f}(x_i, y_i) = \int_{t_0}^{t_f} s^2(x, y, t)dt$ , ce qui présente l'avantage par rapport à la coupe à temps constant de conserver l'information des couches précédentes dans le cas d'un matériau stratifié.



**Amplitude au maximum, temps de vol et temps moyen** Lorsque les objets ne sont pas plans mais que l'on cherche tout de même à agréger l'information temporelle, on peut s'intéresser à l'amplitude maximale de chaque point, à son temps d'arrivé (temps de vol) ou au temps moyen de l'impulsion. Pour chaque pixel (x,y), il s'agit de déterminer l'amplitude maximale du champs électrique correspondant ( $I_{\max}(x_i, y_i) = \max_t[s(x, y, t)]$ ), le temps associé ( $t_{\max}$  tel que  $s(x, y, t_{\max}) = I_{\max}$ ) ou le temps moyen.

Cette technique est propre aux techniques utilisant des impulsions térahertz, et permet souvent d'obtenir des informations qui sont un compromis entre la projection à temps constant (les décalages temporels liés aux variations d'indice ont un impact moindre) et le B-scan (l'information temporelle est visible).

Cette méthode de contraste peut être discutable, dans la mesure où toutes les fréquences ne sont pas exactement en phase. Cependant, comme nous l'avons vu dans une partie précédente, les fréquences ont tendance à participer également au maximum d'intensité malgré la dérive en fréquence intrinsèque, quand toutefois les matériaux ne sont pas trop dispersifs.

#### 4.2.3.2 Analyse spectrale

On peut également utiliser un jeu de données sur lequel on a effectué une transformée de Fourier selon la dimension temporelle<sup>5</sup> :  $\tilde{S}(x, y, \nu) = \mathcal{F}_t(s)(x, y, \nu)$ . On passe donc de l'espace direct à l'espace réciproque, ce qui nous permet de s'affranchir des limites que posent les décalages temporels. Cela s'apparente à de l'imagerie hyperspectrale.

**Amplitude spectrale** En prenant une tranche spectrale :  $I_{\nu_0}(x_i, y_i) = |\tilde{S}(x, y, \nu = \nu_0)|$ , on a accès à ce qu'il se passe pour une fréquence donnée.

On peut donc analyser la réponse spectrale de l'échantillon (ce qui correspondrait aux canaux RGB d'une image dans le visible). Les images de la figure 4.9 sont issues de ce procédé.

Pour aider à la visualisation, on peut également combiner les informations à différentes fréquences pour ensuite les retransposer dans le domaine visible pour rendre plus facile l'analyse à l'œil (comme sur l'image 4.1b).

**Phase spectrale** Plutôt que de prendre l'amplitude spectrale (qui est liée à la puissance des signaux), on peut s'intéresser à la phase spectrale, liée quant à elle aux caractéristiques temporelles des signaux :  $I_{\phi, \nu_0}(x_i, y_i) = \arg[\tilde{S}(x, y, \nu = \nu_0)]$ . Pour obtenir des informations réellement exploitables, il est souvent nécessaire de calculer la phase spectrale relative à un point de référence de l'image :  $I_{\Delta\phi, \nu_0}(x_i, y_i) = \arg[\tilde{S}(x, y, \nu = \nu_0)\tilde{S}_{\text{ref}}^*(x, y, \nu = \nu_0)]$ . Nous étudierons particulièrement la phase spectrale lorsque nous aborderons l'imagerie par réflexion interne totale.

#### 4.2.4 Traitement et filtrage

Il est souvent nécessaire d'effectuer certaines opérations de traitement du signal dans le domaine fréquentiel pour tirer parti au mieux des informations dans le domaine temporel (*e.g.* correction de phase linéaire) ou inversement (*e.g.* fenêtrage temporel des échos).

Par ailleurs, les méthodes qui viennent d'être présentées ne mettent en œuvre que des projections simples, sans traitement préalable des signaux. La vitesse d'acquisition se fait généralement au détriment du rapport signal à bruit ; les techniques de traitement du signal peuvent cependant améliorer les performances d'un système d'imagerie THz.

Certains auteurs ont mis en œuvre des techniques de filtrage fréquentiel ou de débruitage par ondelettes [Ferguson et Abbott, 2001], tandis que d'autres se sont intéressés à des techniques de déconvolution temporelle, afin de mieux localiser temporellement les impulsions térahertz. Il peut également être intéressant de procéder à des calculs d'autocorrélation.

Pour améliorer la résolution spatiale des images obtenues, des techniques de déconvolution spatiale par filtrage de Wiener ont été employées [Lecaque, 2006, Ding et al., 2010].

Pour finir, mentionnons qu'à des fins de diagnostique il peut être intéressant d'utiliser des algorithmes de partitionnement, comme la décomposition en valeurs singulières (SVD pour *Singular Value Decomposition*, [Brun et al., 2010]), l'algorithme *K-means* ([Yin, 2008]), ou le *Statistical Region Merging* (SMR). Ces techniques permettent de mettre en évidence des structures (amas) dans les jeux de données, ce qui est particulièrement utile lorsque celles-ci sont multidimensionnelles. Les objets que nous avons étudiés étant relativement simples, l'œil de l'opérateur suffisait à effectuer ces regroupements.

---

5. Dans le cas des CT-scan, on effectuerait une transformée de Radon selon la dimension angulaire.

Nous avons à l'occasion employé certaines de ces techniques, mais aucune d'elles n'a fait preuve d'un avantage décisif dans l'analyse des images présentés dans ce manuscrit, qui sont plus souvent limitées par la définition spatiale que par le bruit lui-même.

### 4.3 Les limitations des procédés d'imagerie

Avant d'aborder les techniques d'imagerie THz en biologie, il est nécessaire de détailler quelque peu les obstacles que nous serons susceptibles de rencontrer, afin de mieux les éviter, voire de les outrepasser. Nous nous intéresserons principalement à trois limites : celle de la résolution, celle de l'absorption de l'eau et les considérations portant sur le temps d'acquisition.

#### 4.3.1 Critère de Rayleigh

La résolution latérale est un critère très important pour tout procédé d'imagerie. Elle est reliée à la distance minimale pour laquelle on peut séparer visuellement deux objets ponctuels (figure 4.17a). Si l'on note  $f$  la distance focale de l'élément focalisant,  $D$  le diamètre du faisceau (ou le diamètre de l'élément focalisant),  $n$  l'indice du milieu et  $NA = D/(nf)$  l'ouverture numérique du système, le critère de Rayleigh (pour une focalisation dans l'air) s'exprime :

$$R = 1.22 \frac{\lambda}{NA}. \quad (4.1)$$

Ce critère est tout à fait adapté au cadre de l'imagerie térahertz, car cette dernière est bien souvent **limitée par diffraction** (figure 4.16), les aberrations géométriques étant souvent négligeables puisque l'on n'imagine qu'un seul point (et non un plan) et que les éléments optiques peuvent être considérés comme parfaits à l'échelle de la longueur d'onde. On peut avoir un aperçu de l'influence des différents paramètres d'un système d'imagerie sur la résolution sur les images de la figure 4.9),

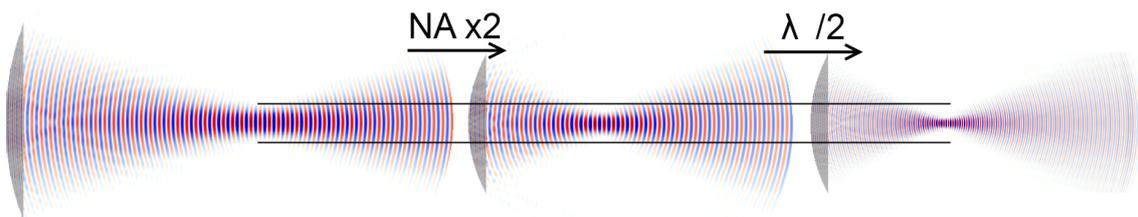


FIGURE 4.16 – Simulations illustrant la diminution de l'étendue de la tache focale par augmentation de l'ouverture numérique ou de la diminution de la longueur d'onde.

Dans le cas de la focalisation d'une impulsion, l'aspect large-bande est à l'origine d'une structure complexe au point focal (figure 4.17b ; noter l'évolution de la phase de l'impulsion).

Des travaux de notre équipe ont permis de déterminer la taille des faisceaux sur nos montages expérimentaux, en s'affranchissant des effets de la diffraction qui rendent délicat cette mesure, et de mettre en évidence que la taille du faisceau dépendait de la fréquence de manière complexe [Podzorov et al., 2010]. Sur le montage de polarisation, le faisceau a un *waist* de 10 mm environ.

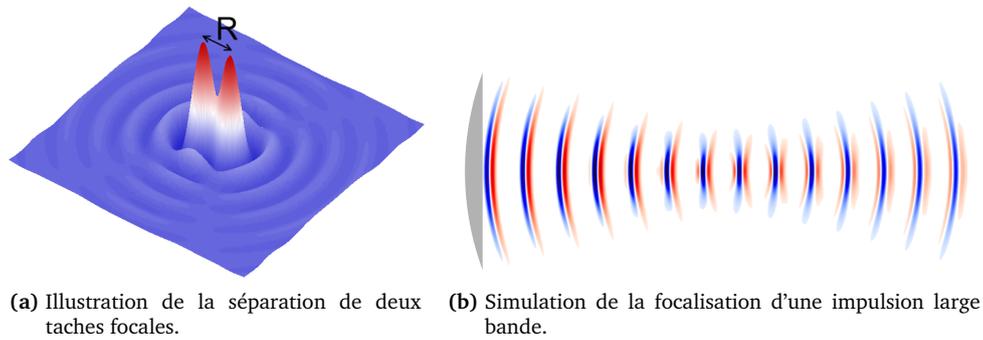


FIGURE 4.17 – Différents aspects concernant la résolution spatiale.

### 4.3.2 Temps d'acquisition

Le temps d'acquisition est également paramètre important dans l'imagerie térahertz. Dans la mesure où émetteurs et détecteurs sont ponctuels, il n'est pas possible d'acquérir une image en une seule fois. De plus, le temps de balayage temporel n'est pas négligeable. À titre d'exemple, il faut de l'ordre d'une heure pour obtenir une image de constituée 100 pixels ( $10 \times 10$ ) sur une étendue temporelle de 10 ps. Cela limite l'étude des objets au **régime statique** (e.g. mesure avant puis après stimulation chimique d'une cellule) ; on peut envisager l'étude dynamique des objets que si les mécanismes sont parfaitement réversibles.

Certaines techniques ont été développées pour réduire très fortement le temps d'acquisition de rayonnements THz pulsés. La première de ces méthodes, présentée par Jiang [Jiang et al., 1999] consiste à effectuer une détection électro-optique dans un cristal de ZnTe en faisant se superposer un faisceau-sonde femtoseconde de lecture et une image THz intermédiaire. L'utilisation d'une matrice CCD en sortie permet d'obtenir directement une image en 2D pour un délai pompe-sonde donné. Ainsi, il ne reste qu'à balayer ce délai pour obtenir une image résolue en temps. Un certain nombre de variations ont été développées (e.g. [Wang et al., 2009]).

Une seconde méthode intéressante dénommée "scanner couleur en temps réel" est utilisée notamment par Schirmer [Schirmer et al., 2010]. Elle consiste à acquérir simultanément l'information selon une dimension spatiale et la dimension temporelle en utilisant un cristal électro-optique incliné devant une matrice CCD. L'inclinaison du cristal selon une direction permet d'accéder à différents couples de délais pompe THz-sonde fs, tandis que l'autre direction permet de résoudre spatialement : chaque mesure correspond donc à un B-Scan.

Ces techniques nécessitent toutefois l'emploi de laser femtosecondes amplifiés intenses et nous n'avons pu les mettre en œuvre.

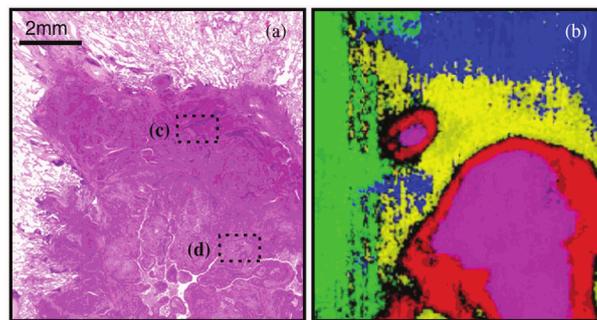
## 4.4 L'imagerie térahertz en biologie

L'imagerie biologique est une application classique des procédés d'imagerie, car elle permet de comprendre les mécanismes qui régulent le vivant. Aussi, l'imagerie térahertz trouve-t-elle naturellement son prolongement dans l'étude des objets biologiques.

La résolution que l'on atteint dans le domaine THz, typiquement de l'ordre du millimètre, s'accommode plutôt bien de la taille des échantillons biologiques complexes, comme des tissus.

Un autre intérêt majeur de l'imagerie térahertz pour la biologie est sa **sensibilité à la présence d'ions en solution**. En effet, les techniques optiques classiques sont généralement très peu sensibles à la présence d'ions, tandis que la modulation de l'absorption de l'eau dans le domaine THz en présence d'ions permet d'obtenir des contrastes intéressants [Masson et al., 2006].

Cependant, la présence d'eau dans la majorité des objets biologiques rend souvent délicat l'analyse car elle absorbe très fortement les rayonnements THz. Pour cette raison, l'étude d'objets biologiques à l'aide de rayonnement THz s'est jusqu'à présent surtout portée sur des échantillons "secs", comme les os, les cartilages [Kan et al., 2010] ou les dents, ou bien le suivi de la déshydratation des plantes. L'emploi de techniques d'imagerie par réflexion a permis l'étude de certains tissus hydratés, et certains auteurs ont montré qu'il était possible de différencier des tissus sains de tissus cancéreux (figure 4.18 [Brun et al., 2010]). Ces derniers sont sur-vascularisés, et bien que l'origine du contraste ne soit pas encore pleinement déterminée, les résultats semblent assez convaincants.



**FIGURE 4.18** – Histopathologie de cancer (extrait de [Brun et al., 2010]). À gauche une image au microscope optique. À droite une image THz par réflexion partielle sur l'échantillon en fausse couleur. Les cellules supposées cancéreuses sont dans les tons rouges.

Si la résolution spatiale est acceptable pour l'étude d'ensembles biologiques, elle reste insuffisante pour l'étude de cellules isolées dont la taille, qui avoisine la centaine de microns, est inférieure à la longueur d'onde. Pour lutter contre cette limite de résolution, les travaux passés de notre équipe se sont focalisés sur l'imagerie de champ proche, qui permet d'augmenter fortement la résolution en se plaçant à proximité de l'objet d'étude. Les techniques de champ proches sont d'une mise en œuvre relativement plus aisée que dans le domaine visible en raison des dimensions typiques mille fois plus grandes. Cependant, le rapport signal à bruit est réduit en raison de la faible fraction de signal incident détecté.

Les techniques de champs proche ont permis de mesurer la déformation d'un neurone de ver de terre sous l'action d'un stress chimique (toxine) ou d'un changement de concentration en ions du bain physiologique (figure 4.19a, [Masson et al., 2006]). D'autres expériences ont permis d'imager un embryon de drosophile à un stade de développement avancé (figure 4.19b, [Podzorov, 2009]) avec une résolution suffisante ( $< 100 \mu\text{m}$ ).

#### 4.4.1 L'absorption de l'eau

Nous avons vu dans la première partie de ce manuscrit que l'eau, sous la forme de vapeur contenue dans l'air, avait une influence non négligeable sur les impulsions THz. Cela reste vrai pour l'eau en phase liquide, qui constitue par ailleurs le constituant principal d'un grand nombre d'objets biologiques.

L'eau liquide a un coefficient d'absorption dans le domaine THz très élevé :  $\alpha_{\text{eau}}(1 \text{ THz}) \simeq 200 \text{ cm}^{-1}$ , et sa distance caractéristique d'absorption de l'eau  $L_{\text{eau}} = 2/\alpha_{\text{eau}} \simeq 100 \mu\text{m}$  est donc très courte, infé-

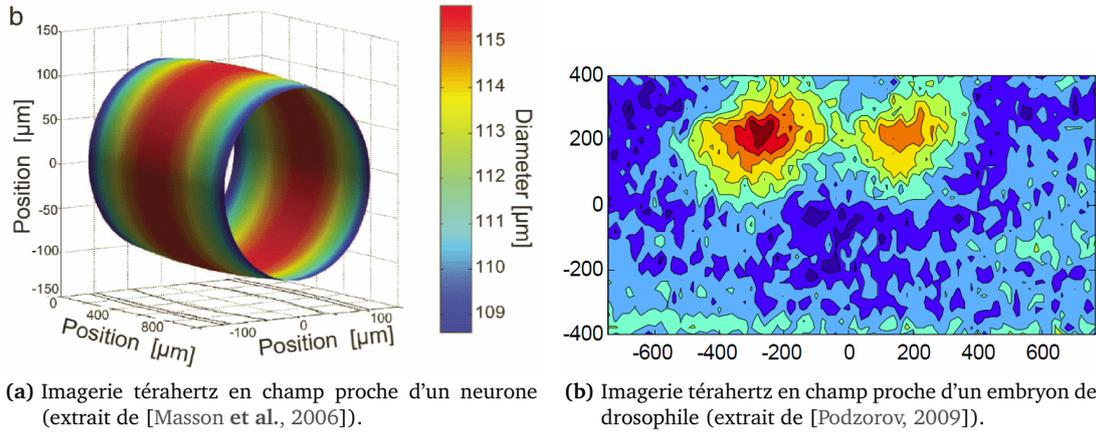


FIGURE 4.19 – Imagerie de champ proche dans le domaine THz appliquée à la biologie.

rieure aux longueurs d'ondes THz, et l'on comprend bien qu'il sera difficile d'imager par transmission dans ces circonstances.

Afin de pouvoir procéder à des simulations, nous utiliserons un modèle de Debye biexponentiel pour l'eau liquide à température ambiante :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\epsilon_s - \epsilon_1}{1 + i\omega\tau_D} + \frac{\epsilon_1 - \epsilon_{\infty}}{1 + i\omega\tau_2}, \quad (4.2)$$

dont les paramètres ont été déterminés par Ronne [Ronne, 2000] et confirmées par Podzorov [Podzorov, 2009] :

- $\epsilon_s = 77$  la constante diélectrique statique,
- $\epsilon_{\infty} = 3.3$  caractérisant la réponse instantanée du système,
- $\epsilon_1 = 5.4$  un paramètre du modèle,
- $\tau_D = 7$  ps le premier temps de relaxation,
- $\tau_2 = 0.20$  ps le temps de relaxation ;

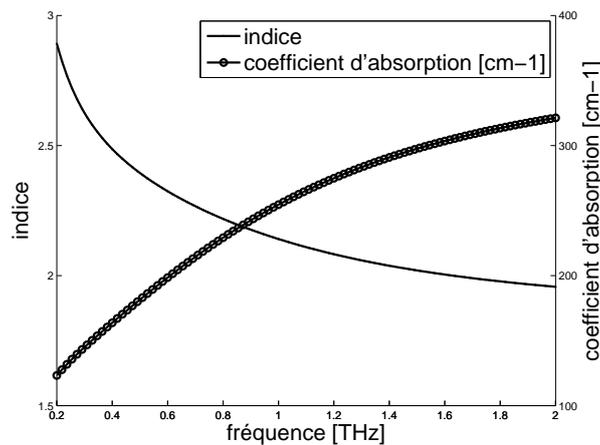


FIGURE 4.20 – Propriétés de l'eau liquide selon le modèle proposé dans [Ronne, 2000], avec  $n(\omega) - i\kappa = \sqrt{\tilde{\epsilon}(\omega)}$  et  $\alpha(\omega) = -2\omega\kappa(\omega)/c$ .

#### 4.4.2 Contraste ionique

La présence d'ions en solution modifie de façon sensible les propriétés optiques du solvant dans le domaine THz, en particulier pour des solutés courants en biologie tel que NaCl ou KCl. Cela diffère du domaine optique pour lequel les changements de concentration des solutés sont difficiles à observer. Cette particularité nous autorise à former des contrastes à partir de ces changements, comme par exemple lors des échanges ioniques entre la cellule et son environnement [Alberts, 2004].

Il a été montré par Masson et Podzorov [Masson et al., 2006, Podzorov, 2009] que la dépendance de chacun<sup>6</sup> des paramètres du modèle de Debye bi-exponentiel d'une solution en fonction de la concentration en ions est pratiquement linéaire, du moins jusqu'à une concentration de 1 M.

Cela nous amène, à proposer un modèle approché de la permittivité électrique dépendant de la concentration :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega, [\text{ion}]) = \varepsilon_{\infty}([\text{ion}]) + \frac{\varepsilon_s([\text{ion}]) - \varepsilon_1([\text{ion}])}{1 + i\omega\tau_D([\text{ion}])} + \frac{\varepsilon_1([\text{ion}]) - \varepsilon_{\infty}([\text{ion}])}{1 + i\omega\tau_2([\text{ion}])} \quad (4.3)$$

où chacun des paramètres est estimé par la méthode des moments en fonction de [ion] la concentration en ions, comme par exemple :

$$\varepsilon_{\infty}([\text{ion}]) = (1 - [\text{ion}]) \times \varepsilon_{\infty}(0) + [\text{ion}] \times \varepsilon_{\infty}([\text{ion}] = 1\text{M}). \quad (4.4)$$

La valeur des paramètres pour quelques ions importants est disponible dans le tableau 4.1.

**TABLE 4.1** – Paramètres du modèle de Debye bi-exponentiel de quelques solutés pour une concentration de 1 M (extrait de [Podzorov, 2009]).

soluté	$\varepsilon_s$	$\varepsilon_1$	$\varepsilon_D$	$\tau_D$ [ps]	$\tau_2$ [ps]
Eau pure	77	5.40	3.3	8.00	0.19
NaCl (1 M)	63	5.19	3.1	5.57	0.12
KCl (1 M)	58	5.27	2.9	4.98	0.13
CaCl <sub>2</sub> (1 M)	79	5.67	3.4	7.85	0.17

Le coefficient d'extinction molaire d'une solution  $\alpha_{\text{mol}}$  est défini<sup>7</sup> comme la différence entre le coefficient d'absorption  $\alpha_{\text{ion}}$  d'une solution avec une concentration en ions de [ion]=1 M et le coefficient d'absorption  $\alpha_{\text{eau}}$  de la solution sans ions :

$$\alpha_{\text{mol}}(\nu) = \alpha_{\text{ion}}(\nu) - \alpha_{\text{eau}}(\nu) = \frac{4\pi\nu}{c} \left( -\text{Im} \left( \sqrt{\varepsilon(\nu, [\text{ion}])} \right) + \text{Im} \left( \sqrt{\varepsilon(\nu, 0)} \right) \right). \quad (4.5)$$

Il est représenté pour certains ions sur la figure 4.21b.

Bien que ce modèle soit imparfait, il nous donne les ordres de grandeur (figures 4.21a, 4.21b), ce qui nous permettra d'évaluer les effets attendus.

6. Cela vaut pour les paramètres de permittivité comme pour les temps de relaxation.

7. Cette définition standard fait implicitement l'hypothèse que l'absorption varie linéairement en fonction de la concentration en ions. Cela diffère légèrement de la méthode des moments que nous utilisons, mais il y a coïncidence lorsque l'on considère une concentration de 1 M.

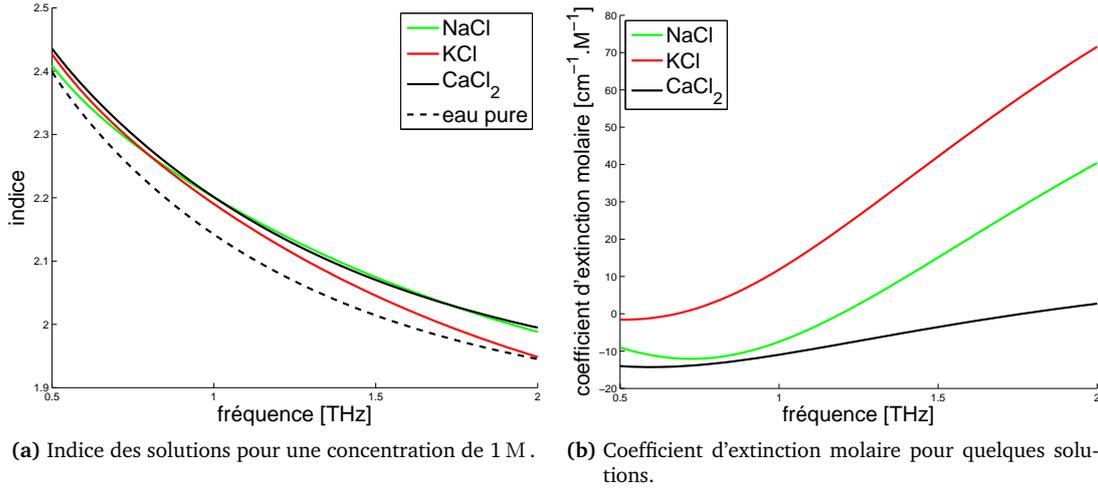


FIGURE 4.21 – Propriétés optiques de quelques solutions, calculées à partir d'un modèle de Debye.

### 4.4.3 Comparaison de la sensibilité aux ions en solution des différentes modalités d'imagerie

Le propre d'une technique d'imagerie est d'être capable de faire ressortir des contrastes, *i.e.* de pouvoir mesurer des différences sensibles entre plusieurs zones de l'image, tout en recueillant suffisamment de signal.

Nous proposons de comparer le comportement des dispositifs fonctionnant en transmission, en réflexion classique et en réflexion interne totale. Pour cela, nous considérerons les changements en amplitude et en phase qu'occasionne l'ajout d'ions en solution (passage d'un milieu d'indice  $\tilde{n}_{\text{eau}}$  à un milieu d'indice  $\tilde{n}_{\text{ions}}$ , calculé à partir du modèle présenté précédemment, pour une concentration de 100 mM de KCl).

Pour l'imagerie en transmission, le contraste  $\eta_T$  est défini par le rapport des fonctions de transfert d'une solution en l'absence et en présence d'ions sur la longueur d'absorption caractéristique de l'eau (100  $\mu\text{m}$ ).

$$\eta_T = H_{\text{air} \rightarrow \text{ions}} / H_{\text{air} \rightarrow \text{eau}} = \frac{\tilde{n}_{\text{ions}}}{\tilde{n}_{\text{eau}}} \left( \frac{1 + \tilde{n}_{\text{eau}}}{1 + \tilde{n}_{\text{ions}}} \right)^2 \exp \left( i \frac{2\pi\nu}{c} (\tilde{n}_{\text{ions}} - \tilde{n}_{\text{eau}}) L \right). \quad (4.6)$$

Pour la réflexion classique, c'est le rapport des coefficients de réflexion (expression 3.21) à angle d'incidence nul sur une interface entre l'air et l'un des deux types de solution qui donne une mesure du contraste :

$$\eta_R = r_{\text{air} \rightarrow \text{ions}}(0) / r_{\text{air} \rightarrow \text{eau}}(0) = \frac{1 - \tilde{n}_{\text{ions}}}{1 - \tilde{n}_{\text{eau}}} \frac{1 + \tilde{n}_{\text{eau}}}{1 + \tilde{n}_{\text{ions}}}, \quad (4.7)$$

qui ne varie guère en fonction de l'angle d'incidence.

Pour la réflexion interne totale, nous devons également comparer les coefficients de réflexion, à la différence cette fois que l'indice du premier milieu est celui du silicium, et que l'angle d'incidence est de  $\alpha = 42^\circ$ , pris pour la composante  $s$  :

$$\eta_{\text{TIR}} = r_s^{\text{si} \rightarrow \text{ions}}(\alpha) / r_s^{\text{si} \rightarrow \text{eau}}(\alpha). \quad (4.8)$$

Sur la figure 4.22a, nous pouvons observer que le rapport des amplitudes pour les deux solutions

( $|\eta_{\{T,r,TIR\}}|$ ) est très proche de l'unité quelque soit la modalité employée, et qu'il est par conséquent délicat d'en tirer une information quantitative, particulièrement en présence de bruit. Néanmoins, la réflexion externe semble plus sensible que les autres techniques sur cet aspect, ce qui explique son usage préférentiel dans la littérature.

En ce qui concerne la phase (figure 4.22b), la réflexion interne totale semble l'emporter en terme de sensibilité sur toute une gamme de fréquence. Cette technique semble donc tirer parti au mieux du contraste qu'offre la présence d'ions en solution.

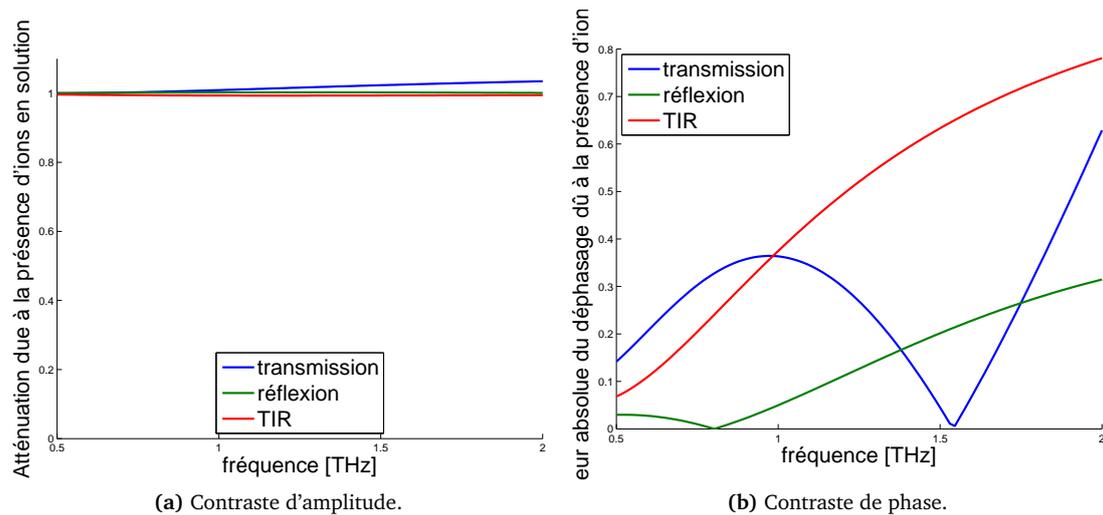


FIGURE 4.22 – Contrastes attendus pour une solution de KCl (100 mM) selon les modalités d'imagerie et variation en fonction de la fréquence.

Ces considérations s'ajoutant aux précédentes en plus d'autres aspects techniques et pratiques, nous ont conduit à développer l'imagerie par réflexion interne totale.

## 4.5 Imagerie par réflexion interne totale

Les techniques présentées précédemment offrent des possibilités intéressantes lorsqu'il s'agit d'imager des objets fins, et/ou peu absorbants, pour dépasser certaines limitations des méthodes optiques traditionnelles lorsque les matériaux en présence sont absorbants ou diffusants dans ce domaine.

Cependant, la situation devient nettement moins favorable lorsqu'il s'agit d'étudier des objets biologiques. En effet, ceux-ci sont essentiellement constitués d'eau, dont les propriétés dans le domaine térahertz sont très peu adaptées à l'imagerie comme on l'a vu. De plus, le domaine de longueur d'onde associé au térahertz limite la résolution que l'on peut attendre. C'est pour contourner cette limite que des techniques d'imagerie en champs proche ont été développées [Lecaque, 2006, Podzorov, 2009]. Une autre difficulté, plus expérimentale cette fois, vient du fait que les objets biologiques sont rarement solides, et qu'il est nécessaire d'utiliser toutes sortes de cuves, favorisant ainsi les effets d'étaux qui corrompent parfois les résultats.

Une partie de cette thèse s'est portée sur l'étude des phénomènes de réflexion interne totale grâce à l'utilisation de prismes en silicium. Il nous a semblé intéressant de réutiliser les éléments que nous avons pour les employer dans un cadre expérimental s'apparentant fortement à la TIRF (*Total Internal Reflection Fluorescence* [Axelrod, 2001]). Cette technique est répandue dans le domaine optique pour étudier les parois cellulaires dotées de marqueurs fluorescents : elle consiste à placer un échantillon au dessus d'une

interface de réflexion interne et à l'illuminer par le dessous afin que seuls fluorescent les marqueurs qui sont dans la portée de l'onde évanescente, puis de récupérer le produit de cette fluorescence. L'intérêt de cette technique réside dans le fait que la portée de l'onde évanescente est inférieure à la longueur d'onde et donc que la résolution longitudinale n'est pas soumise au critère de Rayleigh.

Il est souvent fait usage d'une fine couche de métal déposée sur l'interface de réflexion interne totale afin d'exalter les signaux par résonance plasmon. Des structurations plus élaborées permettent elles de faire intervenir des effets tunnels résonnants [de Fornel, 2001].

Dans le domaine térahertz, il n'est envisageable d'utiliser ni la fluorescence, ni la résonance plasmon, car le processus physiques mis en jeu ne se manifestent guère à ces longueurs d'ondes, mais on peut conserver deux éléments importants de la technique, qui sont une excellente résolution longitudinale et une bonne sensibilité à l'indice de réfraction de l'objet .

L'imagerie térahertz en réflexion interne totale que nous avons développée (TIRTI, pour *Total Internal Reflection Terahertz Imaging*) se base donc sur la modification des conditions de réflexion interne totale qui interviennent lorsque le milieu extérieur voit son indice de réfraction changer. L'intérêt principal dans le domaine térahertz de cette technique est de limiter l'interaction de l'onde avec le matériau à l'épaisseur de peau de l'onde évanescente.

#### 4.5.1 Configuration pour la réflexion interne totale

Pour créer une condition de réflexion interne totale, il est nécessaire que l'indice du milieu intérieur soit supérieur à celui du milieu extérieur, et que l'angle d'incidence sur la surface de réflexion soit supérieur à l'angle critique (équation 3.33). Contrairement au domaine visible, dans lequel l'eau possède un indice inférieur à celui du verre, ce qui permet d'utiliser ce dernier comme milieu intérieur pour des expériences de TIRF, l'eau possède dans le domaine THz un indice supérieur à la majorité des matériaux raisonnablement transparents, comme les plastiques.

Le silicium permet de tirer avantageusement parti de son indice élevé et de satisfaire à la première condition. En outre, le prisme conçu avec un angle à la base de  $42^\circ$  pour les besoins des expériences du chapitre 3 permet de conserver une condition de réflexion interne totale tant que l'indice du milieu extérieur est inférieur à  $n_{\text{ext}}^{\text{max}} = 2.27$  (figure 4.23). Cette valeur est inférieure à l'indice de réfraction de l'eau au delà de 0.8 THz (figure 4.20), ce qui nous permet d'utiliser ce prisme en silicium pour procéder à l'imagerie par réflexion interne totale.

Bien que la notion de réflexion interne totale ne soit pas tout à fait adaptée lorsque le milieu extérieur possède un coefficient d'extinction élevé, nous conservons la propriété importante que la réflexion s'accompagne d'un déphasage différentiel.

#### 4.5.2 Onde évanescente

Lorsqu'une réflexion interne totale a lieu, l'onde ne se propage pas dans le milieu extérieur mais laisse place à une onde non propagative appelée onde évanescente, dont le vecteur d'onde est un nombre imaginaire pur et qui peut interagir avec le milieu extérieur<sup>8</sup>. L'expression de cette décroissance est :  $\exp(-i\gamma L)$  avec

$$\gamma = \frac{2\pi\nu}{c} \sqrt{n_{\text{int}}^2 \sin^2 \alpha - n_{\text{ext}}^2}. \quad (4.9)$$

8. Des résultats intéressants ont été obtenus par Reiten quant à la réflexion totale frustrée [Reiten et al., 2001], amenant certains à s'interroger sur une possible violation macroscopique de la relativité générale [Nimtz et Stahlhofen, 1992, Nimtz, 2003].

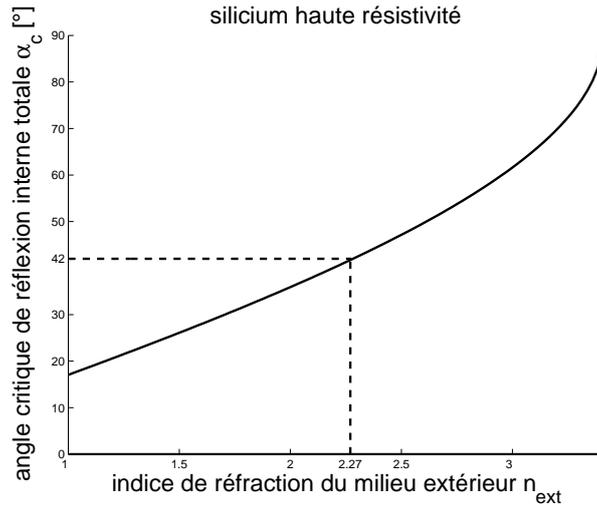


FIGURE 4.23 – Angle critique de réflexion interne totale pour le silicium en fonction du milieu extérieur.

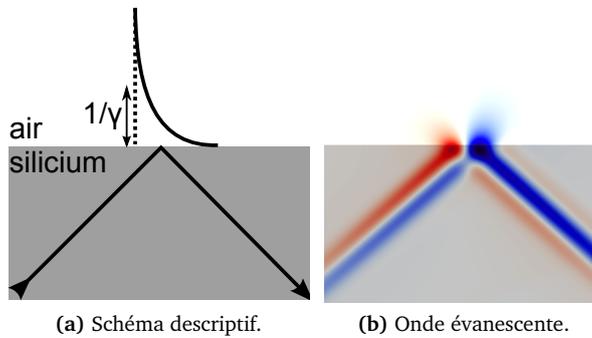


FIGURE 4.24 – Illustration de l'épaisseur de peau de l'onde évanescente pour les deux polarisations, avec (a) un schéma et (b) simulation numérique (réalisé avec le logiciel MEEP).

L'épaisseur de peau  $1/\gamma$  est définie comme la longueur à laquelle l'amplitude de l'onde évanescente a été diminuée d'un facteur  $1/e$  par rapport à l'interface. Si l'on évalue cette épaisseur de peau dans le cas d'une réflexion interne totale à une interface silicium-air vue sous un angle de  $42^\circ$  à 1 THz, elle vaut  $23 \mu\text{m}$ . Cette valeur est bien inférieure à la longueur d'absorption caractéristique de l'eau  $2/\alpha_{\text{eau}} \simeq 100 \mu\text{m}$ ; l'absorption durant l'interaction avec l'onde évanescente restera donc raisonnable.

Les expressions complètes des deux composantes de l'onde évanescente sont les suivantes [de Fornel, 2001] :

$$\mathbf{E}_s(z) = E_s^i e^{-\gamma z} \frac{2 \cos \theta}{\cos \theta + i \sqrt{\sin^2 \theta - n^2}} \mathbf{e}_y, \quad (4.10)$$

$$\mathbf{E}_p(z) = E_p^i e^{-\gamma z} \frac{2 \cos \theta}{n^2 \cos \theta + i \sqrt{\sin^2 \theta - n^2}} (-i \sqrt{\sin^2 \theta - n^2} \mathbf{e}_x + \sin \theta \mathbf{e}_z). \quad (4.11)$$

avec  $\theta$  l'angle d'incidence et  $n = n_{\text{ext}}/n_{\text{int}}$ . La figure 4.25, qui présente le résultat de simulations, permet de mieux appréhender la notion d'onde évanescente dans l'eau. On peut y voir que cette dernière a une extension à peu près similaire à celle qu'elle a dans l'air, bien que les conditions malgré tout différentes (la distance à l'angle critique est beaucoup plus faible en raison du fort indice de l'eau).

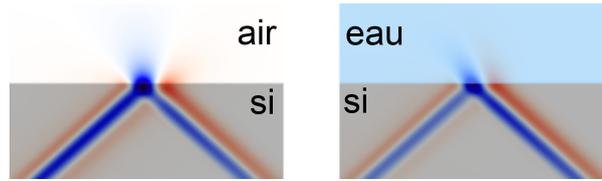


FIGURE 4.25 – Comparaison des ondes évanescentes dans l'air et dans l'eau, pour un milieu intérieur fait de silicium, sous une incidence de  $42^\circ$ , pour la polarisation  $s$  (simulations réalisées avec le logiciel *MEEP*).

### 4.5.3 Focalisation du faisceau térahertz à travers une interface

Afin d'amener le point de focalisation du faisceau au niveau de l'interface de réflexion interne totale du prisme, nous utilisons un miroir parabolique hors-axe. Ce dernier se situe en amont de l'interface d'entrée dans le prisme : le faisceau commence sa focalisation dans l'air sur une distance  $\overline{OI}$ . Le changement de milieu (air-silicium) à l'entrée du prisme introduit une modification de la distance physique du point de focalisation.

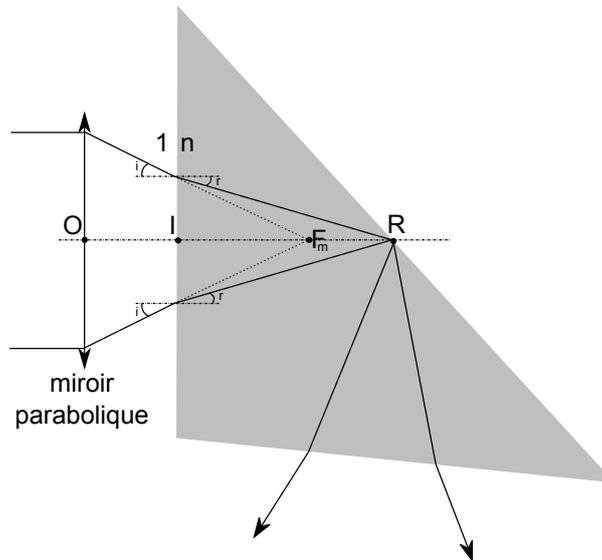


FIGURE 4.26 – Schéma descriptif de la défocalisation induite par l'interface.

En utilisant l'approximation paraxiale de l'optique géométrique ( $r \approx i/n$ ), on détermine la distance  $\overline{OI}$  à laquelle il faut placer le prisme en fonction de la distance focale  $\overline{OF}_m$  du miroir et la distance (fixe)  $\overline{IR}$  entre l'interface d'entrée et l'interface de réflexion interne totale (voir le schéma 4.26) :

$$\overline{OI} = \overline{OF}_m - \frac{\overline{IR}}{n}. \quad (4.12)$$

Nous avons vérifié en utilisant le formalisme des matrices ABCD pour les faisceaux gaussien ainsi que des simulations numériques de propagation par optique de Fourier effectuées sous *Matlab* que l'approximation utilisée nous donnait des résultats corrects tant en terme de taille de la tache focale qu'en terme de distance au foyer. La figure 4.27a présente la tache focale sur l'interface.

Si l'on quantifie le temps de propagation mis par le centre du faisceau entre le miroir parabolique et

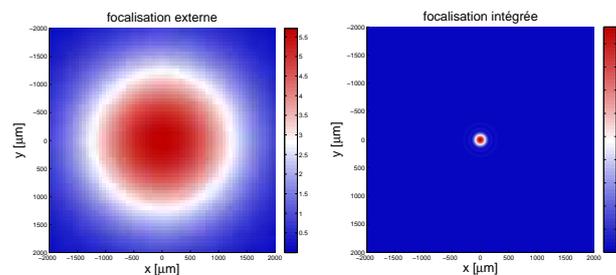
le point de focalisation, nous trouvons

$$\tau_{\text{foc}} = \frac{2\pi\nu}{c_0} \left( (1 - n_{\text{si}}) \overline{\text{OI}} + n_{\text{si}}^2 \overline{\text{OF}_m} \right). \quad (4.13)$$

La présence d'un milieu tend à augmenter le chemin optique et la distance géométrique au foyer. Cette propriété est discutée dans [Greco et al., 1992, Kužel et al., 2010] lorsqu'il s'agit de prendre en compte les effets de focalisation dans un matériau pour la récupération des propriétés optiques des matériaux par TDS.

Ce changement de distance focale géométrique diminue l'ouverture du faisceau d'un facteur  $n_{\text{si}}$ , mais la résolution du système reste limitée par l'ouverture du miroir parabolique dans l'air : la taille de la tache focale dans le silicium est réduite dans la même proportion dans l'équation 4.1. C'est une conséquence de la conservation de l'étendue géométrique. Par ailleurs, le fait de focaliser sur une interface inclinée augmente l'empreinte de la tache focale dans une direction d'un facteur  $1/\sin(\pi/2 - \alpha) = 1.35$ .

Puisque la focalisation du faisceau THz s'effectue dans un matériau d'indice élevé (le silicium), il est en principe possible d'atteindre une ouverture super-unitaire ( $\text{NA} = n \sin \alpha > 1$ ). Pour cela, il faut que l'interface air-silicium soit elle-même à l'origine de la focalisation, comme par exemple en accolant lentille en silicium sur cette interface. La figure 4.27b présente l'amélioration d'un facteur 10 que l'on est en droit d'attendre avec une telle configuration ; nous n'avons pas encore eu l'occasion de mettre ces considérations en œuvre à l'heure de la rédaction de ce manuscrit. Nous n'avons pas non plus connaissance d'une démonstration par d'autres équipes de l'utilisation du domaine THz de ce principe (qui se rapproche du principe des objectifs à immersion utilisés en optique) qui permet d'obtenir des résolutions sous-longueur d'onde.



(a) Focalisation à l'aide d'un miroir parabolique extérieur au prisme, de longueur focale 152 mm et de 50 mm de diamètre ( $1.22\lambda/\text{NA} = 1.2 \text{ mm}$ ).  
 (b) Focalisation à l'aide d'une lentille en silicium accolée au prisme, d'un diamètre de 1 pouce (25.4 mm) et de 20.71 mm de rayon.

FIGURE 4.27 – Tache focale sur l'interface de réflexion interne totale calculée à l'aide des simulations numériques par optique de Fourier pour un faisceau gaussien de *waist* 10 mm et de longueur d'onde de  $300 \mu\text{m}$  (1 THz).

**configuration de Dove** Nous avons commencé nos expériences en utilisant le prisme en configuration de Dove (voir figure 3.26b), car cette disposition avait été mise en œuvre par Hirori [Hirori et al., 2004] pour faire de la spectroscopie en réflexion interne totale atténuée (ATR) et qu'elle nous semblait plus

simple à mettre en œuvre.

Les résultats d'une étude effectuée par Hilary Jacks, stagiaire américaine durant l'été 2010, montrent que cette configuration introduit un fort astigmatisme du faisceau, rédhibitoire pour l'imagerie. En effet cette disposition n'est pas symétrique par rapport au faisceau : l'angle d'incidence selon une direction est proche de la normale tandis qu'il en est très écarté selon l'autre. Cette disposition peut toutefois s'avérer utile si l'on veut étudier un objet selon une seule dimension.

#### 4.5.4 Mobilité de l'échantillon et pastille de silicium

Le dispositif de réflexion interne totale étant destiné à permettre de constituer des images, il est nécessaire de pouvoir changer la position relative du faisceau focalisé et de l'échantillon. L'échantillon étant supposé fluide, il n'est pas possible de le déplacer directement sur le prisme, en raison des phénomènes de tensions superficielles qui déformeraient l'objet en limitant ainsi la reproductibilité et le suivi des expériences. Déplacer l'ensemble du prisme n'est pas non plus envisageable, le système fait intervenir des changements d'axe optique et donc modifierait les conditions de focalisations.

Aussi, nous avons décidé d'utiliser une pastille faite du même matériau que le prisme (silicium haute-résistivité) comme support – ou substrat – de l'échantillon. La pastille et son échantillon sont posés directement sur le prisme et il est ainsi possible de déplacer l'objet par rapport au faisceau THz (figure 4.28a).

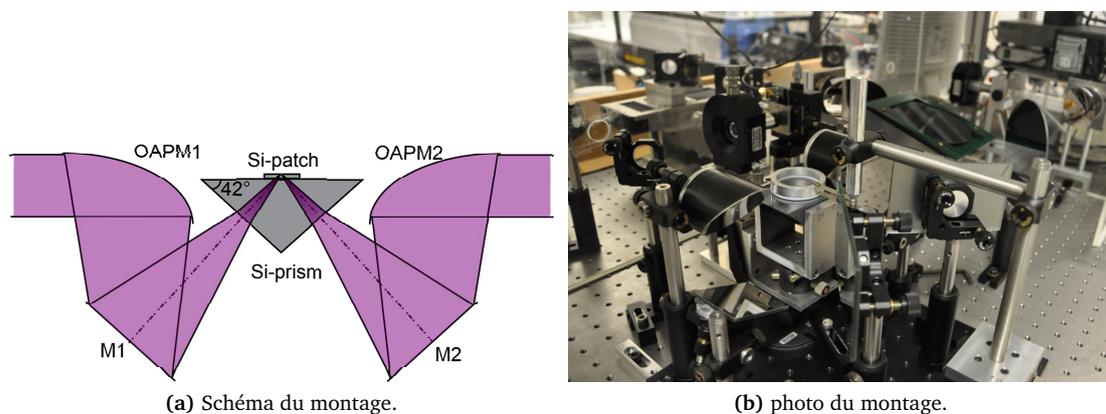


FIGURE 4.28 – Dispositif d'imagerie THz par réflexion interne totale.

Le prisme permet donc de coupler le faisceau térahertz incident dans la pastille. La pastille augmente légèrement la longueur de propagation et ses effets ont été pris en compte dans les calculs relatifs à la section 4.5.3.

La planéité des surfaces du prisme et de la pastille n'est pas parfaite, donnant lieu à des réflexions parasites à cette interface. Cela ne pose pas de problème outre mesure car ces échos sont éliminés par filtrage temporel et parce que nous nous intéresserons essentiellement à la phase (*i.e.* les fluctuations d'amplitude qui pourraient être occasionnées lors du déplacement de la pastille ne nous inquiètent guère). Ces échos seront traités plus en détail par la suite (section 4.5.11).

#### 4.5.5 Étude d'un objet de phase : la croix gravée sur de l'aluminium

Le premier objet que nous avons étudié est une pièce métallique plane sur laquelle est gravée une croix, dont l'épaisseur du trait est de  $500 \mu\text{m}$  (image 4.29). Cet échantillon est intéressant car il constitue un pur objet de phase : la partie en creux donne lieu à une réflexion **interne totale** déphasant l'impulsion, tandis que la partie métallique donne lieu à une réflexion **métallique** totale, *i.e.* sans déphasage relatif des composantes de polarisation. Un tel objet offre un très faible contraste en puissance (figure 4.30a), mais un bon contraste en phase (figure 4.30b).

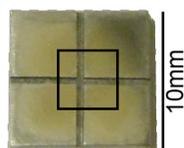


FIGURE 4.29 – Photographie de la croix gravée.

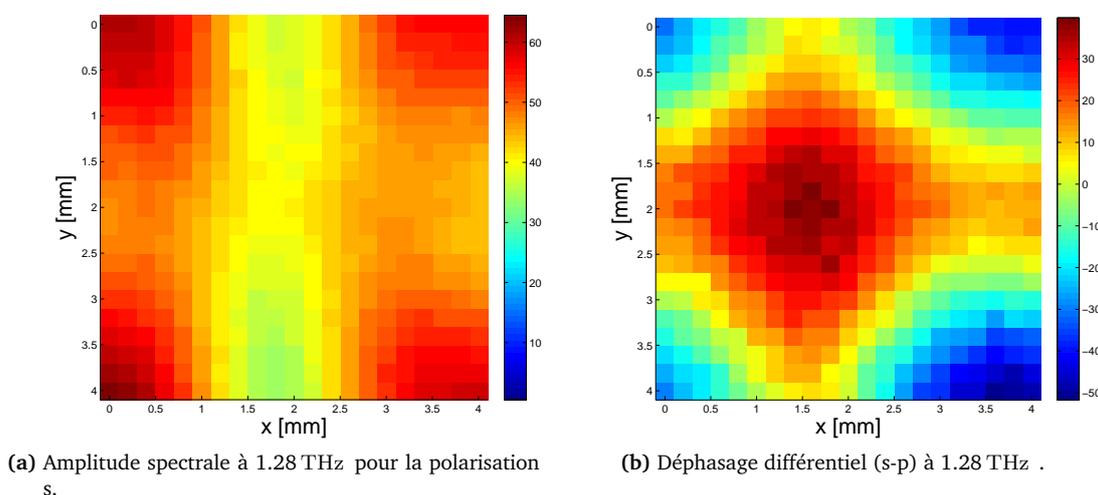


FIGURE 4.30 – Image THz de la croix sur métal. Le carré représenté a une dimension de  $4 \times 4 \text{ mm}^2$  et correspond à la zone imagée.

On observe que pour l'information de phase la **résolution latérale est de l'ordre de 1.5 mm**, ce qui est en accord avec le critère de Rayleigh du système, et que la phase différentielle accuse une évolution sur  $90^\circ$ , conformément à ce que l'on pourrait attendre (le prisme est conçu pour fonctionner comme un déphaseur quart d'onde !).

Il est possible avec un tel objet de faire des mesures bidimensionnelles rapides, en fixant le délai de la ligne à retard et en jouant sur le fait que le déphasage réorganise l'impulsion sous son enveloppe, menant à une modification de l'amplitude à délai constant selon que la réflexion soit avec ou sans déphasage. Toutefois, dans le domaine temporel les contributions de toutes les fréquences s'ajoutent et la résolution que l'on obtient n'est pas excellente.

Dans le domaine temporel nous avons constaté, en nous intéressant à l'enveloppe des impulsions réfléchies, que lorsque la réflexion se fait sur une partie métallique, les deux composantes de polarisation sont synchrones, mais que lorsque la réflexion se fait avec l'air, les deux composantes ne le sont plus

(figure 4.31). Nous attribuons ce phénomène à une manifestation temporelle de l'effet Goos-Hänchen, qui se traduit classiquement par un léger décalage latéral des faisceau ayant subi une réflexion interne totale.

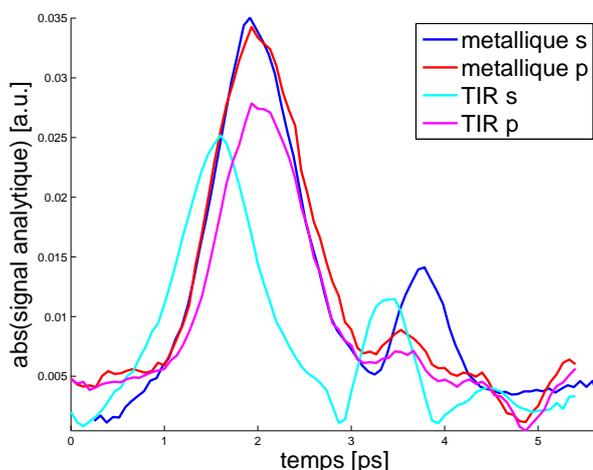


FIGURE 4.31 – Possible manifestation temporelle de l'effet Goos-Hänchen.

Liu [Liu et al., 2010c] a montré que ce décalage temporel  $\tau_{GH}$  peut être négatif, bien que cela puisse sembler contre-intuitif. Selon l'expression qu'il développe, ce décalage est différent pour les deux polarisations et se trouve être de l'ordre de grandeur de ce que l'on observe.

Précisons que nous avons observé de tels phénomènes sur d'autres expériences, mais ceux-ci avaient une incidence bien inférieure.

#### 4.5.6 Étude d'un objet menant à une réflexion interne atténuée : une goutte d'eau

Le deuxième objet que nous avons étudié est une goutte d'eau déposés sur la pastille de silicium, comme le montre l'image 4.32, afin de confirmer que l'absorption par l'eau était bien modérée au regard des autres techniques d'imagerie.



FIGURE 4.32 – Photographie de la goutte d'eau posée sur la pastille de silicium. Le carré représenté a une dimension de  $4 \times 4 \text{ mm}^2$  et correspond à la zone imagée. La pastille a un diamètre de 1 pouce (25.4 mm).

Le pas d'acquisition spatial a été volontairement réduit par rapport à l'objet précédant, car l'évaporation de la goutte d'eau, petite ( $\simeq 1 \text{ mm}$  de diamètre) nous limitait dans la durée de la mesure (une demi-heure) malgré l'emploi d'un buvard imbibé d'eau placé au dessus pour freiner l'évaporation.

Cette fois, l'objet présente une modification de l'**amplitude** (figure 4.33a) et de la **phase** (figure 4.33b). Cela est tout à fait cohérent avec nos attentes, car la présence d'eau fait passer la réflexion interne d'un état de réflexion totale à un état de réflexion atténuée : le coefficient de réflexion demeure complexe mais n'est plus unitaire, ce qui rajoute un contraste d'amplitude.

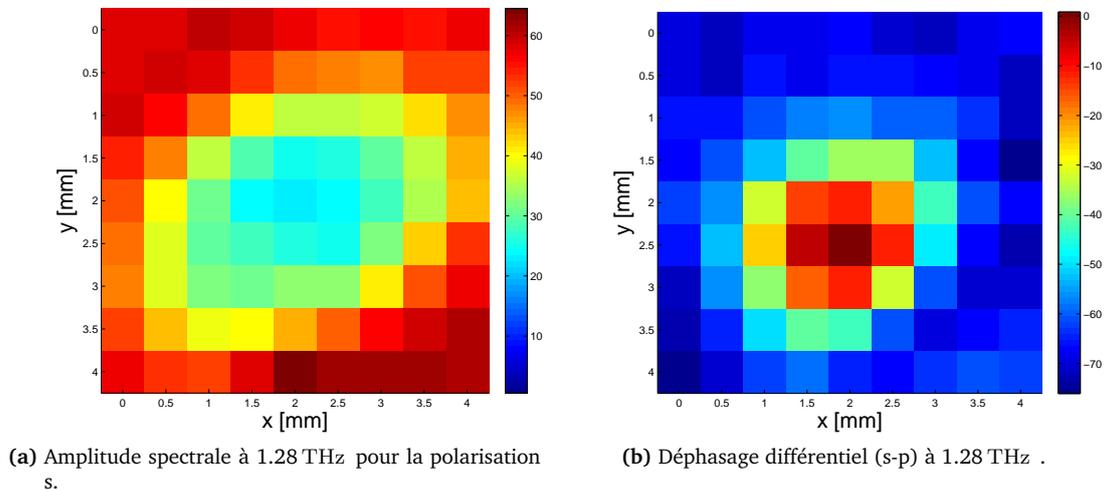


FIGURE 4.33 – Image THz de la goutte d'eau.

L'étude de la phase spectrale différentielle apporte un contraste meilleur, mais est surtout moins sujet au bruit. S'il est difficile de mesurer le diamètre exact de la goutte d'eau, la résolution latérale semble à nouveau être de l'ordre de 1.5 mm .

#### 4.5.7 Spectroscopie par réflexion totale atténuée

La spectroscopie par réflexion interne totale atténuée (ATR pour *Attenuated Total Reflexion*) est une variante des méthodes de spectroscopie de type TDS [Hirori et al., 2004, Dobroiu et al., 2005]. Il s'agit d'effectuer une mesure de référence (la surface de réflexion interne totale à nu), puis une seconde mesure pour laquelle on dépose le liquide à étudier sur la surface de réflexion interne. La réflexion de l'onde (décrite par l'équation 3.35) n'est plus totale – elle est atténuée à cause du coefficient d'extinction non-nul du liquide – mais elle conserve des propriétés de déphasage différentiel. En mesurant l'atténuation et le déphasage, module et argument du rapport des spectres des mesures avec et sans eau, toutes deux effectués avec un angle de réflexion interne  $\alpha = 42^\circ$  :

$$\frac{E_{\{s,p\}}^{\text{ATR}}(\nu)}{E_{\{s,p\}}^{\text{TIR}}(\nu)} = \frac{r_{\{s,p\}}^{\text{air} \rightarrow \text{eau}}(i = \alpha, \nu)}{r_{\{s,p\}}^{\text{air} \rightarrow \text{si}}(i = \alpha, \nu)}, \quad (4.14)$$

on a donc la possibilité de déterminer l'indice complexe du matériau.

Nous avons effectué ces mesures pour de l'eau distillée (figure 4.34), sans purger l'air atmosphérique. La figure 4.34a présente le rapport des amplitudes spectrales de la composante s entre la réflexion en présence d'eau et la réflexion interne totale avec l'air, qui sert de référence. On observe bien l'atténuation attendue, tandis que la figure 4.34b confirme que l'on assiste toujours à un déphasage de l'onde. Les mesures pour la composante p (non présentées) sont très similaires.

Comme le faisceau est assez fortement focalisé, l'angle d'incidence sur l'interface de réflexion interne

n'est pas parfaitement défini en raison de la diversité des fréquences spatiales. Il serait donc hasardeux de vouloir extraire directement des données les propriétés optiques de l'eau, et c'est pourquoi nous préférons comparer les données récoltées au modèle de l'eau développé dans la section 4.4.1, ce qui permet par ailleurs de le valider expérimentalement (les pics solitaires sont associés aux perturbations causées par l'eau atmosphérique).

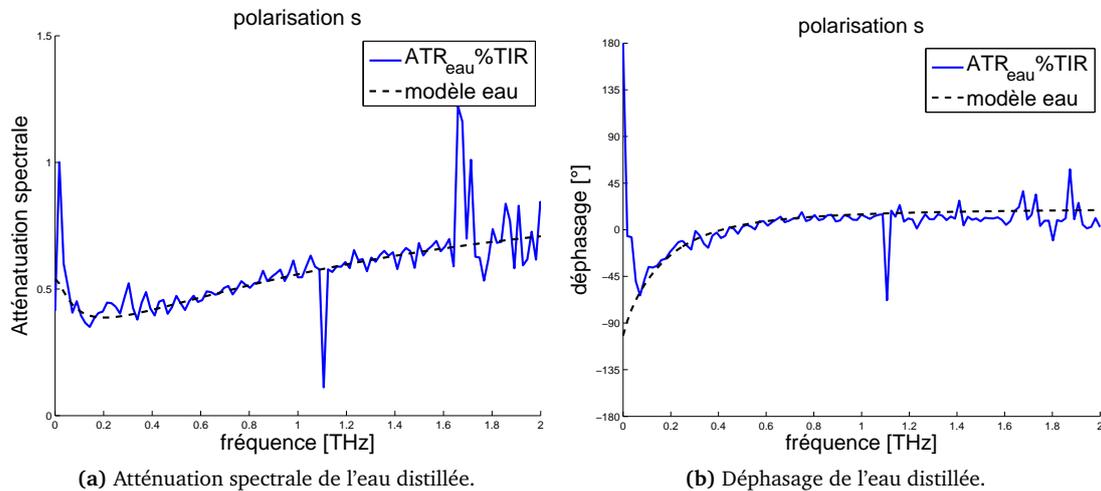


FIGURE 4.34 – Propriétés fréquentielles vues par ATR.

Nous pourrions déterminer l'indice des liquides sans avoir recours à une mesure de référence, en utilisant simplement les informations que nous donnent les deux polarisations. Mais dans le cas présent, les réponses spectrales des deux antennes de détection ne sont pas suffisamment proches pour fournir un résultat exploitable<sup>9</sup>.

Nous aurions également pu exploiter les données récoltées précédemment pour former l'image de la goutte d'eau (figure 4.33). Toutefois, dans la mesure où la taille de la goutte d'eau est inférieure à la tache focale du faisceau, les effets de la diffraction rendent l'analyse trop délicate pour que l'on ne puisse en tirer des informations d'ordre spectroscopique suffisamment précises.

Azzam [Azzam, 1999] fait remarquer que la zone dans laquelle la phase différentielle évolue le plus rapidement en fonction du coefficient d'extinction (*i.e.* la sensibilité de mesure est la meilleure) se situe entre la condition de Brewster  $i_B$  (eq. 3.23) et la condition de réflexion interne totale  $\alpha_c$  (eq. 3.33). Aux basses fréquences, c'est la situation dans laquelle on se trouve en utilisant un prisme d'angle à la base de  $42^\circ$  lorsque le milieu extérieur est de l'eau ( $\tilde{n}_{\text{eau}}(1 \text{ THz}) \simeq 2.2 - 0.5i$ ). En revanche, son coefficient d'extinction est si élevé que la variation est presque saturée (figure 4.35).

Nous avons conduit des mesures d'ATR en utilisant une solution physiologique (le liquide de Ringer<sup>10</sup> contenant principalement des ions sodium  $\text{Na}^+$  et des ions chlore  $\text{Cl}^-$  (voir les détails en annexe de la thèse de Podzorov [Podzorov, 2009]) comme échantillon, et nous l'avons comparé aux mesures faisant intervenir de l'eau distillée effectuées précédemment. En formant le rapport des amplitudes fréquentielles des deux mesures :

$$\frac{E_{\{s,p\}}^{\text{ATR,Ringer}}(\nu)}{E_{\{s,p\}}^{\text{ATR,eau}}(\nu)} = \frac{r_{\{s,p\}}^{\text{air} \rightarrow \text{Ringer}}(i = \alpha, \nu)}{r_{\{s,p\}}^{\text{air} \rightarrow \text{eau}}(i = \alpha, \nu)} \quad (4.15)$$

9. Une division dans le domaine fréquentiel permet de supprimer la réponse d'appareil — quand les mesures sont effectuées sur le même appareil.

10. Le liquide de Ringer est une solution saline qui contient donc principalement 120 mM de  $\text{Na}^+$  et 100 mM de  $\text{Cl}^-$ , mais également quelques millimoles par litre de  $\text{K}^+$  et de  $\text{Ca}^{2+}$  et d'autres composés.

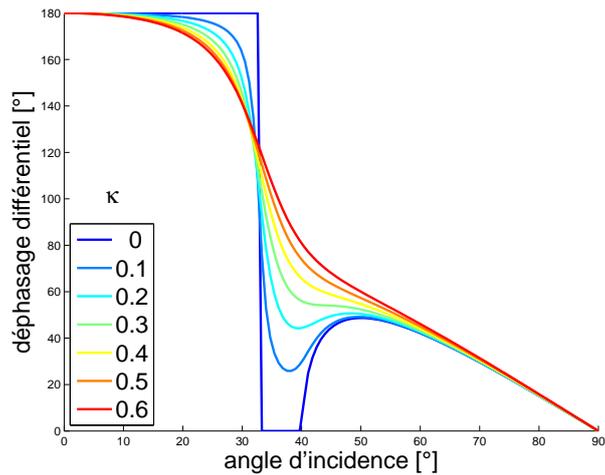


FIGURE 4.35 – Phase différentielle à la réflexion interne selon l'angle d'incidence et évolution en fonction du coefficient d'atténuation  $\kappa$  — pour une interface  $n_1 = 3.41 \rightarrow n_2 = 2.2 - i\kappa$ .

montrés sur la figure 4.36a, il est difficile de déceler une différence causée par la présence d'ions. La phase spectrale (figure 4.36b) permet par contre de clairement différencier les deux liquides : les variations de la phase spectrale sont très largement supérieures au bruit de phase (y compris le terme linéaire liés au fluctuations de l'air) jusqu'à 1 THz ; à hautes fréquences, la présence d'eau atmosphérique pour perturber les mesures empêche de conclure. Constatons que ces variations sont bien supérieures à celles prédites par le modèle rudimentaire discuté dans la section 4.4.3.

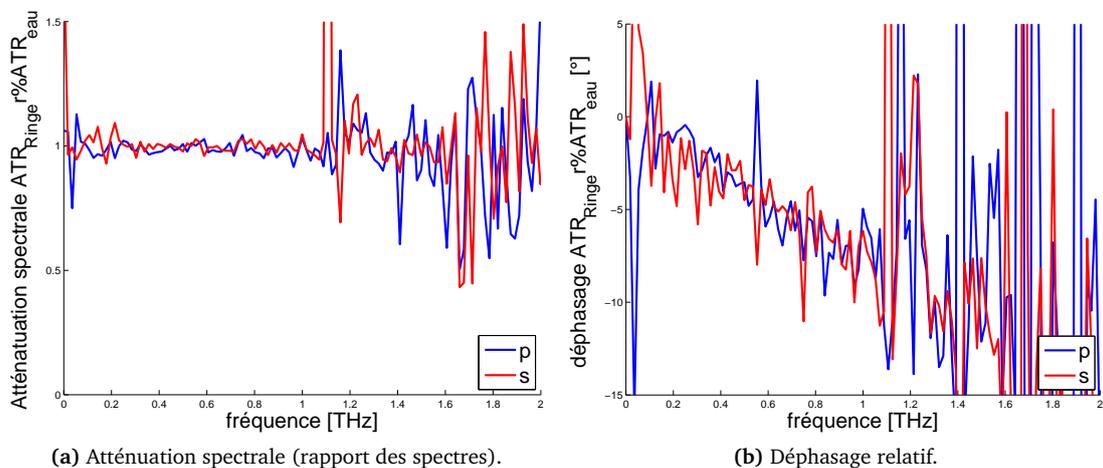


FIGURE 4.36 – Propriétés fréquentielles de la réflexion interne sur une solution physiologique par rapport à de l'eau distillée.

Les différences de concentration en ions entre l'intérieur et l'extérieur des cellules sont du même ordre de grandeur que celles entre liquide de Ringer et l'eau distillée (voir la section 4.5.8). Nous sommes dès lors en droit d'attendre que l'imagerie par réflexion interne totale soit capable de détecter les cellules, voire d'effectuer des mesures sur celles-ci.

#### 4.5.8 Concentrations en ions dans les cellules et échanges avec le milieu extérieur

Les cellules qui composent les organismes vivants, ont des tailles de l'ordre de  $50\ \mu\text{m}$  et présentent une composition en ion qui les **distinguent du milieu extérieur** (voir le tableau 4.2).

TABLE 4.2 – Concentrations ioniques intra et extracellulaires d'une cellule typique de mammifère. (extrait de [Alberts, 2004])

Composant	concentration intracellulaire (mM)	concentration extracellulaire (mM)
$\text{Na}^+$	5-15	<b>145</b>
$\text{K}^+$	<b>140</b>	5
$\text{MG}^{2+}$	0.5	1-2
$\text{Ca}^{2+}$	$10^{-4}$	1-2
$\text{H}^+$	$7 \times 10^{-5}$ (pH 7.2)	$4 \times 10^{-5}$ (pH 7.4)
$\text{Cl}^-$	5-15	110

Pour lutter contre les gradients électro-chimiques qui tendent à équilibrer les concentrations intérieures et extérieures, la membrane cellulaire est dotée de pompes à ions qui permettent de maintenir la composition interne en ions. Ces différences entre l'intérieur et l'extérieur de la cellule sont à l'origine du potentiel membranaire.

Les neurones sont des cellules particulières, dont le rôle est de transmettre des influx nerveux (potentiels d'action). Les axones sont des ramifications de ces neurones dont le rôle est de faire se propager ces potentiels d'actions. Toutefois, une stimulation électrique ne saurait se propager seul sur de longues distances. Le mécanisme de propagation imaginé par la Nature est le suivant :

- Lorsqu'une zone de la membrane est dépolarisée (dû à une stimulation), les canaux à  $\text{Na}^+$  situés sur celle-ci s'ouvrent en laissant entrer de nouveaux ions  $\text{Na}^+$  dans la cellule.
- Cela augmente encore la dépolarisation de la membrane, qui va ouvrir encore plus de canaux à  $\text{Na}^+$ , donnant un effet d'amplification en cascade.
- La dépolarisation de la membrane est suffisante pour faire s'ouvrir les canaux à  $\text{Na}^+$  en aval de la membrane, et constituer une chaîne de transmission. Ainsi se propage le potentiel d'action.
- Pendant ce temps, les canaux à  $\text{Na}^+$  sont inactivés et les canaux à  $\text{K}^+$  retardés s'ouvrent, permettant à la cellule de retrouver son potentiel membranaire initial.

#### 4.5.9 Nerf sciatique de grenouille

Les dimensions latérales d'un objet à imager doivent être au moins de l'ordre des longueurs d'ondes employées. Afin de pouvoir imager un objet d'intérêt biologique, nous nous sommes intéressés au nerf sciatique de grenouille. Il s'agit d'un neurone, dont l'axone parcourt tout le long du corps de l'animal et qui peut mesurer une dizaine de centimètres de longueur, pour un diamètre de l'ordre du millimètre. Ces dimensions conviennent bien à la relativement faible **résolution latérale** des longueurs d'ondes THz. Les nerfs sciatiques ont été prélevés par nos soins sur des grenouilles vivantes préalablement endormies à l'aide d'un anesthésiant (tricaine), puis conservés au réfrigérateur dans une solution de Ringer.

Le nerf sciatique ayant tendance à flotter dans la solution de Ringer, nous l'avons appuyé contre la surface de la pastille au moyen d'une lamelle de microscope, ce qui a pour effet d'augmenter son empreinte (*i.e.* son diamètre apparent). Pour éviter des problèmes de dessèchements, nous avons réduit la définition de l'échantillonnage spatial à  $3 \times 14$  sur une étendue de  $2 \times 4\ \text{mm}^2$ .

L'ensemble des mesures temporelles (figure 4.37a) montre que les différences entre les différentes

zones de l'image sont très fines, et qu'il n'est guère possible de former des images d'un tel objet en se basant sur l'amplitude spectrale (image 4.37b).

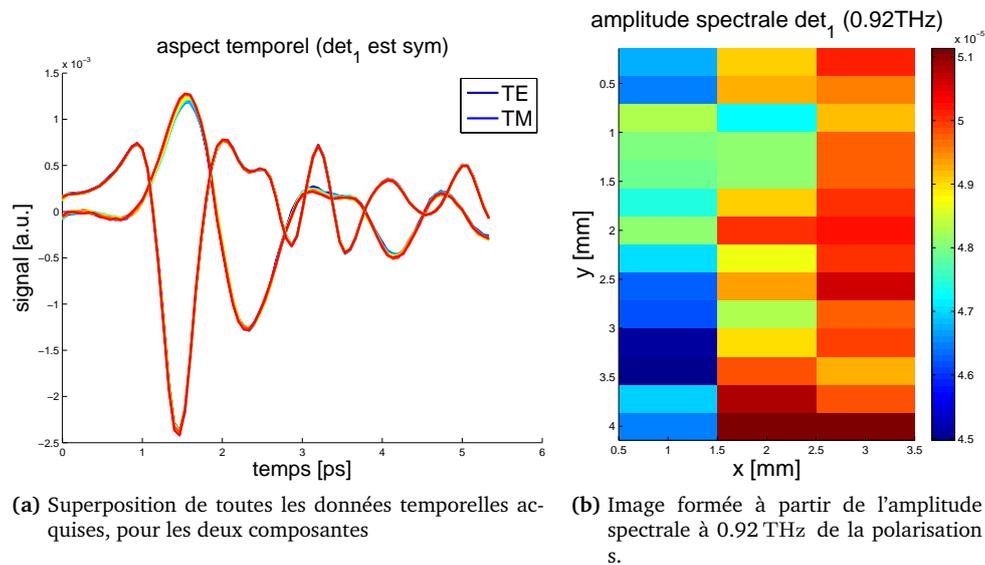


FIGURE 4.37 – Imagerie d'un neurone par réflexion interne totale — amplitude

En examinant la phase spectrale, les résultats sont plus intéressants. La figure 4.38a présente la phase spectrale de la composante s relative à un point fixe (choisi en un coin de l'image) ; on y distingue clairement la section du neurone (que la figure 4.38b permet de mieux apprécier). Nous pouvons aussi calculer le déphasage différentiel entre les deux polarisations (non présenté) ; la section du neurone s'y distingue également, mais le contraste est plus faible et l'image plus bruitée.

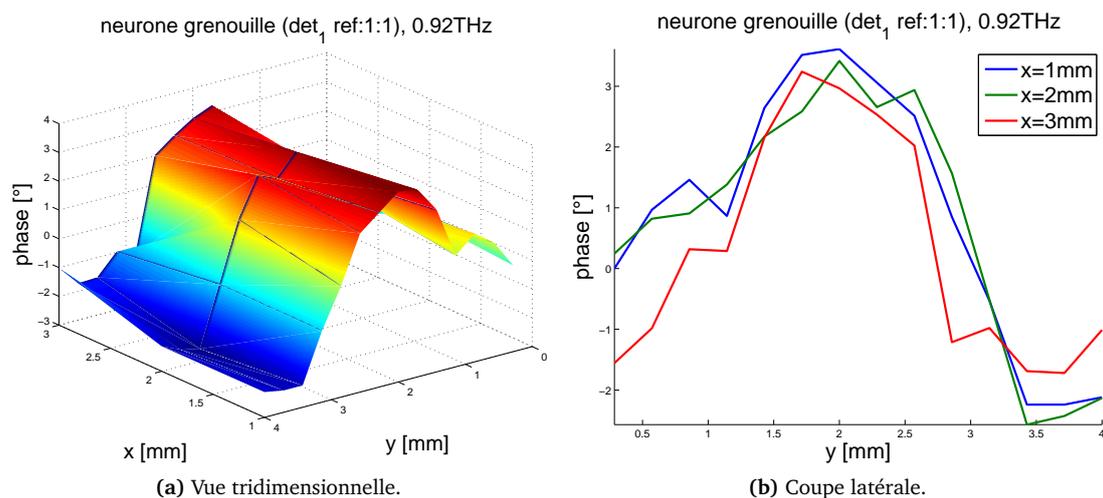


FIGURE 4.38 – Imagerie par la phase de la polarisation s à 0.92 THz .

Nous souhaitons étudier en détail la propagation du potentiel d'action par le biais de échanges ioniques. Il semblerait toutefois que le contraste que nous observons avec notre technique ne permet pas

d'imager l'axone lui-même, mais plutôt à la couche de myéline qui l'entoure [Alberts, 2004].

#### 4.5.10 Imagerie de couche cellulaire

Chez les eucaryotes, la taille typique des cellules varie de 10 à 100  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à la **résolution longitudinale** de l'imagerie par réflexion interne totale. Il est donc a priori possible d'étudier des couches de cellules.

Nous avons fait croître des cellules souches humaines sur une pastille en silicium, afin de voir si nous arrivions à les distinguer du milieu aqueux dans lequel elles se développent, à dessein d'étudier ensuite leur réaction à des stimuli chimiques. Malheureusement, nous n'avons pas réussi pour l'heure à produire des échantillons suffisamment homogènes pour permettre une discrimination des cellules.

#### 4.5.11 Résolution longitudinale du procédé d'imagerie par réflexion interne totale

Afin de tester la résolution longitudinale de notre système, nous avons placé un miroir métallique sur la pastille de silicium puis, à l'aide de cales en aluminium de  $e = 12.5 \mu\text{m}$  d'épaisseur (découpées dans du papier aluminium alimentaire), nous avons progressivement augmenté l'espacement entre la pastille et le miroir. Nous avons également produit des expériences similaires en utilisant du film alimentaire de  $e_f = 10 \mu\text{m}$  d'épaisseur et d'absorption négligeable pour éloigner le miroir de la surface de la pastille. Ainsi, il y a une transition progressive de l'état de réflexion métallique (miroir plaqué sur la pastille) à l'état de réflexion interne totale (miroir à l'infini, soit  $e \gg 1/\gamma$ , ce qui correspond à une absence de miroir).

En s'aidant du schéma 4.39, on peut se convaincre que l'ajout d'un miroir consiste à faire interférer une onde réfléchie totalement et une onde qui serait transmise par réflexion interne totale frustrée.

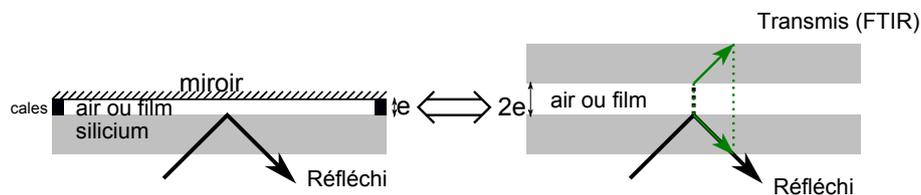


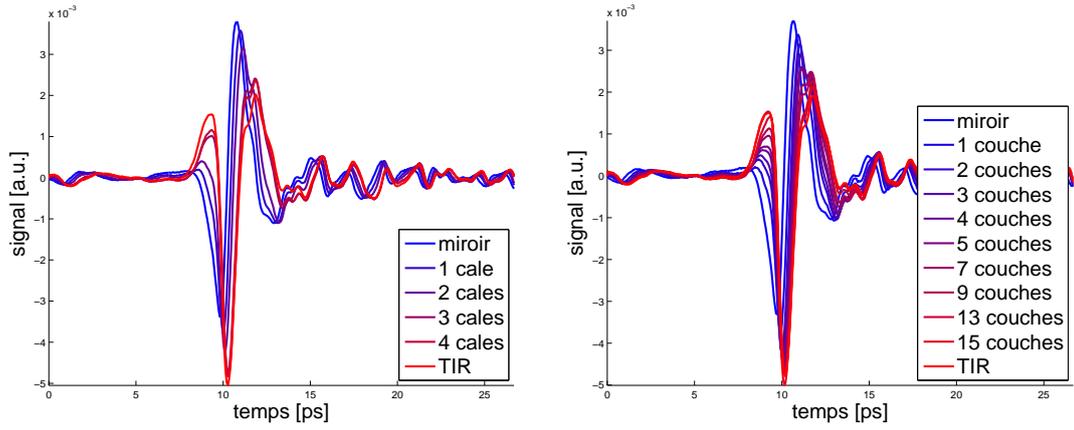
FIGURE 4.39 – Schéma de l'espacement par des cales et représentation équivalente.

Les mesures présentées figure 4.40 montrent dans les deux cas une évolution assez rapide des aspects temporels. À partir de trois cales ( $\simeq 40 \mu\text{m}$ ), l'effet semble saturer : l'onde *ne voit plus le miroir*. Dans le cas de l'espacement par du film alimentaire, l'effet met plus de temps à saturer : cela s'explique avec la dépendance par rapport à l'indice du milieu extérieur de la longueur de peau (qui vaut 29  $\mu\text{m}$  à 1 THz, contrairement à 23  $\mu\text{m}$  dans les mêmes conditions pour l'air).

Nous pouvons proposer un modèle dans le domaine fréquentiel d'une telle réflexion en utilisant le formalisme de l'interféromètre de Fabry-Pérot [Zhu et al., 1986]<sup>11</sup>, que l'on généralise au cas présent en considérant un vecteur d'onde complexe  $\tilde{k}$  :

$$\tilde{k} = \frac{2\pi}{c} \nu n_2 \sqrt{1 - \left(\frac{n_1}{n_2} \sin \alpha\right)^2} = \nu \gamma, \quad (4.16)$$

11. Quelques erreurs d'impressions dans cet article invitent à reprendre le calcul



(a) Effets temporels de l'espacement du miroir par des cales ( $e = 12.5 \mu\text{m}$ ) à l'interface de TIR. (b) Effets temporels de l'espacement du miroir par du film alimentaire ( $e_f = 10 \mu\text{m}$ ) à l'interface de TIR.

FIGURE 4.40 – Aspect temporel de la sensibilité longitudinale pour la polarisation  $s$ .

où  $n_1$  est l'indice du milieu intérieur (le silicium),  $n_2$  l'indice du milieu extérieur ( $n_2=1$  pour l'air,  $n_2=1.55$  pour film alimentaire) et  $\alpha = 42^\circ$  l'angle d'incidence sur la surface de réflexion interne totale.

En notant  $r_{12}$  le coefficient de réflexion sur cette interface,  $r_{23}$  le coefficient de réflexion sur la seconde interface (nous omettons les dépendances en la composante de polarisation afin d'alléger les calculs) et en utilisant les relations de Stokes  $t_{12}t_{21} + r_{12}^2 = 1$  et  $r_{12} = -r_{21}$  (eq. 3.18 et 3.19), nous avons un coefficient de réflexion global :

$$\begin{aligned}
 R &= r_{12} + t_{12}t_{21}r_{23}e^{i2\bar{k}e} \sum_{m=0}^{\infty} \left( r_{21}r_{23}e^{i2\bar{k}e} \right)^m \\
 &= r_{12} + \frac{(1 - r_{12}^2)r_{23}e^{i2\bar{k}e}}{1 + r_{12}r_{23}e^{i2\bar{k}e}}.
 \end{aligned} \tag{4.17}$$

Dans le cas présent, l'emploi d'une somme géométrique infinie est valide, car aucun des termes ne présente de terme de propagation (contrairement à l'étude de l'effet étalon dans la section 3.3.2).

Lorsque l'on s'intéresse à la composante  $s$ , que la première interface est une interface air-silicium ( $r_{12}^s = e^{i\phi_s}$ ) et que la seconde est un miroir ( $r_{23}^s = -1$ ), le calcul se simplifie pour donner :

$$R_s = e^{i\phi_s} - \frac{(1 - e^{i2\phi_s})e^{i2\bar{k}e}}{1 - e^{i\phi_s}e^{i2\bar{k}e}} = \begin{cases} e^{i\pi} = -1 & \text{si } e = 0 \\ e^{i\phi_s} & \text{si } e = +\infty \end{cases} \tag{4.18}$$

ce qui nous donne bien les deux cas limites de réflexion interne totale et de réflexion métallique.

Les figures 4.41 présentent les mesures de la figure 4.40a d'un point de vue fréquentiel. On observe que la répartition spectrale de l'énergie des impulsions n'est pratiquement pas modifiée (en vertu de la conservation de l'énergie). En revanche, la phase spectrale (figure 4.41b) voit sa structure évoluer, en accord avec le modèle proposé (les courbes correspondantes au modèle pour une épaisseur de cale  $e=12.5 \mu\text{m}$  sont présentées en pointillé sur la même figure) :

- Lorsque le miroir est plaqué sur la pastille, cette phase spectrale est constante (et correspond à la différence entre une réflexion interne totale et une réflexion métallique).
- Elle devient dépendante de la fréquence lorsque l'on insère des cales, ce qui est une manifestation

la dépendance de l'épaisseur de peau par rapport à longueur d'onde.

- Lorsque l'épaisseur devient trop importante, la phase spectrale relative devient nulle pour les hautes fréquences, ce qui traduit un état de réflexion interne totale, tandis que les très basses fréquences semblent toujours sensibles au miroir.

La correspondance avec le modèle est assez bonne jusqu'à deux cales d'épaisseur ( $25 \mu\text{m}$ ). Au-delà, nous imputons l'écart à l'accumulation des imperfections d'empilement des cales qui tend à augmenter l'épaisseur de la couche d'air. En considérant l'aluminium du miroir comme un diélectrique ( $\tilde{n}_{\text{Al}} = 340 - 300i$  dans le domaine THz, d'après [Azad et al., 2006]) plutôt que comme un conducteur parfait, les résultats sont similaires.

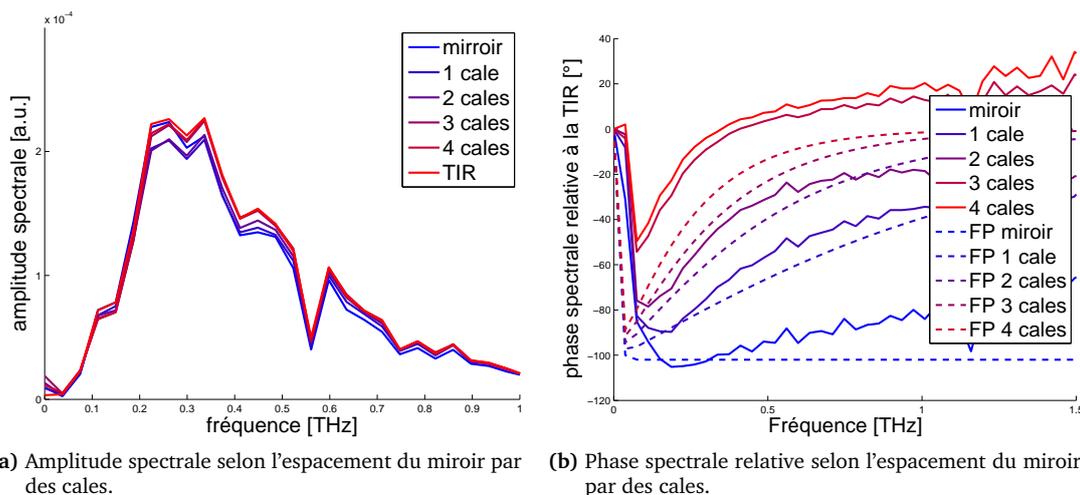


FIGURE 4.41 – Aspect fréquentiel de la sensibilité longitudinale.

Notons que lorsque l'on procède la même étude sur le miroir séparé par du film alimentaire, les résultats (non présentés ici) sont dans un accord équivalent.

Ainsi, ces mesures corroborent la discussion reliant la résolution longitudinale à la longueur de peau, car les effets sont très sensibles sur des distances très inférieures à la longueur d'onde et saturent rapidement au-delà. C'est notamment cette **grande sensibilité longitudinale** a permis à Hishida [Hishida et Tanaka, 2011] d'étudier l'hydratation des membranes lipidiques à l'aide de la réflexion interne totale dans le domaine THz.

Nous avons voulu tester l'influence d'une couche intermédiaire absorbante entre le prisme et le miroir pour observer des effets en amplitude. Pour cela, nous avons choisi d'y insérer matériau absorbant : une lamelle de verre. Nous avons constaté une dépendance en épaisseur, mais malheureusement, l'indice optique du verre ( $\simeq 2.4$ ) est supérieur à celui nécessaire à la condition de réflexion interne totale : on se trouve donc dans un cas de réflexion interne totale frustrée mâtinée d'un forte absorption.

## Échos parasites à l'interface prisme-pastille

Le couplage de l'impulsion THz entre le prisme et la pastille n'est pas total : on assiste en effet à une réflexion parasite sur cette interface. Celle-ci est due au fait que le contact entre le prisme et la pastille n'est pas un contact optique parfait, bien que les surfaces soit très planes. Ces réflexions parasites n'ont pas la même intensité pour les deux composantes de polarisation comme le montre les mesures

effectuées avec et sans pastille (figure 4.42). On observe également les réflexions internes du diviseur de faisceau qui interviennent 62 ps après l'impulsion principale.

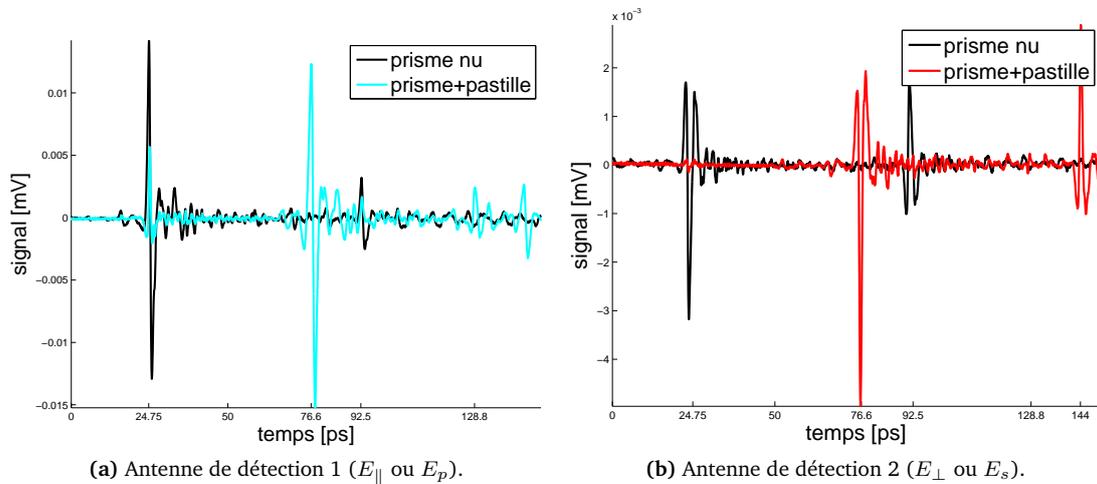


FIGURE 4.42 – Couplage de l'onde dans la pastille de silicium et réflexion parasite.

En effectuant une analyse du contenu fréquentiel (de la composante  $\mathbf{p}$  pour laquelle l'effet est plus important, figure 4.43), on constate que la réflexion parasite contient essentiellement des hautes fréquences.

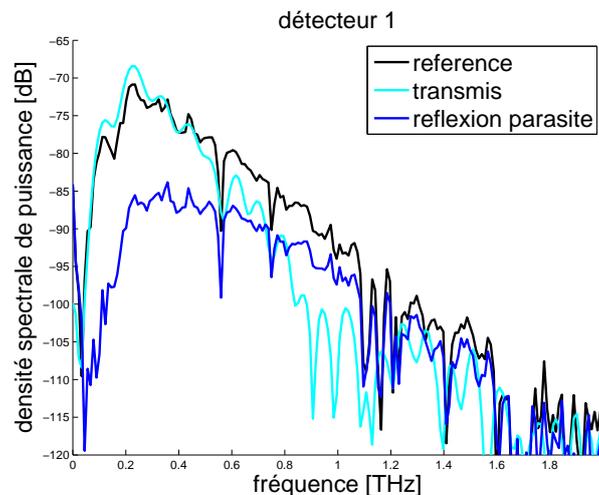


FIGURE 4.43 – Contenu spectral de la réflexion parasite pour la composante  $\mathbf{p}$ .

Afin d'expliquer ce comportement, nous pouvons considérer que le couplage entre le prisme et la pastille s'effectue par un phénomène de réflexion interne totale frustrée (FTIR pour *Frustrated Total Internal Reflection*) au travers d'une fine couche d'air entre le prisme et la pastille. Les simulations numériques présentées figure 4.44 permettent d'avoir une meilleure intuition de ces phénomènes et de leur dépendance en fonction de la couche d'air.

En réutilisant le modèle présenté précédemment (équation 4.17) et en s'intéressant à la composante transmise, nous avons [Zhu et al., 1986] :

$$T_{\{s,p\}}^{\text{FTIR}} = 1 - |R_{\{s,p\}}|^2. \quad (4.19)$$

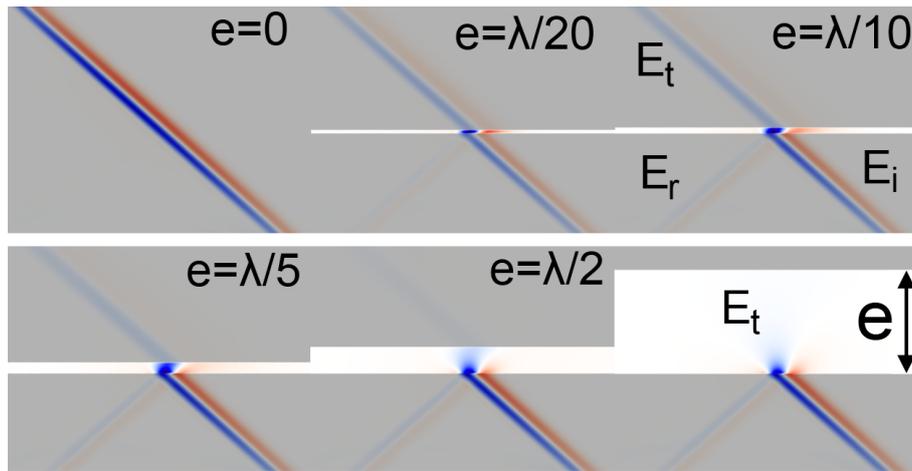


FIGURE 4.44 – Effet de la distance  $e$  entre deux interface lors de la réflexion interne totale frustrée pour la polarisation  $s$ . On observe progressivement la transmission s’atténuer pour laisser place à une réflexion totale (simulations réalisées avec le logiciel *MEEP*.)

Le coefficient de transmission dépend de la fréquence considérée par l’intermédiaire de la longueur de peau ; il se trouve être nettement supérieur pour la polarisation  $s$  au longues distances (figure 4.45). On notera que la **composante transmise ne présente pas de déphasage**.

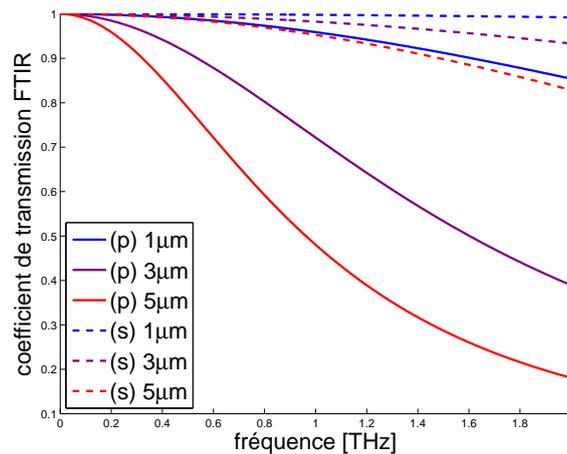


FIGURE 4.45 – Modélisation du couplage par FTIR entre le prisme et la pastille en silicium pour différentes épaisseurs de couche d’air interstitielle.

En comparant le contenu fréquentiel, on peut estimer à  $2\ \mu\text{m}$  l’interstice qui sépare la pastille du prisme. Ces pertes ne sauraient être attribuable à l’oxydation des surfaces en silicium qui est à l’origine d’une couche superficielle de silice d’une épaisseur de l’ordre de  $30\ \text{nm}$  [Landgren et Joensson, 1993].

Les dispositifs acousto-optiques utilisent parfois des « liquides de haut indice » pour assurer le couplage optique entre deux pièces mobiles et éviter ce genre de pertes. Nous n’avons pas connaissance d’un liquide présentant un indice suffisamment élevé ( $n > 2.5$ ) pour améliorer le contact optique.

#### 4.5.12 Conclusions et perspectives

L’imagerie par réflexion totale permet d’étudier des objets majoritairement composés d’eau, pour lesquels les autres techniques d’imagerie térahertz que nous avons vues ne sont pas adaptées. Elle permet

en outre de tirer parti des contrastes ioniques présents dans les échantillons biologiques avec une assez sensibilité suffisante, ce qui lui donne un réel intérêt au delà du seul domaine térahertz, dès lors que les techniques optiques conventionnelles ne savent distinguer la composition en ion des solutions.

Nous avons également vu que sa résolution longitudinale s'accordait bien avec la taille typique des cellules, éléments de base du vivant, et nous pensons être en mesure de distinguer différents types de tissus ou de couches unicellulaires.

Le fonctionnement de l'imagerie par réflexion interne totale et les performances de la configuration actuelle ont été caractérisées, mais elle peut encore être améliorée voire détournée pour d'autres applications. Suivent quelques propositions que nous n'avons pas pu déployer entièrement car elles nécessitent des solutions techniques sur-mesure<sup>12</sup> que nous n'avons pas eu le temps de confectionner.

## Microfluidique

Au lieu d'utiliser une pastille en silicium haute-résistivité, il est possible d'utiliser un wafer en silicium et de s'en servir comme d'un substrat pour y attacher des canaux microfluidiques en PDMS. Nous avons effectué des essais, mais en raison de la très faible largeur des canaux à notre disposition ( $\simeq 100 \mu\text{m}$ ), nous ne sommes pas parvenus à des résultats plus significatifs que le suivi en temps réel des bulles d'air dans ces canaux. Dans un même ordre d'idée, on peut utiliser des procédés de photolithographie pour graver certaines fonctionnalités sur le wafer.

Ce procédé est à rapprocher du principe des lignes de Goubau, qui font transiter des ondes térahertz guidées [Meignien et al., 2008] pour sonder des solutions contenues dans des microcanaux [Laurette et al., 2010].

## Réflexion interne totale modifiée par optical switching

La technique d'optical switching (présentée section 4.2.2.1) pourrait également être adaptée à l'imagerie par réflexion totale. La pastille étant en silicium, on serait en mesure de générer des photoporteurs sur l'interface de réflexion interne par illumination : localement, le matériau se comporterait comme un conducteur et fait passer la réflexion d'un caractère de réflexion interne totale à un caractère de réflexion métallique. Cela pourrait en particulier être utilisé pour passer à travers des échantillons optiquement transparents et permettrait d'augmenter la vitesse d'acquisition des images (le laser peut balayer très rapidement la surface à imager à l'aide d'un miroir monté sur une tête galvanométrique).

## Objectif "à immersion"

Une manière d'améliorer la résolution des microscopes optiques consiste à utiliser des objectifs à immersion, lesquels permettent de focaliser les faisceaux dans un matériau d'indice supérieur à 1 (comme les huiles) et donc d'obtenir des ouvertures super-unitaire. Dans le cas de l'imagerie en réflexion interne totale, la focalisation s'effectue dans le silicium (notre "liquide") et nous pourrions aboutir à des résolutions meilleures que la longueur d'onde dans le vide. Pour cela, il faut que l'élément focalisant soit une lentille en silicium accolée au prisme, comme discuté dans la section 4.5.3.

Des études préliminaires (utilisant la théorie des faisceaux gaussiens et l'optique de Fourier) nous ont montré qu'avec une lentille convenablement dimensionnée, nous pourrions atteindre une résolution

---

12. On ne trouve que rarement dans catalogues des fournisseurs d'éléments optiques des solutions adaptées au domaine THz...

inférieure à  $200\ \mu\text{m}$  pour une fréquence de 1 THz . Ces lentilles n'étant pas disponible au moment de la rédaction de ce manuscrit, nous n'avons pu démontrer le bien-fondé de cette approche.

### **Résonance de type plasmon-polariton de surface**

La résonance plasmon est utilisée en optique pour exalter les signaux en déposant une fine couche métallique sur la surface de réflexion interne. Ces résonances n'ont pas lieu dans la gamme des ondes THz, mais on pourrait néanmoins utiliser des résonances de type plasmons-polaritons de surface [Masson et Gallot, 2006a] qui présentent des propriétés similaires pour améliorer la sensibilité de la technique.

Nous avons tenté de mettre cela en œuvre en plaçant de fines feuilles d'aluminium micro-perforées, mais nous n'avons pas réussi à assurer le contact optique avec la surface de réflexion interne.



# Conclusions et perspectives

L'étude dans le domaine térahertz, en particulier des impulsions sous-monocycliques, présente comme nous l'avons vu de nombreuses particularités. Après avoir donné une vue d'ensemble de leurs conséquences pratiques et des possibilités qu'elles offrent, nous nous sommes en particulier intéressés à la détection résolue en temps du champ électrique, pour offrir un angle d'approche nouveau lors de l'étude des interactions entre la lumière et la matière. Nous avons décrit le principe de fonctionnement des systèmes de spectroscopie par domaine temporel qui autorisent cette détermination temporelle et que nous avons mis œuvre. Nous avons présenté une application classique de ces systèmes pour effectuer de la spectroscopie par domaine temporel, avant de faire un inventaire des matériaux dans le domaine THz.

Une analyse approfondie des performances du système était nécessaire, et nous avons posé un cadre d'analyse du bruit, notion un peu floue lorsque l'on s'intéresse à des schémas de mesure pompe-sonde. Nous avons en particulier mis à jour l'influence des fluctuations de chemin optique que subissent les faisceaux et fait le lien avec le bruit de phase. Cela nous a permis de la quantifier, en vue de l'étude des phénomènes qui allaient concentrer notre attention par la suite, faisant intervenir la phase. Nous avons ensuite discuté de la notion de phase temporelle et spectrale, pour faire apparaître le rôle central de la phase porteuse-enveloppe et son incidence sur l'aspect temporel des impulsions. Nous avons vu qu'il y avait quelques difficultés à la déterminer et nous avons proposé une manière de la mesurer.

Suite à cela, nous nous sommes intéressés à la notion de polarisation, qui traduit l'aspect vectoriel des champs électromagnétiques. Nous avons fait un bréviaire des effets qui le font intervenir et tenté de déceler une application spécifique qui pourrait profiter des impulsions térahertz.

Nous avons mis en place un système sensible aux deux composantes du champ électrique basé sur l'utilisation de deux antennes de détection croisées. Nous étions dès lors en mesure de connaître la structure complète de l'impulsion. Comme nous étions en présence d'onde très large bande, nous avons cherché dans l'inventaire des techniques optiques une manière de maîtriser la direction du champ électrique ainsi que la différence de phase entre ses deux composantes, tout en conservant le caractère impulsionnel des champs générés. Nous nous sommes arrêtés sur les phénomènes faisant intervenir des interfaces diélectriques en raison de leur faible dépendance en longueur d'onde. Cela nous a permis dans un premier temps de tirer parti des propriétés de l'angle de Brewster, qui permet de discriminer une composante du champ par rapport à l'autre et par là de concevoir un polariseur linéaire. Après avoir discuté de certains aspects temporels, nous en avons conçu un et montré que ses performances étaient excellentes et adaptées au contrôle de la polarisation des impulsions, tout en étant très simple à mettre en œuvre.

De même, pour réussir à générer des états de polarisation circulaires, nous nous sommes intéressés aux phénomènes de réflexion interne totale qui permettent d'occasionner un déphasage différentiel entre les deux composantes du champ. Sur ce principe, nous avons conçu un prisme quart d'onde achromatique

qui permet de générer des impulsions circulaires puis nous en avons analysé les performances. Nous avons tiré profit de la détermination temporelle des champs électriques pour procéder à une analyse originale des états de polarisation.

Fort de l'expérience acquise dans les effets de réflexion interne totale lors de l'étude du prisme quart d'onde achromatique, nous avons décidé d'utiliser les propriétés de déphasage aux interfaces qu'ils induisent, afin de former des images.

Cela s'avérait judicieux, car après avoir mis en œuvre différentes techniques d'imagerie dans le domaine térahertz, nous nous heurtions aux propriétés d'absorption très élevée de l'eau, dont est constituée la majorité des objets biologiques et qui limite la capacité des techniques classiques de s'étendre à biologie. Nous avons donc développé une imagerie térahertz par réflexion interne totale, qui permet d'imager des objets en mesurant les changements que ceux-ci introduisent dans les conditions de réflexion interne totale. Les inhomogénéités dans les objets auxquelles nous sommes sensibles dans le domaine térahertz sont en particulier reliées à leurs différentes concentrations en ions, et nous avons montré que nous étions capables de former des images par l'intermédiaire des variations de phase. L'information de phase étant relativement peu sujette au bruit, cela nous a permis de produire des images de quelques objets particuliers, avant de former l'image d'un neurone de grenouille. La résolution latérale du procédé étant encore relativement mauvaise en raison de quelques considérations expérimentales, nous avons présenté des possibilités d'extension qui permettront d'améliorer substantiellement la résolution du système d'imagerie.

Nous avons fini par montrer que la résolution longitudinale de ce genre de procédé d'imagerie était très inférieure à la longueur d'onde l'impulsion. Une telle résolution est nécessaire lorsque l'on s'intéresse à des ensembles de faible épaisseur, comme des couches cellulaires. Couplée à la sensibilité des ondes térahertz aux différences de concentrations en ions, cela nous laisse envisager de potentielles applications dans l'étude de certains dysfonctionnements cellulaires. Parmi eux, les cellules de patients atteints de la mucoviscidose, maladie due à une anomalie génétique qui provoque une malformation des protéines impliquées dans les échanges ioniques avec le milieu extérieur, difficile d'analyser par des techniques optiques classiques.

## Annexe A

# Modélisation numérique d'une impulsion THz

Les simulations *ab initio* des champs électrique par analyse numérique sont de plus en plus utilisées, à mesure que la puissance de calcul des ordinateurs augmente et que la taille des structures étudiées diminue. Le domaine térahertz met en jeu des longueurs d'ondes qui sont souvent de l'ordre de grandeur des structures que l'on peut étudier expérimentalement, ce qui autorise à mettre en œuvre ce genre d'approche.

Différentes classes d'algorithmes permettent d'effectuer ces simulations, parmi lesquels les algorithmes de FDTD (pour *Finite Difference Time Domain*, utilisé par le logiciel *Meep*) ou de FEM (pour *Finite Element Method*, utilisé par le logiciel *COMSOL Multiphysics®*). Nous avons choisi d'utiliser le logiciel libre *Meep*<sup>1</sup> pour simuler certains effets, parfois pour les appréhender de manière plus intuitive, mais également pour se convaincre que certaines hypothèses qui sous-tendent les formules de l'optique restent valables malgré le caractère extrêmement court des impulsions THz.

Pour pouvoir simuler des champs, il est utile de disposer d'un modèle d'impulsion qui puisse s'exprimer sous *forme close* (exprimées à base de fonctions usuelles). Cela revient à trouver une approximation raisonnable pour nos impulsions.

Voici les modèles que nous avons considérés :

**Modèle physique** Le modèle physique est un modèle tiré de la résolution des équations de la physique des semi-conducteurs et du rayonnement dipolaire. Le modèle proposé par Duvillaret [Duvillaret et al., 2001] s'exprime :

$$E_{\text{mp}}(t) \propto \frac{\partial}{\partial t} \left( \exp \left( \left( \frac{\tilde{\tau}_{\text{las}}}{\tau_{\text{em}}} \right)^2 - \frac{t}{t_{\text{em}}} \right) \text{erfc} \left( \frac{\tilde{t}_{\text{las}}}{2t_{\text{em}}} - \frac{t}{\tilde{t}_{\text{las}}} \right) - \exp \left( \left( \frac{\tilde{\tau}_{\text{las}}}{\tilde{\tau}_{\text{em}}} \right)^2 - \frac{t}{\tilde{t}_{\text{em}}} \right) \text{erfc} \left( \frac{\tilde{t}_{\text{las}}}{2\tilde{t}_{\text{em}}} - \frac{t}{\tilde{t}_{\text{las}}} \right) \right),$$

avec  $\tau_{\text{las}}$  la largeur de l'impulsion fs,  $\tau_{\text{em}}$  le temps de vie des porteurs libres,  $\delta\tau_{\text{em}}$  le temps de collision des porteurs,  $\tilde{\tau}_{\text{las}} = \tau_{\text{las}}/(2\sqrt{\ln(2)})$  et  $1/\tilde{\tau}_{\text{em}} = 1/\tau_{\text{em}} + 1/\delta\tau_{\text{em}}$ .

Ce modèle retranscrit assez bien la forme des impulsions mesurées (figure A.1) en utilisant des caractéristiques physiques du système, que l'on peut extraire de la littérature ou déterminer expérimenta-

1. *Meep* est un logiciel libre (licence GNU GPL) fonctionnant sous environnement Linux. Il disponible à l'adresse : <http://ab-initio.mit.edu/wiki/index.php/Meep>.

lement.

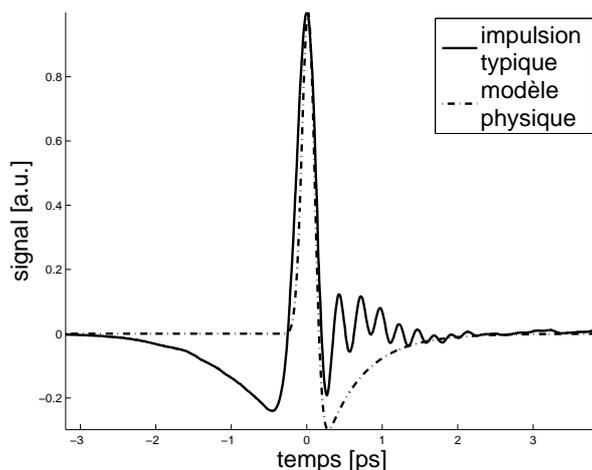


FIGURE A.1 – Modélisation par un modèle physique avec les paramètres  $\tau_{las}=80$  fs,  $\tau_{em}=500$  fs et  $\delta\tau_{em}=30$  fs.

Dans le cas présenté, il faut pour que le modèle s’approche des impulsions mesurées faire l’hypothèse que les impulsions femtosecondes ont des durées de l’ordre de 80 fs, ce qui ne correspond pas à notre système (les impulsions en sortie du laser ont été mesurées à l’aide d’un autocorrélateur optique, indiquant une durée de 12 fs).

Ce modèle ne fait pas apparaître de variable dont la signification serait intuitive et fait intervenir des fonctions peu communes qui ne respectent pas tout à fait la formulation en forme close que nous recherchons.

**Dérivée de gaussienne** On peut simplifier le modèle précédent en considérant que les antennes ont une réponse instantanée : le laser, d’enveloppe gaussienne, génère des photoporteurs sur l’antenne, occasionnant un courant lui aussi selon une enveloppe gaussienne ; le champ rayonné est donc une dérivée de gaussienne. Un tel modèle ne possède qu’un seul paramètre  $\sigma_t$  et s’exprime :

$$E_{dg}(t) \propto t \exp\left(-\frac{t^2}{\sigma_t^2}\right). \quad (\text{A.1})$$

Il est impair temporellement et sa transformée de Fourier est donc naturellement nulle à fréquence nulle, condition nécessaire pour avoir une impulsion propagative. Le spectre d’une dérivée de gaussienne est lui aussi en forme de dérivée de gaussienne, asymétrique avec une lente décroissance vers les hautes fréquences, ce qui correspond également aux spectres des impulsions THz. D’un point de vue temporel (figure A.2), ce modèle s’accorde assez bien avec les mesures (si l’on modifie leur CEP).

Ce modèle s’exprime avec des fonctions simples, mais ne possède pas suffisamment de paramètres libres pour faire correspondre au mieux les simulations aux impulsions THz.

**Enveloppe gaussienne et porteuse sinusoïdale** Nous pouvons utiliser le modèle très classique d’une gaussienne modulée présenté dans l’expression 2.37 :

$$E_{ce} \propto \cos(\omega_0 t + \phi_{CEP}) \exp\left(-\frac{t^2}{\sigma_t^2}\right). \quad (\text{A.2})$$

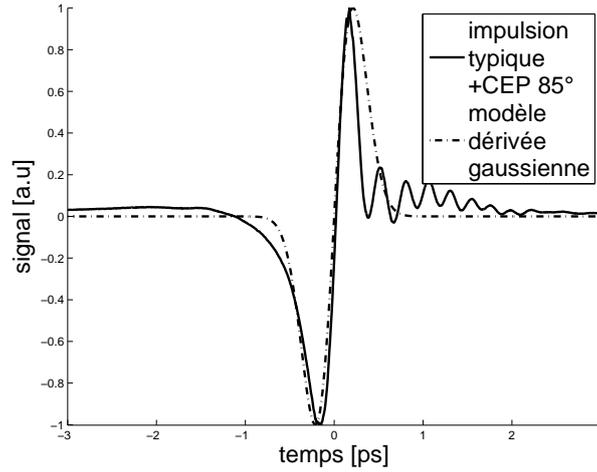


FIGURE A.2 – Modélisation par une dérivée de gaussienne avec le paramètre  $\sigma_t = 0.3$  ps.

Ce modèle présente l'avantage d'avoir trois paramètres libres qui sont la CEP  $\phi_{cep}$ , la fréquence centrale  $\nu_0 = \omega_0 / (2\pi)$  et la largeur de l'enveloppe  $\sigma_t$ , que l'on peut relier à des notions classiques d'optique ultra-rapide. Il permet lui aussi de bien rendre compte des mesures (figure A.3).

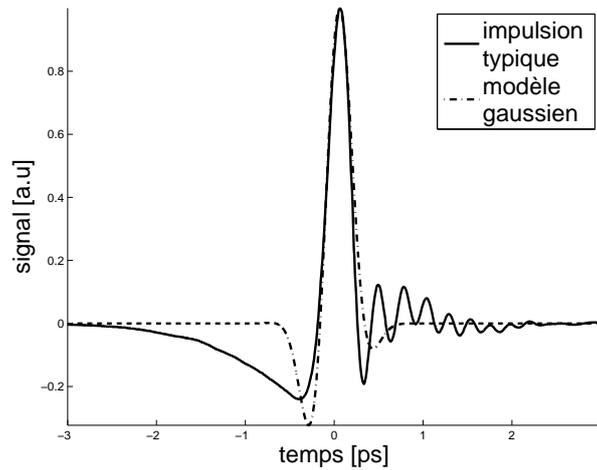


FIGURE A.3 – Modélisation par un modèle gaussien avec les paramètres  $\phi_{cep} = 33^\circ$ ,  $\nu_0 = 1$  THz et  $\sigma_t = 0.3$  ps.

La versatilité de ce modèle est entravée par le fait que dans le cas des impulsions sous-monocycliques ( $\nu_0 \sigma_t < 1$ ), son support spectral déborde sur les fréquences négatives, et qu'il y a donc une composante continue qui n'est pas propagative. Celle-ci sera malgré tout filtrée par les effets de propagation numérique. Notons que dans le cas où la CEP est nulle, ce modèle s'apparente à la dérivée de gaussienne, car la sinusoïde est linéaire au premier ordre ( $\sin(\omega_0 t) \exp(-\frac{t^2}{\sigma_t^2}) \sim \omega_0 t \exp(-\frac{t^2}{\sigma_t^2}) \propto E_{dg}(t)$ ). De plus, le spectre du modèle ne comporte dès lors plus de composante à fréquence nulle).

C'est par conséquent ce modèle que nous avons retenu lors des simulations numériques auxquelles nous nous sommes livrés.



# Bibliographie

- [Abbott et Zhang, 2007] ABBOTT, D. et ZHANG, X.-C. (2007). Scanning the Issue : T-Ray Imaging , Sensing , and Retection. *Proceedings of the IEEE*, 95(8):1509–1513. 15
- [Alberts, 2004] ALBERTS, B. (2004). *Biologie moléculaire de la cellule*. 4 édition. 134, 147, 149
- [Atakaramians et al., 2011] ATAKARAMIANS, S., AFSHAR V., S., NAGEL, M., RASMUSSEN, H. K., BANG, O., MONRO, T. M. et ABBOTT, D. (2011). Direct probing of evanescent field for characterization of porous terahertz fibers. *Applied Physics Letters*, 98(12):121104. 20
- [Atakaramians et al., 2009] ATAKARAMIANS, S., AFSHARV, S., FISCHER, B., ABBOTT, D. et MONRO, T. (2009). Low loss, low dispersion and highly birefringent terahertz porous fibers. *Optics Communications*, 282(1):36–38. 20
- [Auston et al., 1984] AUSTON, D., CHEUNG, K. P., VALDMANIS, J. et KLEINMAN, D. (1984). Cherenkov Radiation from Femtosecond Optical Pulses in Electro-Optic Media. *Physical Review Letters*, 53(16): 1555–1558. 22
- [Awasthi et al., 2008] AWASTHI, S., SRIVASTAVA, a., MALAVIYA, U. et OJHA, S. (2008). Wide-angle, broadband plate polarizer in Terahertz frequency region. *Solid State Communications*, 146(11-12):506–509. 89
- [Axelrod, 2001] AXELROD, D. (2001). Total internal reflection fluorescence microscopy in cell biology. *Traffic*, 2:764–774. 136
- [Azad et al., 2006] AZAD, A. K., ZHAO, Y., ZHANG, W. et HE, M. (2006). Effect of dielectric properties of metals on terahertz transmission subwavelength hole arrays. *Optics letters*, 31(17):2637–9. 151
- [Azzam, 1999] AZZAM, R. M. (1999). Differential reflection phase shift under conditions of attenuated internal reflection. *Journal of the Optical Society of America A*, 16(7):1700. 145
- [Bandyopadhyay et al., 2006] BANDYOPADHYAY, A., STEPANOV, A., SCHULKIN, B., FEDERICI, M. D., SENGUPTA, A., GARY, D. E., FEDERICI, J. F., BARAT, R., MICHALOPOULOU, Z.-H. et ZIMDARS, D. (2006). Terahertz interferometric and synthetic aperture imaging. *Journal of the Optical Society of America. A, Optics, image science, and vision*, 23(5):1168–78. 117
- [Barbieri et al., 2011] BARBIERI, S., RAVARO, M., GELLIE, P., SANTARELLI, G., MANQUEST, C., SIRTORI, C., KHANNA, S. P., LINFIELD, E. H. et DAVIES, A. G. (2011). Coherent sampling of active mode-locked terahertz quantum cascade lasers and frequency synthesis. *Nature Photonics*, (April). 24
- [Barnes et al., 2003] BARNES, W. L., DEREUX, A. et EBBESEN, T. W. (2003). Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424(August):824–830. 20
- [Belabas, 2002] BELABAS, N. (2002). *Spectroscopie femtoseconde cohérente bidimensionnelle dans l'infrarouge*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique. 21

- [Bennett, 1970] BENNETT, J. M. (1970). A critical evaluation of rhomb-type quarterwave retarders. *Applied Optics*, 9(9):2123–9. 101
- [Bensky et al., 1997] BENSKY, T., HAEFFLER, G. et JONES, R. (1997). Ionization of Na Rydberg Atoms by Subpicosecond Quarter-Cycle Circularly Polarized Pulses. *Physical Review Letters*, 79(11):2018–2021. 113
- [Bigourd et al., 2006] BIGOURD, D., CUISSET, A., HINDLE, F., MATTON, S., FERTEIN, E., BOCQUET, R. et MOURET, G. (2006). Detection and quantification of multiple molecular species in mainstream cigarette smoke by continuous-wave terahertz spectroscopy. *Optics letters*, 31(15):2356–8. 18
- [Blanchard et al., 2011] BLANCHARD, F., DOI, A., TANAKA, T., HIRORI, H., TANAKA, H. et KADOYA, Y. (2011). Real-time terahertz near-field microscope. *Optics Express*, 19(9):8277–8284. 119, 127
- [Bonvalet et al., 1995] BONVALET, A., JOFFRE, M., MARTIN, J. L. et MIGUS, A. (1995). Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate. *Applied Physics Letters*, 67(20):2907. 22
- [Born et Wolf, 1999] BORN, M. et WOLF, E. (1999). *Principle of Optics*. 90
- [Bracewell, 1999] BRACEWELL, R. (1999). *The Fourier Transform and Its Applications*. McGraw-Hill Science/Engineering/Math. 31
- [Brückner et al., 2010] BRÜCKNER, C., NOTNI, G. et TÜNNERMANN, A. (2010). Optimal arrangement of 90° off-axis parabolic mirrors in THz setups. *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, 121(1):113–119. 37
- [Brun et al., 2010] BRUN, M.-a., FORMANEK, F., YASUDA, A., SEKINE, M., ANDO, N. et EISHII, Y. (2010). Terahertz imaging applied to cancer diagnosis. *Physics in medicine and biology*, 55(16):4615–23. 129, 132
- [Byrne et al., 2011] BYRNE, M. B., SHAUKAT, M. U., CUNNINGHAM, J. E., LINFIELD, E. H. et DAVIES, A. G. (2011). Simultaneous measurement of orthogonal components of polarization in a free-space propagating terahertz signal using electro-optic detection. *Applied Physics Letters*, 98(15):151104. 82, 86
- [Candès et Wakin, 2008] CANDÈS, E. J. et WAKIN, M. B. (2008). An Introduction To Compressive Sampling. *IEEE Signal Processing Magazine*, (March):21–30. 119
- [Castro-Camus et Johnston, 2009] CASTRO-CAMUS, E. et JOHNSTON, M. B. (2009). Extraction of the anisotropic dielectric properties of materials from polarization-resolved terahertz time-domain spectra. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, 11(10):105206. 82
- [Castro-Camus et al., 2005] CASTRO-CAMUS, E., LLOYD-HUGHES, J., JOHNSTON, M. B., FRASER, M. D., TAN, H. H. et JAGADISH, C. (2005). Polarization-sensitive terahertz detection by multicontact photoconductive receivers. *Applied Physics Letters*, 86(25):254102. 86
- [Chen et al., 2009] CHEN, H., PADILLA, W. J., CICH, M., AZAD, A. K., AVERITT, R. D. et TAYLOR, A. (2009). A metamaterial solid-state terahertz phase modulator. *Nature Photonics*, 3(3):148–151. 20
- [Chen et al., 2007] CHEN, H.-T., O'HARA, J. F., TAYLOR, A. J., AVERITT, R. D., HIGHSTRETE, C., LEE, M. et PADILLA, W. J. (2007). Complementary planar terahertz metamaterials. *Optics Express*, 15(3):1084–95. 20
- [Chen et al., 2000] CHEN, Q., JIANG, Z., XU, G. X. et ZHANG, X.-C. (2000). Near-field terahertz imaging with a dynamic aperture. *Optics Letters*, 25(15):1122–4. 126

- [Cherkassky et al., 2007] CHERKASSKY, V. S., KNYAZEV, B. a., KULIPANOV, G. N., MATVEENKO, a. N., RUDYCH, P. D. et VINOKUROV, N. a. (2007). Study of Polarizer Characteristics with a High-Power Terahertz Free Electron Laser. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 28(3):219–222. 89
- [Choi et al., 2011] CHOI, M., LEE, S. H., KIM, Y., KANG, S. B., SHIN, J., KWAK, M. H., KANG, K.-Y., LEE, Y.-H., PARK, N. et MIN, B. (2011). A terahertz metamaterial with unnaturally high refractive index. *Nature*, 470(7334):369–373. 20
- [Compain et al., 1999] COMPAIN, E., POIRIER, S. et DREVILLON, B. (1999). General and self-consistent method for the calibration of polarization modulators, polarimeters, and mueller-matrix ellipsometers. *Applied optics*, 38(16):3490–502. 80
- [Coutaz, 2008] COUTAZ, J.-L. (2008). *Optoélectronique térahertz*. Edp scienc édition. 17, 26, 50
- [Dai et al., 2009] DAI, J., KARPOWICZ, N. et ZHANG, X.-C. (2009). Coherent Polarization Control of Terahertz Waves Generated from Two-Color Laser-Induced Gas Plasma. *Physical Review Letters*, 103(2):1–4. 22
- [Dai et al., 2004] DAI, J., ZHANG, J., ZHANG, W. et GRISCHKOWSKY, D. (2004). Terahertz time-domain spectroscopy characterization of the far-infrared absorption and index of refraction of high-resistivity, float-zone silicon. *Journal of the Optical Society of America B*, 21(7):1379. 57
- [D’Amico et al., 2007] D’AMICO, C., HOUARD, a., FRANCO, M., PRADE, B., MYSYROWICZ, a., COUAIRO, a. et TIKHONCHUK, V. (2007). Conical Forward THz Emission from Femtosecond-Laser-Beam Filamentation in Air. *Physical Review Letters*, 98(23):8–11. 22
- [de Fornel, 2001] de FORNEL, F. (2001). *Evanescent Waves*. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York. 137, 138
- [De Martino et al., 2003] DE MARTINO, A., KIM, Y.-K., GARCIA-CAUREL, E., LAUDE, B. et DRÉVILLON, B. (2003). Optimized Mueller polarimeter with liquid crystals. *Optics letters*, 28(8):616–8. 81
- [Ding et al., 2010] DING, S.-H., LI, Q., YAO, R. et WANG, Q. (2010). High-resolution terahertz reflective imaging and image restoration. *Applied optics*, 49(36):6834–9. 129
- [Dobroiu et al., 2005] DOBROIU, A., BEIGANG, R., OTANI, C. et KAWASE, K. (2005). Monolithic Fabry-Perot resonator for the measurement of optical constants in the terahertz range. *Applied Physics Letters*, 86(26):261107. 144
- [Dong et al., 2009] DONG, H., GONG, Y., PAULOSE, V. et HONG, M. (2009). Polarization state and Mueller matrix measurements in terahertz-time domain spectroscopy. *Optics Communications*, 282(18):3671–3675. 82, 112
- [Durand et al., 2010] DURAND, M., LIU, Y., HOUARD, a. et MYSYROWICZ, a. (2010). Fine control of terahertz radiation from filamentation by molecular lensing in air. *Optics Letters*, 35(10):1710–2. 23
- [Duvillaret et al., 1996] DUVILLARET, L., GARET, F. et COUTAZ, J.-L. (1996). A reliable method for extraction of material parameters in terahertz time-domain spectroscopy. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2(3):739–746. 53
- [Duvillaret et al., 1999] DUVILLARET, L., GARET, F. et COUTAZ, J.-L. (1999). Highly precise determination of optical constants and sample thickness in terahertz time-domain spectroscopy. *Applied Optics*, 38(2):409–15. 55
- [Duvillaret et al., 2001] DUVILLARET, L., GARET, F., ROUX, J.-F. et COUTAZ, J.-L. (2001). Analytical modeling and optimization of terahertz time-domain spectroscopy experiments, using photoswitches as antennas. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 7(4):615–623. 159

- [Elezzabi et Sederberg, 2009] ELEZZABI, a. Y. et SEDERBERG, S. (2009). Optical activity in an artificial chiral media : a terahertz time-domain investigation of Karl F Lindman's 1920 pioneering experiment. *Optics Express*, 17(8):6600. 83
- [Endres et al., 2009] ENDRES, C. P., DROUIN, B. J., PEARSON, J. C., MÜLLER, H. S. P., LEWEN, F., SCHLEMMER, S. et GIESEN, T. F. (2009). Dimethyl ether : laboratory spectra up to 2.1 THz. *Astronomy and Astrophysics*, 504(2):635–640. 17
- [Enge, 1966] ENGE, H. (1966). *Introduction to nuclear physics*. Addison-Wesley Publishing Company, Inc. 84
- [Faist et al., 1994] FAIST, J., CAPASSO, F., SIVCO, D. L., SIRTORI, C., HUTCHINSON, A. L. et CHO, A. Y. (1994). Quantum Cascade Laser. *Science*, 264:553–556. 23
- [Federici et Moeller, 2010] FEDERICI, J. F. et MOELLER, L. (2010). Review of terahertz and subterahertz wireless communications. *Journal of Applied Physics*, 107(11):111101. 19
- [Federici et al., 2005] FEDERICI, J. F., SCHULKIN, B., HUANG, F., GARY, D. E., BARAT, R., OLIVEIRA, F. et ZIMDARS, D. (2005). THz imaging and sensing for security applications—explosives, weapons and drugs. *Semiconductor Science and Technology*, 20(7):S266–S280. 117
- [Feng et al., 1998] FENG, S., WINFUL, H. G. et HELLWARTH, R. W. (1998). Gouy shift and temporal reshaping of focused single-cycle electromagnetic pulses. *Optics letters*, 23(5):385–387. 88
- [Ferguson et Abbott, 2001] FERGUSON, B. et ABBOTT, D. (2001). De-noising techniques for terahertz responses of biological samples. *Microelectronics Journal*, 32(12):943–953. 119, 129
- [Feynman, 1980] FEYNMAN, R. (1980). *La nature de la physique*. Seuil édition. 84
- [Fraser et al., 2011] FRASER, D. G., GREENWELL, H. C., SKIPPER, N. T., SMALLEY, M. V., WILKINSON, M. a., DEMÉ, B. et HEENAN, R. K. (2011). Chiral interactions of histidine in a hydrated vermiculite clay. *Physical chemistry chemical physics : PCCP*, 13(3):825–30. 84
- [Fukunaga et al., 2007] FUKUNAGA, K., OGAWA, Y., HAYASHI, S. et HOSAKO, I. (2007). Terahertz spectroscopy for art conservation. *IEICE Electronics Express*, 4(8):258–263. 117
- [Gil, 2007] GIL, J. J. (2007). Polarimetric characterization of light and media. *The European Physical Journal Applied Physics*, 40(1):1–47. 81
- [Gong et al., 2009] GONG, Y., DONG, H., HONG, M., MALINI, O., THONG, P. S. P. et BHUVANESWARI, R. (2009). Polarization effect in liver tissue in terahertz band. In *2009 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, numéro 4, pages 1–2. IEEE. 82
- [Greco et al., 1992] GRECO, V., MOLESINI, G. et QUERCIOLI, F. (1992). Remarks on the Gaussian formula for refraction at a single spherical interface. *Am. J. Phys*, 60(2):131–135. 140
- [Grischkowsky et al., 1990] GRISCHKOWSKY, D., KEIDING, S. r., EXTER, M. V. et FATTINGER, C. (1990). Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *Journal of the Optical Society of America B*, 7(10):2006. 17, 57
- [Harrick, 1966a] HARRICK, N. J. (1966a). The rosette—a unipoint multiple internal reflection element. *Applied optics*, 5(7):1236–7. 101
- [Harrick, 1966b] HARRICK, N. J. (1966b). Vertical double-pass multiple reflection element for internal reflection spectroscopy. *Applied optics*, 5(1):1–3. 101
- [Hattori, 2010] HATTORI, T. (2010). Classical theory of two-dimensional time-domain terahertz spectroscopy. *The Journal of Chemical Physics*, 133(20):204503. 21

- [Hebling et al., 2008] HEBLING, J., YEH, K.-L., HOFFMANN, M. C. et NELSON, K. A. (2008). High-Power THz Generation, THz Nonlinear Optics, and THz Nonlinear Spectroscopy. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 14(2):345–353. 51
- [Hirori et al., 2007] HIRORI, H., ARIKAWA, T., NAGAI, M., OHTAKE, H., YOSHIDA, M. et TANAKA, K. (2007). Accurate determination of complex dielectric constants by terahertz time domain attenuated total reflection spectroscopy. *In Infrared and Millimeter Waves, Conference Digest of the 2004 Joint 29th International Conference on 2004 and 12th International Conference on Terahertz Electronics, 2004.*, volume 27, pages 251–252. IEEE. 56
- [Hirori et al., 2004] HIRORI, H., YAMASHITA, K., NAGAI, M. et TANAKA, K. (2004). Attenuated Total Reflection Spectroscopy in Time Domain Using Terahertz Coherent Pulses. *Japanese Journal of Applied Physics*, 43(No. 10A):L1287–L1289. 102, 140, 144
- [Hirota et al., 2006] HIROTA, Y., HATTORI, R., TANI, M. et HANGYO, M. (2006). Polarization modulation of terahertz electromagnetic radiation by four-contact photoconductive antenna. *Optics Express*, 14(10):4486–93. 102
- [Hishida et Tanaka, 2011] HISHIDA, M. et TANAKA, K. (2011). Long-Range Hydration Effect of Lipid Membrane Studied by Terahertz Time-Domain Spectroscopy. *Physical Review Letters*, 106(15):2–3. 151
- [Ho et al., 2010] HO, I.-C., GUO, X. et ZHANG, X.-C. (2010). Design and performance of reflective terahertz air-biased-coherent-detection for time-domain spectroscopy. *Optics Express*, 18(3):2872–83. 25
- [Hofmann et al., 2011] HOFMANN, T., HERZINGER, C., TEDESCO, J., GASKILL, D., WOOLLAM, J. et SCHUBERT, M. (2011). Terahertz ellipsometry and terahertz optical-Hall effect. *Thin Solid Films*, 519(9):2593–2600. 83
- [Hofmann et al., 2006] HOFMANN, T., SCHADE, U., HERZINGER, C. M., ESQUINAZI, P. et SCHUBERT, M. (2006). Terahertz magneto-optic generalized ellipsometry using synchrotron and blackbody radiation. *Review of Scientific Instruments*, 77(6):063902. 83
- [Hoshina, 2009] HOSHINA, H. (2009). Noninvasive mail inspection using terahertz radiation. *SPIE Newsroom*, pages 3–5. 19
- [Houard et al., 2008] HOUARD, A., LIU, Y., PRADE, B., TIKHONCHUK, V. T. et MYSYROWICZ, A. (2008). Strong enhancement of terahertz radiation from laser filaments in air by a static electric field. *Physical review letters*, 100(25):255006. 22
- [Huang et Wang, 2011] HUANG, K.-C. et WANG, Z. (2011). Terahertz Terabit Wireless Communication. *IEEE Microwave Magazine*, (June):108–116. 18
- [Huard, 1994] HUARD, S. (1994). *Polarisation de la lumière*. Masson. 81, 83, 84
- [Ikebe et al., 2010] IKEBE, Y., MORIMOTO, T., MASUTOMI, R., OKAMOTO, T., AOKI, H. et SHIMANO, R. (2010). Optical Hall Effect in the Integer Quantum Hall Regime. *Physical Review Letters*, 104(25):1–4. 86
- [Ikeda et al., 2005] IKEDA, T., MATSUSHITA, A., TATSUNO, M., MINAMI, Y., YAMAGUCHI, M., YAMAMOTO, K., TANI, M. et HANGYO, M. (2005). Investigation of inflammable liquids by terahertz spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 87(3):034105. 56, 117
- [Jackson et al., 2009] JACKSON, J. B., MOUROU, M., LABAUNE, J., WHITAKER, J. F., DULING, I. N., WILLIAMSON, S. L., LAVIER, C., MENU, M. et MOUROU, G. a. (2009). Terahertz pulse imaging for

- tree-ring analysis : a preliminary study for dendrochronology applications. *Measurement Science and Technology*, 20(7):075502. 20, 117
- [Jenkins et al., 2010] JENKINS, G. S., SCHMADEL, D. C. et DREW, H. D. (2010). Simultaneous measurement of circular dichroism and Faraday rotation at terahertz frequencies utilizing electric field sensitive detection via polarization modulation. *The Review of scientific instruments*, 81(8):083903. 83
- [Jepsen et al., 2010] JEPSEN, P. U., COOKE, D. G. et KOCH, M. (2010). Terahertz spectroscopy and imaging - Modern techniques and applications. *Laser & Photonics Reviews*, 166(1):n/a–n/a. 19
- [Jepsen et al., 2007] JEPSEN, P. U., MØLLER, U. et MERBOLD, H. (2007). Investigation of aqueous alcohol and sugar solutions with reflection terahertz time-domain spectroscopy. *Optics Express*, 15(22):14717–14737. 56
- [Jiang et al., 1999] JIANG, Z., ZHANG, X.-C. et MEMBER, S. (1999). Terahertz imaging via electrooptic effect. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 47(12):2644–2650. 25, 131
- [Jiusheng, 2010] JIUSHENG, L. (2010). Optical parameters of vegetable oil studied by terahertz time-domain spectroscopy. *Applied spectroscopy*, 64(2):231–4. 56
- [Jones et al., 2000] JONES, D., DIDDAMS, S., RANKA, J., STENTZ, a., WINDELER, R., HALL, J. et CUNDIFF, S. (2000). Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science (New York, N.Y.)*, 288(5466):635–40. 63
- [Jones, 1941a] JONES, R. C. (1941a). A New Calculus for the Treatment of Optical Systems - I. Description and Discussion of the Calculus. *Journal of the Optical Society of America A*, 31. 77
- [Jones, 1941b] JONES, R. C. (1941b). A New Calculus for the Treatment of Optical Systems - II. Proof of Three General Equivalence Theorems. *Journal of the Optical Society of America A*, 31:493–499. 81
- [Jördens et al., 2009] JÖRDENS, C., SCHELLER, M., WICHMANN, M., MIKULICS, M., WIESAUER, K. et KOCH, M. (2009). Terahertz birefringence for orientation analysis. *Applied Optics*, 48(11):2037–44. 82
- [Kampfrath et al., 2011] KAMPFRATH, T., SELL, A., KLATT, G., PASHKIN, A., MA, S., DEKORSY, T., WOLF, M., FIEBIG, M., LEITENSTORFER, A. et HUBER, R. (2011). Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves. *Nature Photonics*, 5(November 2010):31–34. 21
- [Kan et al., 2010] KAN, W., LEE, W., CHEUNG, W., WALLACE, V. P. et PICKWELL-MACPHERSON, E. (2010). Terahertz pulsed imaging of knee cartilage. *Biomedical Optics Express*, 1(3):967–974. 132
- [Kanda et al., 2007] KANDA, N., KONISHI, K. et KUWATA-GONOKAMI, M. (2007). Terahertz wave polarization rotation with double layered metal grating of complimentary chiral patterns. *Optics Express*, 15(18):11117–25. 82
- [Kanda et al., 2009] KANDA, N., KONISHI, K. et KUWATA-GONOKAMI, M. (2009). Light-induced terahertz optical activity. *Optics Letters*, 34(19):3000–2. 20, 83
- [Kawalec et al., 2004] KAWALEC, T., KASPROWICZ, M. J., JOSEFOWSKI, L. et DOHNALIK, T. (2004). Zeeman Effect Observed in the Evanescent Wave. *Acta Physica Polonica A*, 105(4):349–355. 84
- [Kawase et al., 2003] KAWASE, K., OGAWA, Y., WATANABE, Y. et INOUE, H. (2003). Non-destructive terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints. *Optics express*, 11(20):2549–54. 117
- [Keiding et Grischkowsky, 1990] KEIDING, S. r. et GRISCHKOWSKY, D. (1990). Measurements of the phase shift and reshaping of terahertz pulses due to total internal reflection. *Optics Letters*, 15(1):48–50. 102

- [Kim et al., 2008] KIM, G.-j., JEON, S.-g., KIM, J.-i. et JIN, Y.-s. (2008). Terahertz time domain spectroscopy of petroleum products and organic solvents. *2008 33rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves*, pages 1–2. 56
- [Kindt et Schmuttenmaer, 1996] KINDT, J. T. et SCHMUTTENMAER, C. a. (1996). Far-Infrared Dielectric Properties of Polar Liquids Probed by Femtosecond Terahertz Pulse Spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry*, 100(24):10373–10379. 56
- [Kitoh et al., 2001] KITO, Y., YAMASHITA, M., NAGASHIMA, T. et HANGYO, M. (2001). Terahertz Beam Profiler Using Optical Transmission Modulation in Silicon. *Japanese Journal of Applied Physics*, 40(10B):1113–1115. 124
- [Kleine-Ostmann et Nagatsuma, 2011] KLEINE-OSTMANN, T. et NAGATSUMA, T. (2011). A Review on Terahertz Communications Research. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 32(2):143–171. 19
- [Knab et al., 2010] KNAB, J. R., ADAM, a. J. L., CHAKKITTAKANDY, R. et PLANKEN, P. C. M. (2010). Terahertz near-field microspectroscopy. *Applied Physics Letters*, 97(3):031115. 127
- [Kondo et al., 2003] KONDO, T., NAGASHIMA, T. et HANGYO, M. (2003). Fabrication of Wire-Grid-Type Polarizers for THz Region Using a General-Purpose Color Printer. *Japanese Journal of Applied Physics*, 42(Part 2, No. 4A):L373–L375. 89
- [Korte et al., 1988] KORTE, E. H., JORDANOV, B., KOLEV, D. et TSANKOV, D. (1988). Total Reflection Prisms as Achromatic IR Retarders. *Applied Spectroscopy*, 42(8):1394–1400. 101
- [Kress et al., 2006] KRESS, M., LOEFFLER, T., THOMSON, M. D., DOERNER, R., GIMPEL, H., ZROST, K., ERGLER, T., MOSHAMMER, R., MORGNER, U., ULLRICH, J. et ROSKOS, H. G. (2006). Determination of the Carrier-Envelope Phase of Few-Cycle Laser Pulses with Terahertz-Emission Spectroscopy. *arXiv :physics.optics*, pages 1–6. 63
- [Kumar et al., 2010] KUMAR, S., CHAN, C. W. I., HU, Q. et RENO, J. L. (2010). A 1.8-THz quantum cascade laser operating significantly above the temperature of  $\hbar\omega/k_B$ . *Nature Physics*, 7(February): 1–6. 23
- [Kutteruf, 2003] KUTTERUF, M. (2003). Terahertz spectroscopy of short-chain polypeptides. *Chemical Physics Letters*, 375(3-4):337–343. 18
- [Kužel et al., 2010] KUŽEL, P., NĚMEC, H., KADLEC, F. et KADLEC, C. (2010). Gouy shift correction for highly accurate refractive index retrieval in time-domain terahertz spectroscopy. *Optics Express*, 18(15):15338–15348. 140
- [Labaune et al., 2010] LABAUNE, J., JACKSON, J. B., PAGÈS-CAMAGNA, S., DULING, I. N., MENU, M. et MOUROU, G. a. (2010). Papyrus imaging with terahertz time domain spectroscopy. *Applied Physics A*, 100(3):607–612. 20, 117
- [Landgren et Joensson, 1993] LANDGREN, M. et JOENSSON, B. (1993). Determination of the optical properties of silicon/silica surfaces by means of ellipsometry, using different ambient media. *The Journal of Physical Chemistry*, 97(8):1656–1660. 153
- [Laude-Boulesteix et al., 2004] LAUDE-BOULESTEIX, B., DE MARTINO, A., DRÉVILLON, B. et SCHWARTZ, L. (2004). Mueller polarimetric imaging system with liquid crystals. *Applied optics*, 43(14):2824–32. 81
- [Laurette et al., 2010] LAURETTE, S., TREIZEBRE, a., AFFOUARD, F. et BOCQUET, B. (2010). Subterahertz characterization of ethanol hydration layers by microfluidic system. *Applied Physics Letters*, 97(11): 111904. 154

- [Lecaque, 2006] LECAQUE, R. (2006). *Microscopie Optique de champ proche dans le domaine Terahertz*. Thèse de doctorat, ESPCI. 22, 119, 129, 136
- [Lee et Ahn, 2010] LEE, K. et AHN, J.-W. (2010). Single-pixel coherent diffraction imaging. *Applied Physics Letters*, 97(24):241101. 119
- [Leisawitz, 2000] LEISAWITZ, D. T. (2000). Scientific motivation and technology requirements for the SPIRIT and SPECS far-infrared/submillimeter space interferometers. In *Proceedings of SPIE*, volume 4013, pages 36–46. SPIE. 18
- [Lin et al., 2006] LIN, Q., ZHENG, J. et BECKER, W. (2006). Subcycle Pulsed Focused Vector Beams. *Physical Review Letters*, 97(25):1–4. 67
- [Lin et al., 2010] LIN, Q., ZHENG, J., DAI, J., HO, I.-C. et ZHANG, X.-C. (2010). Intrinsic chirp of single-cycle pulses. *Physical Review A*, 81(4):1–4. 67
- [Liu et al., 2010a] LIU, J., DAI, J., CHIN, S. L. et ZHANG, X.-C. (2010a). Broadband terahertz wave remote sensing using coherent manipulation of fluorescence from asymmetrically ionized gases. *Nature Photonics*, 4(July):627–631. 25
- [Liu et Zhang, 2009] LIU, J. et ZHANG, X.-C. (2009). Terahertz-Radiation-Enhanced Emission of Fluorescence from Gas Plasma. *Physical Review Letters*, 103(23):1–4. 25
- [Liu et al., 2010b] LIU, W., WU, D., WANG, Y., TANG, C., HUANG, W. et ZHAO, Z. (2010b). Terahertz frequency measurement of far-infrared laser with an improvement of Martin–Puplett interferometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 614(2):313–318. 85
- [Liu et al., 2010c] LIU, X., YANG, Q., ZHU, P., QIAO, Z. et LI, T. (2010c). The influence of Goos–Hänchen shift on total reflection of ultrashort light pulses. *Journal of Optics*, 12(3):035214. 143
- [Loewenstein et al., 1973] LOEWENSTEIN, E. V., SMITH, D. R. et MORGAN, R. L. (1973). Optical constants of far infrared materials. 2 : crystalline solids. *Applied Optics*, 12(2):398–406. 57
- [Lu et Chipman, 1996] LU, S.-y. et CHIPMAN, R. A. (1996). Interpretation of Mueller matrices based on polar decomposition. *Journal of the Optical Society of America A*, 13(5):1106. 81
- [Lucarini et al., 2005] LUCARINI, V., INO, Y., PEIPONEN, K.-E. et KUWATA-GONOKAMI, M. (2005). Detection and correction of the misplacement error in terahertz spectroscopy by application of singly subtractive Kramers-Kronig relations. *Physical Review B*, 72(12):3–8. 30
- [MacKay, 2004] MACKAY, D. J. (2004). *Information Theory, Inference and Learning Algorithms*, volume 22. Cambridge University Press. 30
- [Masson, 2007] MASSON, J.-B. (2007). *Imagerie de Contraste Ionique térahertz Physique - Statistique des plasmons polaritons de surface*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique. 20
- [Masson et Gallot, 2006a] MASSON, J.-B. et GALLOT, G. (2006a). Coupling between surface plasmons in subwavelength hole arrays. *Physical Review B*, 73(12):15–16. 155
- [Masson et Gallot, 2006b] MASSON, J.-b. et GALLOT, G. (2006b). Terahertz achromatic quarter-wave plate. *Optics Letters*, 31(2):265–267. 98
- [Masson et Gallot, 2006c] MASSON, J.-B. et GALLOT, G. (2006c). True near field versus contrast near field imaging. *Optics Express*, 14(24):11566–11574. 119
- [Masson et al., 2006] MASSON, J.-B., SAUVIAT, M.-P., MARTIN, J.-L. et GALLOT, G. (2006). Ionic contrast terahertz near-field imaging of axonal water fluxes. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 103(13):4808–12. 127, 132, 133, 134

- [Matsumoto **et al.**, 2011] MATSUMOTO, N., HOSOKURA, T., NAGASHIMA, T. et HANGYO, M. (2011). Measurement of the dielectric constant of thin films by terahertz time-domain spectroscopic ellipsometry. *Optics letters*, 36(2):265–7. 83
- [Meignien **et al.**, 2008] MEIGNIEN, L., MANGENEY, J., CROZAT, P., DUVILLARET, L. et HANNA, M. (2008). Two-port vectorial terahertz electro-optic sampling system. *Applied Physics Letters*, 92(13):131103. 154
- [Mendis et Mittleman, 2010] MENDIS, R. et MITTLEMAN, D. M. (2010). A 2-D Artificial Dielectric With  $0 < n < 1$  for the Terahertz Region. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 58(7):1993–1998. 20
- [Mittleman **et al.**, 1997a] MITTLEMAN, D. M., CUNNINGHAM, J. E., NUSS, M. C. et GEVA, M. (1997a). Noncontact semiconductor wafer characterization with the terahertz Hall effect. *Applied Physics Letters*, 71(1):16. 86
- [Mittleman **et al.**, 1997b] MITTLEMAN, D. M., HUNSCHE, S., BOIVIN, L. et NUSS, M. C. (1997b). T-ray tomography. *Optics letters*, 22(12):904–6. 117, 118
- [Møller **et al.**, 2009] MØLLER, U., COOKE, D. G., TANAKA, K. et JEPSEN, P. U. (2009). Terahertz reflection spectroscopy of Debye relaxation in polar liquids [Invited]. *Journal of the Optical Society of America B*, 26(9):A113. 56
- [Naftaly et Dudley, 2009] NAFTALY, M. et DUDLEY, R. (2009). Methodologies for determining the dynamic ranges and signal-to-noise ratios of terahertz time-domain spectrometers. *Optics Letters*, 34(8):1213–5. 40
- [Naftaly **et al.**, 2005] NAFTALY, M., FOULDS, a. P., MILES, R. E. et DAVIES, a. G. (2005). Terahertz Transmission Spectroscopy of Nonpolar Materials and Relationship with Composition and Properties. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 26(1):55–64. 56
- [Nagashima et Hangyo, 2001] NAGASHIMA, T. et HANGYO, M. (2001). Measurement of complex optical constants of a highly doped Si wafer using terahertz ellipsometry. *Applied Physics Letters*, 79(24):3917. 83
- [Nimtz, 2003] NIMTZ, G. (2003). Superluminal signaling by photonic tunneling. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 9(1):79–85. 137
- [Nimtz et Stahlhofen, 1992] NIMTZ, G. et STAHLHOFEN, A. (1992). Macroscopic violation of special relativity. *J. Phys. I, France*, 2:1693–1698. 137
- [Ossikovski **et al.**, 2009] OSSIKOVSKI, R., FOLDYNA, M., FALLET, C. et DE MARTINO, A. (2009). Experimental evidence for naturally occurring nondiagonal depolarizers. *Optics Letters*, 34(16):2426–8. 84
- [Paulus **et al.**, 2003] PAULUS, G., LINDNER, F., WALTHER, H., BALTUŠKA, a., GOULIELMAKIS, E., LEZIUS, M. et KRAUSZ, F. (2003). Measurement of the Phase of Few-Cycle Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 91(25):1–4. 63
- [Pearce **et al.**, 2003] PEARCE, J., JIAN, Z. et MITTLEMAN, D. M. (2003). Statistics of Multiply Scattered Broadband Terahertz Pulses. *Physical Review Letters*, 91(4):1–4. 84
- [Pedersen et Keiding, 1992] PEDERSEN, J. et KEIDING, S. (1992). THz time-domain spectroscopy of nonpolar liquids. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(10):2518–2522. 56
- [Peiponen **et al.**, 2005] PEIPONEN, K.-E., GORNOV, E., SVIRKO, Y. P., INO, Y., KUWATA-GONOKAMI, M. et LUCARINI, V. (2005). Testing the validity of terahertz reflection spectra by dispersion relations. *Physical Review B*, 72(24):1–5. 30

- [Pendry, 2000] PENDRY, J. (2000). Negative refraction makes a perfect lens. *Physical review letters*, 85(18):3966–9. 20
- [Podzorov, 2009] PODZOROV, A. (2009). *Spectroscopie et imagerie térahertz des systèmes d'intérêt biologique*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique. 127, 132, 133, 134, 136, 145
- [Podzorov et Gallot, 2008] PODZOROV, A. et GALLOT, G. (2008). Low-loss polymers for terahertz applications. *Applied Optics*, 47(18):3254–7. 56
- [Podzorov et al., 2010] PODZOROV, A., WOJDYLA, A. et GALLOT, G. (2010). Beam waist measurement for terahertz time-domain spectroscopy experiments. *Optics Letters*, 35(7):901. 130
- [Raimond, 2000] RAIMOND, J.-M. (2000). *Electromagnétisme et Relativité*. 28
- [Randall et Rawcliffe, 1967] RANDALL, C. M. et RAWCLIFFE, R. D. (1967). Refractive indices of germanium, silicon, and fused quartz in the far infrared. *Applied Optics*, 6(11):1889–95. 57
- [Recur et al., 2011] RECUR, B., YOUNUS, A., SALORT, S., MOUNAIX, P., CHASSAGNE, B., DESBARATS, P., CAUMES, J.-p. et ABRAHAM, E. (2011). Investigation on reconstruction methods applied to 3D terahertz computed tomography. *Optics Express*, 19(6):1312–1314. 118
- [Reid et Fedosejevs, 2006] REID, M. et FEDOSEJEVS, R. (2006). Terahertz birefringence and attenuation properties of wood and paper. *Applied Optics*, 45(12):2766–72. 82
- [Reiten et al., 2001] REITEN, M. T., GRISCHKOWSKY, D. et CHEVILLE, R. a. (2001). Optical tunneling of single-cycle terahertz bandwidth pulses. *Physical Review E*, 64(3):1–5. 137
- [Ren et al., 2009] REN, L., PINT, C. L., BOOSHEHRI, L. G., RICE, W. D., WANG, X., HILTON, D. J., TAKEYA, K., KAWAYAMA, I., TONOUCHI, M., HAUGE, R. H. et KONO, J. (2009). Carbon Nanotube Terahertz Polarizer 2009. *Nano Letters*, 9(7):2610–2613. 89
- [Roddier, 1978] RODDIER, F. (1978). *Distributions et Transformations de Fourier*. Edisciences. 31
- [Ronne, 2000] RONNE, C. (2000). *Intermolecular Liquid Dynamics Studied by THz-Spectroscopy*. Thèse de doctorat, Aarhus University. 56, 133
- [Röseler et al., 2005] RÖSELER, A., SCHADE, U. et HOLLDAK, K. (2005). Spectral THz ellipsometer for the unambiguous determination of all Stokes parameter. In *IEEE Spectroscopy and Material Properties*, pages 190–191. 85
- [Saleh et Teich, 2007] SALEH, M. C. et TEICH, B. E. A. (2007). *Fundamentals of photonics*, second edition. chapitre 6 and 18. Wiley-Interscience. 49, 73, 90
- [Scherger et al., 2011] SCHERGER, B., JÖRDENS, C. et KOCH, M. (2011). Variable-focus terahertz lens. *Optics express*, 19(5):4528–35. 119
- [Schirmer et al., 2010] SCHIRMER, M., FUJIO, M., MINAMI, M., MIURA, J., ARAKI, T. et YASUI, T. (2010). Biomedical applications of a real-time terahertz color scanner. *Biomedical Optics Express*, 1(2):354–366. 119, 131
- [Sengupta et al., 2006] SENGUPTA, A., BANDYOPADHYAY, A., BOWDEN, B. F., HARRINGTON, J. A. et FEDERICI, J. F. (2006). Characterisation of olefin copolymers using terahertz spectroscopy. *Electronics Letters*, 42(25):1–2. 56
- [Shan et al., 2009] SHAN, J., DADAP, J. I. et HEINZ, T. F. (2009). Circularly polarized light in the single-cycle limit : The nature of highly polychromatic radiation of defined polarization. *Optics Express*, 17(9):7431–9. 100

- [Shuvaev et al., 2011] SHUVAEV, a., ASTAKHOV, G., PIMENOV, a., BRÜNE, C., BUHMANN, H. et MOLENKAMP, L. (2011). Giant Magneto-Optical Faraday Effect in HgTe Thin Films in the Terahertz Spectral Range. *Physical Review Letters*, 106(10):1–4. 83
- [Sun et al., 2010] SUN, L., LV, Z.-h., WU, W., LIU, W. et YUAN, J. (2010). Double-grating polarizer for terahertz radiation with high extinction ratio. *Applied Optics*, 49(11):2066–2071. 89
- [Van der Valk, 2005] VAN DER VALK, N. C. J. (2005). *Towards terahertz microscopy*. Thèse de doctorat, Delft. 86, 119
- [Van Kampen et Lurçat, 1961] VAN KAMPEN, N. et LURÇAT, F. (1961). Causalité et relations de Kramers-Kronig. *Journal de Physique et le Radium*, 22(3):179–191. 30
- [Van Rudd et al., 2001] VAN RUDD, J., JOHNSON, J. L. et MITTLEMAN, D. M. (2001). Cross-polarized angular emission patterns from lens-coupled terahertz antennas. *Journal of the Optical Society of America B*, 18(10):1524. 87
- [Vidal, 2009] VIDAL, S. (2009). *Étude théorique et expérimentale de la génération et de la mise en forme d'impulsions térahertz*. Thèse de doctorat, Bordeaux I. 22
- [Vieweg et al., 2011] VIEWEG, N., SHAKFA, M. et KOCH, M. (2011). BL037 : A nematic mixture with high terahertz birefringence. *Optics Communications*, 284(7):1887–1889. 82
- [Walther et al., 2010a] WALTHER, C., SCALARI, G., AMANTI, M. I., BECK, M. et FAIST, J. (2010a). Microcavity laser oscillating in a circuit-based resonator. *Science (New York, N.Y.)*, 327(5972):1495–7. 24
- [Walther et al., 2005] WALTHER, M., CHAMBERS, G., LIU, Z., FREEMAN, M. et HEGMANN, F. (2005). Emission and detection of terahertz pulses from a metal-tip antenna. *Journal of the Optical Society of America B*, 22(11):2357. 86
- [Walther et al., 2010b] WALTHER, M., FISCHER, B. M., ORTNER, A., BITZER, A., THOMAN, A. et HELM, H. (2010b). Chemical sensing and imaging with pulsed terahertz radiation. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 397(3):1009–17. 118
- [Wang et Zhang, 2003] WANG, S. et ZHANG, X.-C. (2003). THz wave tomographic imaging with a Fresnel lens. *Chinese Optics Letters*, 1(1):53–55. 119
- [Wang et al., 2009] WANG, X.-K., CUI, Y., HU, D., SUN, W.-F., YE, J. et ZHANG, Y. (2009). Terahertz quasi-near-field real-time imaging. *Optics Communications*, 282(24):4683–4687. 127, 131
- [Wang et al., 2010] WANG, X.-K., CUI, Y., SUN, W.-F., YE, J. et ZHANG, Y. (2010). Terahertz polarization real-time imaging based on balanced electro-optic detection. *Journal of the Optical Society of America A*, 27(11):2387–2393. 119
- [Wojdyla et Gallot, 2011] WOJDYLA, A. et GALLOT, G. (2011). Brewster's angle silicon wafer terahertz linear polarizer. *Optics Express*, 19(15):14099–14107. 89
- [Xu et al., 2003] XU, J., RAMIAN, G. J., GALAN, J. F., SAVVIDIS, P. G., SCOPATZ, A. M., BIRGE, R. R., ALLEN, S. J. et PLAXCO, K. W. (2003). Extraterrestrial (Microbial) Life Terahertz Circular Dichroism Spectroscopy : A Potential Approach to the In Situ Detection of Life's Metabolic and Genetic Machinery. *Astrobiology*, 3(3). 83
- [Xu et CAO, 2010] XU, X. G. et CAO, J. C. (2010). Nonlinear response induced strong absorptance of graphene in the terahertz regime. *Modern Physics Letters B*, 24(21):2243. 119
- [Yamada et al., 2009] YAMADA, I., TAKANO, K., HANGYO, M., SAITO, M. et WATANABE, W. (2009). Terahertz wire-grid polarizers with micrometer-pitch Al gratings. *Optics Letters*, 34(3):274–6. 89

- [Yandong **et al.**, 2010] YANDONG, G., HUI, D. et PAULOSE, V. (2010). Simple methods to measure partial polarization parameters in the Terahertz band using THz-TDS. *Microwave and Optical Technology Letters*, 52(9):2005–2007. 112
- [Yatsugi **et al.**, 2011] YATSUGI, K., MATSUMOTO, N., NAGASHIMA, T. et HANGYO, M. (2011). Transport properties of free carriers in semiconductors studied by terahertz time-domain magneto-optical ellipsometry. *Applied Physics Letters*, 98(21):212108. 83
- [Yin, 2008] YIN, X. (2008). *Pattern Recognition and Tomographic Reconstruction with Terahertz Signals for Applications in Biomedical Engineering*. Thèse de doctorat, Adelaide. 129
- [Yin **et al.**, 2010] YIN, X., NG, B. W.-h., ZEITLER, J. A., NGUYEN, K. L., GLADDEN, L. F. et ABBOTT, D. (2010). Local Computed Tomography Using a THz Quantum Cascade Laser. *IEEE Sensors Journal*, 10(11):1718–1731. 119
- [Zhang **et al.**, 2009] ZHANG, L., ZHONG, H., DENG, C., ZHANG, C. et ZHAO, Y. (2009). Polarization sensitive terahertz time-domain spectroscopy for birefringent materials. *Applied Physics Letters*, 94(21):211106. 82, 86
- [Zhu **et al.**, 1986] ZHU, S., YU, A. W., HAWLEY, D. et ROY, R. (1986). Frustrated total internal reflection : A demonstration and review. *American Journal of Physics*, 54(7):601. 149, 152

## Résumé de la thèse

Le domaine des ondes térahertz est un zone encore peu explorée du spectre électromagnétique, en dépit des qualités que lui confère sa position intermédiaire entre les ondes radars et l'infrarouge. Les progrès technologiques récents permettent désormais de générer des impulsions térahertz très courtes et offrent la possibilité d'effectuer des mesures résolues en temps des champs électriques associés. La détermination conjointe de l'amplitude et la phase des impulsions laisse libre cours au développement de nouveaux procédés de mesures et ouvre un grand champ de possibilités dans le traitement des données recueillies.

La notion de phase est importante dans l'étude des phénomènes mettant en jeu la polarisation des ondes, et revêt un aspect singulier lorsque l'on s'intéresse à des impulsions ultra-brèves. L'étude de ces particularités a motivé le développement de dispositifs achromatiques adaptés au domaine térahertz tirant parti de certaines conditions de réflexion aux interfaces diélectriques. Ces dispositifs permettent de modifier les amplitudes et les phases différentielles des deux composantes du champ électrique des impulsions THz, afin de générer tous types d'états de polarisation cohérents.

Aux impulsions térahertz sont associées des longueurs d'onde submillimétriques, ce qui assure une résolution spatiale convenable lorsque l'on cherche à former des images d'objets, tout en permettant d'exploiter les informations sur la structure temporelle de l'onde. Nous avons mis en œuvre quelques procédés d'imagerie afin de déterminer lesquels sont les mieux adaptés à l'étude d'objets biologiques, majoritairement constitués d'eau. Afin d'en tirer parti de la sensibilité des ondes aux ions en solution et de limiter l'importance des effets d'absorption dus à l'eau, nous avons mis au point une technique d'imagerie fondée sur le phénomène de réflexion interne totale. Cette technique tire son avantage de la mesure de la phase tout en présentant une excellente résolution transverse, particulièrement adaptée lorsqu'il s'agit d'étudier des objets biologiques fins tels que des neurones ou des monocouches cellulaires.

**mots-clefs** : Térahertz ; Polarisation ; Imagerie ; Biologie ; Réflexion interne totale ; Impulsions optiques ultra-courtes ; Bruit ; Expériences pompe-sonde.

## Abstract

The terahertz domain is a vast yet largely unexplored part of the electromagnetic spectrum, in spite of the virtues conferred by its intermediary situation between radar waves and infrared. Recent technological breakthroughs now allow to generate very short terahertz pulses and to proceed to a time-resolved detection of the associated electric field. The joint determination of phase and amplitude empowers to build new measurement schemes and opens us new possibilities in the processing of collected data.

The phase plays a major role in the study on phenomena involving the polarization of electromagnetic waves, and assumes a peculiar meaning when dealing with ultra-short pulses. The study of these particularities has motivated the design of achromatic polarizing elements fitted for the terahertz range using specific dielectric reflection conditions. These elements allow harnessing the differential phases and amplitudes between the two components of the electric field, so as to generate any kind of coherent polarization state.

Associated with terahertz pulses are with submillimeter wavelengths, which provide a decent spatial resolution when it comes to image objects, while information in the time domain can still be exploited. We carried out some imaging procedures with a view to pick the ones who were the better adapted to biological imaging. In order to take advantage of the sensitivity of the waves to ionic content of solutions and to cope with the high absorption of water in this frequency range, we developed a new imaging technique based on total internal reflection phenomenon. This technique gains its sensitivity from the measurement of the phase, while having an excellent transverse resolution which is well suited when it comes to study thin biological objects such as neurons or cell layers.

**Keywords** : Terahertz ; Polarisation ; Imaging ; Biology ; Total internal reflection ; Ultrafast optics ; Noise ; Pump-probe experiments.

