

Imagerie de phase térahertz d'un modulateur à cristaux liquides à grande ouverture avec électrode interdigitée en ITO

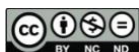
par

Audrey LE BOURLOUT

MÉMOIRE PAR ARTICLE PRÉSENTÉ À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE
SUPÉRIEURE COMME EXIGENCE PARTIELLE À L'OBTENTION DE
LA MAÎTRISE AVEC MÉMOIRE EN GÉNIE DES TECHNOLOGIES DE
LA SANTÉ
M. SC. A.

MONTREAL, LE 12 NOVEMBRE 2024

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC



Audrey Le Boulout, 2024



Cette licence Creative Commons signifie qu'il est permis de diffuser, d'imprimer ou de sauvegarder sur un autre support une partie ou la totalité de cette œuvre à condition de mentionner l'auteur, que ces utilisations soient faites à des fins non commerciales et que le contenu de l'œuvre n'ait pas été modifié.

PRÉSENTATION DU JURY
CE MÉMOIRE A ÉTÉ ÉVALUÉ
PAR UN JURY COMPOSÉ DE :

M. François Blanchard, directeur de mémoire
Département de génie électrique à l'École de technologie supérieure

M. Qingsong Wang, président du jury
Département de génie électrique à l'École de technologie supérieure

M. Claude Thibeault, membre du jury
Département de génie électrique à l'École de technologie supérieure

IL A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC

LE 30 OCTOBRE 2024

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

REMERCIEMENTS

En guise d'avant-propos, je tiens à remercier chaleureusement toutes les personnes qui m'ont soutenue tout au long de mes études, sans qui je n'aurais pas pu mener à bien ce travail.

Je souhaite exprimer ma gratitude envers mon directeur de recherche, le Professeur François Blanchard, pour m'avoir donné l'opportunité de compléter ma maîtrise à l'École de technologie supérieure (ÉTS) et pour toutes les merveilleuses occasions qui m'ont été offertes d'approfondir mes recherches. Son savoir, son soutien constant et ses retours au cours de ces deux années ont enrichi mon travail m'aidant à progresser et à évoluer en tant que scientifique.

Je tiens également à remercier Xavier Ropagnol pour son expertise au laboratoire, rendant ainsi le travail à la fois facile et agréable. Je suis profondément reconnaissante à Mariia pour son aide précieuse de toute heure. Professionnellement et humainement, ils ont contribué à ce que cette expérience soit un succès. De plus, j'aimerais exprimer ma reconnaissance particulière envers les membres de notre groupe. Travailler dans un environnement aussi multidisciplinaire a été une opportunité unique et j'ai beaucoup appris de chaque membre de l'équipe.

Je n'aurais pas pu achever ce mémoire sans le soutien de mes amis de Montréal, de France et du monde entier. Je tiens particulièrement à remercier Claire et Chloé, Erwann, Thomas, Marvin, Alexandre, ainsi que tant d'autres pour les bons moments passés ensemble à l'école. Leur aide et leur soutien précieux ont rendu mes études et ma vie au Québec merveilleuses.

Enfin, je tiens à remercier mes parents, Fabienne et Dominique, pour leur compréhension, leur encouragement et leur foi en moi. Je n'aurais pas pu aller jusqu'au bout sans mon frère Yohann, qui a été à mes côtés tout au long de mes études. Son amour et son soutien constants m'ont donné la force et la motivation pour avancer.

Imagerie de phase térahertz d'un modulateur à cristaux liquides à grande ouverture avec électrode interdigitée en ITO

Audrey Le Boulout

RÉSUMÉ

Nous avons développé avec succès et caractérisé de manière approfondie un dispositif à cristaux liquides (LC) actif à grande ouverture, spécialement conçu pour fonctionner dans la gamme de fréquences des térahertz (THz). Ce dispositif innovant se compose d'une couche de cristaux liquides nématiques prise en sandwich entre des plaques de verre avec des électrodes interdigitées. Si les cristaux liquides sont largement reconnus comme des modulateurs de phase efficaces dans les spectres visible et infrarouge, leur application dans la gamme des THz est limitée et expérimentale. Grâce à une expérimentation méticuleuse utilisant un système de spectroscopie THz dans le domaine temporel (THz-TDS), nous avons systématiquement évalué les capacités de modulation de phase de notre dispositif à cristaux liquides sur un large spectre de fréquences. Cette évaluation a permis non seulement de valider les performances du dispositif, mais aussi de mettre en évidence son uniformité spatiale, ce qui est crucial pour les applications nécessitant un contrôle précis de la phase sur une grande surface. Plus précisément, nos mesures ont démontré des effets de modulation de phase cohérents sur l'ensemble des 25 mm de diamètre du dispositif à cristaux liquides, affirmant son potentiel pour des applications pratiques dans la manipulation des ondes THz. En outre, en tirant parti de la capacité d'imagerie THz à large bande de notre installation, nous avons réalisé une cartographie spatiale complète pour évaluer l'uniformité de la modulation de phase à travers la grande ouverture. Cette capacité est essentielle pour déployer les dispositifs LC en tant que plaques de phase rentables dans les systèmes à ondes THz, où la modulation de phase uniforme est essentielle pour obtenir les résultats souhaités dans les technologies d'imagerie et de communication. En résumé, cette étude marque une avancée significative dans le développement de dispositifs LC adaptés aux fréquences THz, en donnant un aperçu de leurs caractéristiques opérationnelles et en ouvrant la voie à leur intégration dans les technologies THz de la prochaine génération. Nos résultats soulignent le potentiel des solutions à base de LC pour améliorer la fonctionnalité et l'accessibilité des systèmes de traitement des ondes THz, promettant des applications plus larges dans des domaines tels que la spectroscopie, l'imagerie et les télécommunications.

Mots-clés : Térahertz; cristal liquide; spectroscopie temporelle térahertz; plaque de phase

Terahertz phase imaging of large-aperture liquid crystal modulator with ITO interdigitated electrode

Audrey Le Burlout

ABSTRACT

We have successfully developed and thoroughly characterized a large-aperture active liquid crystal (LC) device, specially designed to operate in the terahertz (THz) frequency range. This innovative device consists of a layer of nematic liquid crystals sandwiched between glass plates with interdigitated electrodes. While liquid crystals are widely recognized as effective phase modulators in the visible and infrared spectra, their application in the THz range is limited and experimental. Thanks to meticulous experimentation using a THz time-domain spectroscopy system (THz-TDS), we have systematically evaluated the phase modulation capabilities of our liquid crystal device over a wide frequency spectrum. This evaluation not only validated the device's performance, but also highlighted its spatial uniformity, which is crucial for applications requiring precise phase control over a large area. More specifically, our measurements demonstrated consistent phase modulation effects across the entire 25 mm diameter of the liquid crystal device, affirming its potential for practical applications in THz wave manipulation. In addition, taking advantage of our facility's broadband THz imaging capability, we performed comprehensive spatial mapping to assess phase modulation uniformity across the large aperture. This capability is essential for deploying LC devices as cost-effective phase plates in THz-wave systems, where uniform phase modulation is key to achieving desired results in imaging and communication technologies. In summary, this study marks a significant advance in the development of LC devices suitable for THz frequencies, providing insight into their operational characteristics and paving the way for their integration into next-generation THz technologies. Our results highlight the potential of LC-based solutions to improve the functionality and affordability of THz wave processing systems, promising wider applications in fields such as spectroscopy, imaging and telecommunications.

Keywords: Terahertz radiation; liquid crystal; time-domain spectroscopy; phase plate

TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE	5
1.1 Introduction	5
1.2 Le rayonnement térahertz	5
1.2.1 Propriétés des ondes térahertz	7
1.2.2 Applications et limitations des ondes térahertz	7
1.3 Les bases de l'optique non-linéaire	9
1.3.1 Interaction lumière-matière	9
1.3.2 Propagation de l'onde dans un matériau	10
1.3.3 Optique non linéaire	11
1.3.4 Contrôle de l'intensité lumineuse	12
1.4 Génération et détection des ondes THz	14
1.4.1 Génération et détection des ondes THz	14
1.4.1.1 Émission par antennes photoconductrices	16
1.4.2 Détecteurs THz	18
1.4.2.1 Échantillonnage temporel	18
1.4.2.2 Détection par antenne photoconductrice (PCA)	19
1.5 Spectroscopie térahertz dans le domaine temporel	21
1.5.1 Principe de la spectroscopie THz dans le domaine temporel	21
1.5.2 La transformée de Fourier	24
1.5.3 Paramètres optiques pour la caractérisation	26
1.5.4 Comparaison avec les systèmes dans le domaine fréquentiel	28
1.5.5 Imagerie	30
1.6 Les cristaux liquides	33
1.6.1 Les propriétés physiques	33
1.6.2 Dynamique de la réorientation des LC	36
1.6.3 Applications des cristaux liquides	39
1.7 Les ondes térahertz et les cristaux liquides	40
1.8 Les électrodes interdigitées	44
1.9 Les applications biomédicales	46
1.10 Conclusion	48
CHAPITRE 2 TERAHERTZ PHASE IMAGING OF LARGE-APERTURE LIQUID CRYSTAL MODULATOR WITH ITO INTERDIGITATED ELECTRODE	49
2.1 Introduction	49
2.2 Materials and methods	52
2.2.1 Liquid crystal sample	52
2.2.2 Experimental setup TDS	54
2.3 Results and discussion	56

2.3.1	Normalized transmission	56
2.3.2	Active phase modulation.....	59
2.3.3	Relaxation time measurement of the LC molecules	62
2.4	Conclusion	64
2.5	Appendix.....	65
CONCLUSION.....		67
LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....		70

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1	Spectre électromagnétique avec illustration en bleu de la région térahertz Tiré de Danciu et al. (2019)6
Figure 1.2	Rotation de la polarisation linéaire de la verticale à l'horizontale à l'aide d'une lame à retard de $\lambda/2$13
Figure 1.3	Rotation de la polarisation linéaire de la verticale à circulaire à l'aide d'une lame à retard de $\lambda/4$14
Figure 1.4	Schéma d'une antenne photoconductrice pour la génération de THz : (a) l'impulsion optique (ω) génère des électrons libres ; (b) les électrons sont accélérés dans le champ statique (EDC) et créent un photocourant ($j(t)$) ; (c) l'impulsion THz ($ ETHz(t) $) est générée à partir de l'élément photocourant transitoire Tiré de Zhuldybina (2021, p.42).....16
Figure 1.5	Schéma de détection THz par échantillonnage en temps plusieurs impulsions identiques (illustrées en haut de la figure) sont échantillonnées successivement pour reconstituer la forme de l'onde.....19
Figure 1.6	Schéma de détection THz par antenne photoconductrice : une impulsion optique $h\omega$ entre en incidence avec l'antenne simultanément avec un champ THz (b) Un courant transient proportionnel au champ THz est induit entre les deux électrodes Tiré de Zhuldybina (2021, p.50)20
Figure 1.7	Spectromètre térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) utilisant une antenne photoconductrice (PCA) Tiré de Amirkhan (2017, p.45).....23
Figure 1.8	Principe d'acquisition THz TDS : (a) Schéma simplifié du TDS montrant les différentes positions de la ligne de retard en différentes couleurs, correspondant à des instants précis dans (b); (b) Signal THz mesuré dans le domaine temporel; (c) Transformation de Fourier rapide (FFT) du signal dans le domaine fréquentiel, avec la phase non enveloppée en haut et l'amplitude en bas Tiré de Neu et Schmuttenmaer (2018, p.4)25
Figure 1.9	Diagramme des champs électriques incident, transmis et réfléchi dans une géométrie de plaque épaisse.....26
Figure 1.10	Représentation d'une mesure utilisant THz-TDS pour récupérer les informations spectrales d'un échantillon (amplitude normalisée et différence de phase) Tiré de Zhuldybina (2021, p. 56).....28
Figure 1.11	Spectromètre térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS). L'extension de modulation de phase permet de balayer rapidement la phase des ondes

	térahertz, grâce à un système symétrique utilisant deux étireurs de fibre enroulés autour d'actionneurs piézoélectriques.....	30
Figure 1.12	Système d'imagerie commercialisé en mode de transmission.....	32
Figure 1.13	Image THz d'une carte à puce en plastique (86 mm × 54 mm) utilisée dans les transports publics Tiré de Ajito et al., 2011	32
Figure 1.14	Phases cristallines liquides thermotropes et orientation moyenne de la molécule décrite par un vecteur unitaire n	33
Figure 1.15	Transition de Freedericksz dans un champ électrique. Les couches superficielles restent alignées parallèlement.....	34
Figure 1.16	Contrôle par champ électrique du front d'onde optique traversant la cellule LC	35
Figure 1.17	(a) Constante de Frank élastique et déformations correspondantes : K1 - évasement, K2 - torsion, K3 - flexion. (b) Vecteur directeur dans le plan xOz	36
Figure 1.18	Schéma de la caractérisation THz du comportement et la réponse du LC aux champs magnétiques externe. Tiré de Chen et al., 2004.....	43
Figure 1.19	(a) Photo d'une cellule assemblée et b) schémas de la structure des électrodes. c) et d) Photo de la cellule dans les états OFF et ON et les orientations moléculaires correspondantes (ci-dessus). Tiré de Pusenkova et al., 2024.....	45
Figure 1.20	Image axiale (b-scan) du bord de la main. L'amplitude THz est indiquée en niveaux de gris et est tracée en fonction du délai optique (axe vertical) et de la position en x à travers la zone scannée (axe horizontal). La diminution de l'épaisseur du stratum corneum, de la paume ($x = 30$ mm) au dos de la main ($x = 70$ mm), est clairement visible.	47
Figure 2.1	(a) Illustration of the LC sample with its physical dimension. (b) Configuration of the electrodes deposited on the glass substrate. The liquid crystal is inserted between the two substrates. (c) Illustration of molecule orientation as a function of bias voltage..	54
Figure 2.2	(a) Schematic of the THz-TDS system. (b) Spectra of Fourier transform of the THz pulse and the time-domain signal in inset of the reference (blue) and different samples.	56
Figure 2.3	(a) Visible image of the LC sample with its rotating mount. (b) Phase shift vs. frequency at various angles, with (c) showing maximum (red) and minimum (blue) phase shifts. (d) Normalized transmission of a single	

glass substrate with ITO electrode. Normalized transmission of the LC sample (e) without bias voltage, and (f) with bias voltage. All data are normalized to a reference pulse in air without sample, and taken as a function of THz bandwidth and sample rotation angle.....59

Figure 2.4	(a) TDS image of phase shift between non-active and active cell at 180 degrees. (b) TDS image of phase shift between non-active and active cell at 270 degrees. (c) Phase shift between non-active and active vs position on the cell at different angle.....62
Figure 2.5	Real-time phase response to voltage activation and deactivation. Zoomed view of activation in inset64
Figure 2.6	TDS image of phase value for (a) non-active and (c) active cell at 270 degrees. TDS image of phase value for (b) non-active and (d) active cell at 180 degrees66

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

CW	continuous wave
EM	electromagnetic
EO	electro-optic
FFT	fast fourier transform
GaP	phosphure de gallium
ITO	indium tin oxide
LC	liquid crystal
NLC	nematic liquid crystal
NIR	near infrared
PCA	photoconductive antenna
TDS	time-domain spectroscopy
THz	terahertz
VIS	visible

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

GHz	gigahertz
THz	téraherz
λ	longueur d'onde
ν	fréquence
\vec{E}	vecteur champ électrique
\vec{P}	polarisation
ϵ_0	permittivité électrique du vide
μ_0	perméabilité magnétique du vide
ϵ_r	permittivité relative
μ_r	perméabilité relative
j_{ext}	densité de courant
T, t	temps
∇	opérateur nabla
$\frac{\partial}{\partial t}$	dérivée partielle
$\frac{d}{dt}$	dérivée totale
$I(z)$	intensité
c	vitesse de la lumière
k	vecteur d'onde
n	indice de réfraction
α	coefficient d'absorption
\propto	proportionnalité

INTRODUCTION

0.1. Contexte et problématique

Au cours des dernières années, la technologie THz a connu une croissance remarquable, avec un intérêt fort pour les applications en spectroscopie dans le domaine temporel (Tonouchi, 2007), l'imagerie (Zhong et al., 2004), et les applications biomédicales (Castro-Camus et al., 2008, Markelz et al., 2007). Ces applications nécessitent une variété d'éléments optiques THz actifs et passifs tels que des polariseurs, des atténuateurs, des commutateurs, des modulateurs et des déphaseurs, qui sont encore rarement explorés à ce jour (Vasic et al., 2017, Siles et al., 2015, Zografopoulos et al., 2015, Rahm et al., 2013). Les modulateurs térahertz (THz) jouent un rôle crucial dans plusieurs applications émergentes, notamment dans les domaines des communications (Ma et al., 2019) et de l'imagerie (Guerboukha et al., 2018). Dans ces domaines, il est très souhaitable d'avoir un contrôle actif de l'amplitude, de la phase et de la fréquence, par exemple pour le développement des Surfaces Intelligentes Reconfigurables (RIS) (Ma et al., 2019). Les ondes THz, étant naturellement plus grandes que celles de la lumière visible (VIS) ou du proche infrarouge (NIR), présentent des avantages tout en posant certains défis. Elles pourraient faciliter la fabrication de filtres ou de structures résonantes THz, sans nécessiter des techniques complexes en salle blanche (Ahmad et al., 2024). Pour le contrôle actif, les cristaux liquides (LC), parfois associés à une structure résonante, restent un choix particulièrement intéressant (Yang et al., 2023). Comme dans le cas des applications en lumière visible (Galstian et al., 2017), les propriétés anisotropes et diélectriques des LC pourraient étendre considérablement les applications THz, ouvrant la voie à des technologies avancées telles que les déphaseurs (Ding et al., 2019), les absorbeurs et les filtres (Wang and al., 2020), les RIS avec lignes de retard (Neuder et al., 2024), et les décalateurs de fréquence (Chen et al., 2015), entre autres. En pratique, la plupart des conceptions intègrent une structure résonante avec un matériau LC (métasurface), permettant à la structure résonante de capturer efficacement les ondes THz à la fréquence de fonctionnement tout en réduisant la longueur d'interaction avec le matériau LC.

De manière surprenante, certains matériaux, comme les cristaux liquides (LC) peuvent présenter une biréfringence assez importante (de l'ordre de 0,2 à 0,3) aux fréquences THz. De plus, un couple diélectrique appliqué par des tensions modérées (quelques volts) peut réorienter le directeur, modifiant ainsi la différence de chemin optique permettant ainsi un changement maximal possible. Cependant, il y a des différences importantes par rapport aux gammes VIS ou NIR. Les ondes THz sont généralement collimatées avec de grandes optiques, comme des miroirs paraboliques de 25 à 50 mm de diamètre. Par conséquent, des modulateurs et des filtres THz de taille similaire sont nécessaires pour obtenir une modulation dans un plan de distribution de phase plat, c'est-à-dire non au foyer. De plus, l'utilisation de pulses large bande en mode transmission peut s'avérer difficile si le modulateur est un dispositif LC. Bien que l'intérêt pour divers types de modulateurs ait considérablement augmenté dans la recherche scientifique actuelle (Degl'Innocenti et al., 2022), les études sur les modulateurs à base de LC à grande ouverture et large bande dans la gamme THz restent limitées (Wu et al., 2006).

0.2. Objectifs

Les modulateurs à LC ont de nombreuses applications potentielles par leur capacité à être contrôlé activement. Toutefois, ces domaines d'utilisation, voire de nouvelles implémentations, nécessitent une compréhension suffisante du comportement de ces structures. Dans le cadre de ce travail, nous nous proposons de :

- (i) Tout d'abord, révéler le phénomène d'intégration de configurations d'électrodes qui interagissent minimalement avec les ondes THz.
- (ii) Ensuite, comprendre la relation entre la longue longueur d'interaction des ondes THz avec les LC et leur forte absorption dans les liquides.

0.3. Contributions

Dans cette recherche, nous explorons une nouvelle structure de cellule à cristaux liquides (LC) à grande ouverture, équipée d'électrodes interdigitées de type oxyde d'indium-étain (ITO) à faibles pertes pour les ondes THz. Traditionnellement, les matériaux utilisés pour ces

électrodes sont hautement résistifs et donc peu adaptés aux ondes THz. L'objectif de notre étude est de valider l'utilisation d'électrodes de type ITO, qui permettent la modulation de grandes épaisseurs de cristaux liquides par l'effet du champ de frange.

De plus, il est essentiel que l'orientation des électrodes n'atténue pas la bande de fréquence utile pour ce modulateur. Nous avons concentré nos efforts sur l'analyse des images de phase, afin de mettre en lumière les variations de biréfringence des cristaux liquides en fonction de la fréquence des ondes THz.

Les différents résultats de nos travaux ont conduit à la publication d'un (01) article de journal et de deux (02) articles de conférences comme mentionnés ci-dessous :

Article de journal:

A. Le Boulout, A. Pusenkova, J. Lafreniere-Greig, X. Ropagnol, T. Galstian, and F. Blanchard, "Terahertz phase imaging of large-aperture liquid crystal modulator with ITO interdigitated electrode," J. Phys. D: Appl. Phys., (2024).

Articles de conference:

- (i) **A. Le Boulout**, A. Pusenkova, M. Zhuldybina, X. Ropagnol, T. Galstian and F. Blanchard, "Characterization of Active Liquid Crystal With Continuous Terahertz Waves," 2023 Photonics North (PN), Montreal, QC, Canada, 2023, pp. 1-2.
- (ii) **A. Le Boulout**, A. Pusenkova, M. Zhuldybina, X. Ropagnol, T. Galstian and F. Blanchard, "Characterization of active liquid crystal: comparison using continuous and time domain terahertz techniques," 2023 48th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), Montreal, QC, Canada, 2023, pp. 1.

0.4. Structure de la thèse

Cette thèse est rédigée sous forme d'article. Ainsi, pour atteindre nos objectifs, notre travail est subdivisé comme suit : après cette introduction générale, une revue de la littérature est présentée dans le premier chapitre. Nous présentons ici quelques propriétés du rayonnement THz et parmi les différentes méthodes de génération d'ondes THz, nous expliquerons la génération par antenne photoconductrice (PCA). Les techniques de détection des ondes THz, notamment l'échantillonnage temporel THz et la détection par PCA, y sont également abordées. Le principe de la TDS utilisée durant les expériences, ainsi que les méthodes de spectroscopie THz en onde continues (CW) et leur comparaison, sont expliqués. De même, une attention est portée sur la physique des cristaux liquides étudiés.

Le deuxième chapitre présente et discute les résultats sur l'article de revue intitulé « Terahertz phase imaging of large-aperture liquid crystal modulator with ITO interdigitated electrode ». Une étude détaillée et approfondie du comportement de la cellule de cristaux liquides est faite pour ainsi révéler une multitude d'informations exhibées par ce dispositif.

Enfin, cette thèse se termine par une conclusion générale qui résume les travaux effectués et propose quelques points/recommandations et améliorations pour de futures recherches.

CHAPITRE 1

REVUE DE LITTÉRATURE

1.1 Introduction

Grâce au développement des domaines tels que les communications avancées et l'imagerie, on assiste de plus en plus à une forte demande de dispositifs capables de contrôler les ondes THz. Systématiquement, ces applications très exigeantes nécessitent des ajustements précis, et les modulateurs THz à cristaux liquides ouvrent de nouvelles possibilités dans le traitement des signaux. La structure du chapitre est la suivante : après une brève revue du rayonnement THz et des notions de base d'optique, la sous-section 1.4 présente les méthodes de génération et de détection des ondes térahertz utilisées pour analyser les échantillons décrits dans ce mémoire. La section 1.5 est consacrée à la spectroscopie térahertz dans le domaine temporel utilisée pour caractériser le comportement des matériaux étudiés. Ensuite, la section 1.6 décrit la composition et le comportement de la cellule examinée dans cette étude. Puis, la section 1.7 s'attarde sur les applications en lien avec les ondes térahertz et les cristaux liquides. Enfin, les deux dernières sections traitent des électrodes interdigitées utilisées dans nos travaux et sur les applications biomédicales.

1.2 Le rayonnement térahertz

Les ondes électromagnétiques dans la gamme de fréquences THz peuvent interagir de manière fascinante avec des matériaux physiques, chimiques et biologiques complexes. Divers systèmes ayant des temps de vie caractéristiques de l'ordre de la picoseconde peuvent être étudiés dynamiquement par la spectroscopie THz en domaine temporel (THz-TDS). Cette technique trouve des applications en physique, science des matériaux, chimie, biomédecine et ingénierie. La génération et la détection des radiations THz peuvent se faire de différentes manières en fonction de leur application. La génération et la détection cohérente d'impulsions THz à large bande passante reposent sur des systèmes laser ultrarapides capables de générer des impulsions optiques de durée femtoseconde. Celles-ci permettent de mesurer le champ

électrique d'une onde THz en amplitude et en phase. En prenant une mesure de référence et une mesure à travers un échantillon, nous obtenons une spectroscopie résolue temporellement, également connue sous le nom de spectroscopie THz en domaine temporel (THz-TDS) (Grischkowsky et al, 1990). Les impulsions THz sont généralement générées par des antennes photoconductrices (Miyamaru et al., 2010), la rectification optique (Blanchard et al., 2011), tandis que la détection se fait par antennes photoconductrices ou échantillonnage électro-optique par exemple. Une autre méthode de spectroscopie THz repose sur la radiation THz en onde continue (CW), c'est-à-dire par un balayage en fréquence, également connue sous le nom de spectroscopie THz en domaine fréquentiel (Liebermeister et al., 2021). Cela nécessite des émetteurs et récepteurs de types photomixeurs (Matsuura, 1997). Une des techniques de détection THz, la détection hétérodyne, consiste à abaisser le signal térahertz à des fréquences suffisamment basses pour en faciliter l'amplification et le traitement (Kaya et al., 2016). Le spectre térahertz (THz) est une région du spectre électromagnétique qui se situe entre les fréquences infrarouges (IR) et les micro-ondes, couvrant une gamme de fréquences de 0,1 à 10 THz (voir Figure 1.1). Historiquement, cette région était connue sous le nom de « gap » en raison du manque de méthodes efficaces pour générer et détecter ces ondes. Toutefois, au cours des dernières décennies, les avancées technologiques ont comblé ce fossé, rendant le rayonnement THz accessible et utilisable pour diverses applications (Mittleman, 2017).

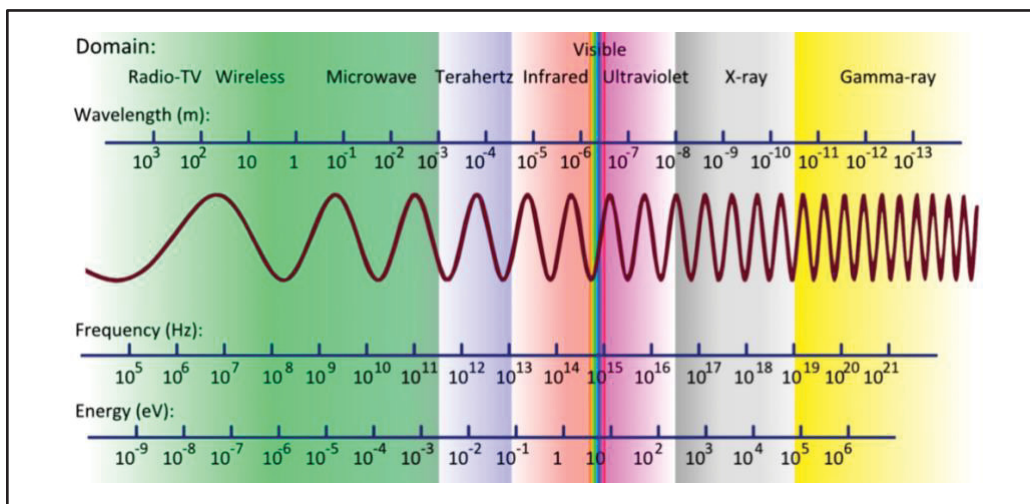


Figure 1.1 Spectre électromagnétique avec illustration en bleu de la région térahertz

Tiré de Danciu et al. (2019)

1.2.1 Propriétés des ondes térahertz

Les ondes THz ont des propriétés remarquables qui les rendent utiles pour un large éventail d'applications. Ces radiations peuvent pénétrer des matériaux opaques tels que les emballages, les sacs de livres, le carton ondulé, les vêtements et les chaussures, ce qui permet de détecter des objets nocifs cachés à l'intérieur. Avec une longueur d'onde plus courte que les micro-ondes, les ondes THz offrent une meilleure résolution (Pickwell et Wallace, 2006). Leur faible énergie photonique (de l'ordre de quelques meV) les rend non nocives et non ionisantes pour les organismes vivants, idéales pour les applications biomédicales. Elles présentent également moins de dispersion que les ondes infrarouges et optiques en raison de leurs plus grandes longueurs d'onde. Les ondes THz sont également fortement absorbées par les molécules d'eau, ce qui est lié à l'étirement et à la torsion des liaisons hydrogène. La région THz est riche en propriétés chimiques et physiques, y compris diverses vibrations moléculaires telles que les vibrations à basse fréquence, les vibrations des phonons cristallins, les rotations moléculaires et l'étirement et la torsion des liaisons hydrogène. Au niveau chimique, elle permet d'identifier et de caractériser de nombreuses molécules grâce à leurs signatures vibrationnelles spécifiques. Sur le plan physique, les ondes THz interagissent de manière unique avec la matière, permettant l'imagerie non-destructive et l'étude des propriétés électroniques de certains matériaux. Cette polyvalence ouvre la voie à de nombreuses applications potentielles, notamment en chimie, physique, biologie et télécommunications. Par rapport aux dispositifs fonctionnant dans les gammes des micro-ondes et des infrarouges, les ondes THz offrent une plus grande largeur de bande, car les micro-ondes ont une largeur de bande limitée en raison de la diversité des services qu'elles utilisent. En outre, contrairement au rayonnement infrarouge, les THz pénètrent mieux les matériaux diélectriques et sont moins sensibles à la diffusion de Rayleigh et de Mie, tout en présentant une perte de signal plus faible dans des conditions atmosphériques spécifiques telles que le brouillard (Praveena et al., 2022).

1.2.2 Applications et limitations des ondes térahertz

Les propriétés uniques des ondes THz dans le spectre électromagnétique en fait une solution attrayante pour les applications nécessitant une inspection non invasive et non destructive des

matériaux (Fan et al., 2017). L'une des principales applications non destructives des ondes THz est la spectroscopie. En effet, leur utilisation en spectroscopie est considérée comme complémentaire des technologies infrarouges disponibles dans le commerce, en raison de leur plage dynamique supérieure dans l'infrarouge lointain et de leur capacité à identifier des empreintes moléculaires spécifiques telles que l'eau, les explosifs, les stupéfiants et certains produits pharmaceutiques (Jepsen et al., 2011). En outre, les ondes THz peuvent pénétrer de nombreux matériaux opaques aux ondes optiques, tels que les polymères, le plastique, le papier et le bois, ce qui les rend idéales pour inspecter ces matériaux (Jansen et al., 2010). Leur capacité à pénétrer des matériaux tels que le béton et divers matériaux diélectriques les rend également intéressants pour les inspections de sécurité dans le secteur de la construction (Tao et al., 2020). Une des particularités des ondes THz réside dans leurs méthodes de détections qui permet pour certaines de détecter le champ électrique directement plutôt que l'intensité de l'onde électromagnétique comme c'est largement le cas pour les ondes optiques. Cette spécificité est un atout incroyable pour faire de la spectroscopie. En effet, en détectant la variation du champ électrique en fonction du temps, ceci nous permet de mesurer toute la bande spectrale résolue en amplitude et en phase. Ces deux éléments nous permettent d'évaluer l'absorption et l'indice de réfraction en fonction des fréquences pour une grande variété d'échantillons.

En plus des applications spectroscopiques, les ondes THz offrent de nombreuses autres utilisations potentielles. En effet, les ondes THz ont un grand potentiel dans des domaines tels que l'imagerie (Jansen et al., 2010), le contrôle de la qualité (Zhuldybina et al., 2021) et les télécommunications (Akyildiz et al., 2014). Leur position dans la bande électromagnétique en fait une avancée logique pour la prochaine génération de technologies de communication sans fil. Si les caractéristiques uniques et les avantages des ondes THz par rapport à d'autres parties du spectre électromagnétique sont fascinants, il est essentiel de reconnaître plusieurs limites associées à cette technologie. Tout d'abord, la résolution des systèmes d'imagerie THz est limitée par leur longueur d'onde, alors que les fréquences plus élevées offrent une meilleure résolution. Bien que la spectroscopie en champ proche soit une réponse à cette limitation, elle n'est pas universellement adaptée (Tonouchi et al., 2007). Deuxièmement, la propagation des

ondes THz est sensible à divers paramètres atmosphériques tels que la présence de vapeur d'eau, qui absorbe ces ondes dans l'air, limitant ainsi leur portée effective pour la transmission d'informations. Bien que des recherches soient en cours pour étendre cette portée, cette limitation reste importante lors de la conception des systèmes THz (Chen et al., 2021). Les systèmes THz actuels consomment beaucoup d'énergie, en particulier ceux basés sur la génération optique par laser, avec une faible efficacité de conversion de l'énergie en champs THz (Chen et al., 2021). L'augmentation de la puissance émise pour compenser la limitation de la distance accentue encore ce problème, tout en introduisant des problèmes de sécurité sanitaire associés à des niveaux de puissance élevés (Woodward et al., 2005). En résumé, malgré leur potentiel, les ondes THz sont encore confrontées à plusieurs défis majeurs qui limitent leur intégration à grande échelle dans l'industrie. Notons qu'un des éléments primordiaux qui n'est pas encore bien établi dans le domaine des ondes THz est la capacité de moduler activement ces signaux en phase. En effet, tant l'imagerie que le domaine des communications aux fréquences THz bénéficieraient grandement d'un dispositif capable de contrôler avec précision la phase de l'onde.

1.3 Les bases de l'optique non-linéaire

1.3.1 Interaction lumière-matière

Afin d'illustrer l'interaction de la lumière avec la matière, les équations de Maxwell décrivent les phénomènes électromagnétiques en général. Dans un milieu diélectrique et isotrope, ces équations sont liées et formulées tel que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \vec{D} = \rho_{ext}, \\ \nabla \vec{B} = 0, \\ \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \vec{H} = j_{ext} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}, \end{array} \right. \quad (1.1)$$

avec le champs déplacement diélectrique \vec{D} , le vecteur induction magnétique \vec{B} , le champ électrique \vec{E} , le champ magnétique \vec{H} , la densité externe de charge ρ_{ext} et la densité externe de courant j_{ext} . Lorsque le champs magnétique \vec{H} et électrique \vec{E} agissent sur les matériaux, ils peuvent induire ou réorienter les dipôles magnétiques et électriques. Dans le matériau, le moment dipolaire électrique par unité de volume est représenté par la polarisation \vec{P} , alors que le moment magnétique par unité de volume est désigné par l'aimantation \vec{M} . Les relations reliant ces composantes sont :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (1.2)$$

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0} \vec{B} - \vec{M} \quad (1.3)$$

avec ϵ_0 la permittivité électrique du vide et μ_0 la perméabilité magnétique du vide.

1.3.2 Propagation de l'onde dans un matériau

Les phénomènes électromagnétiques obéissent et sont régis par les équations de Maxwell. La spectroscopie TDS utilise les concepts et principes de ces équations pour comprendre et analyser comment les impulsions THz interagissent avec divers matériaux, permettant d'en déduire leurs propriétés optiques et électriques. Pour montrer que l'onde progressive est une solution des équations de Maxwell, il est possible de les écrire sous la forme suivante :

$$\nabla^2 E - \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0, \quad (1.4)$$

$$\nabla^2 B - \frac{\epsilon_r \mu_r}{c^2} \frac{\partial^2 B}{\partial t^2} = 0. \quad (1.5)$$

L'indice de réfraction complexe peut être décrit par :

$$\tilde{n}(\omega) = \sqrt{\epsilon(\omega)\mu(\omega)}. \quad (1.6)$$

En prenant $\mu(\omega) = 1$, le comportement de l'indice de réfraction est donc déterminé par la permittivité complexe $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ par

$$\tilde{n} = n + ik = \sqrt{\epsilon_1 + i\epsilon_2} \quad (1.7)$$

Ainsi, l'indice de réfraction réelle $n(\omega)$ définit la propagation de l'onde dans le matériau, tandis que la partie imaginaire $k(\omega)$ est responsable de l'atténuation de l'onde et donc appelée coefficient d'extinction. Ce coefficient est corrélé au coefficient d'absorption α de la loi de Beer tel que :

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha z}. \quad (1.8)$$

Il décrit la décroissance exponentielle de l'intensité $I(z)$ d'une onde se propageant dans un milieu absorbant suivant la direction z . Sachant que $I(z, t) \propto |E(z, t)|^2$, il s'ensuit donc que

$$\alpha(\omega) = \frac{2\omega k(\omega)}{c}. \quad (1.9)$$

1.3.3 Optique non linéaire

La théorie ondulatoire de la lumière repose sur le principe de superposition, selon lequel les ondes dans un milieu linéaire peuvent être superposées sans interférer les unes avec les autres. Toutefois, ce principe ne s'applique plus aux milieux non linéaires. Dans ce cas, la réponse du matériau au champ électromagnétique, décrite ci-dessus pour les faibles intensités, devient non linéaire pour les champs plus élevés. La polarisation diélectrique réagit alors de manière non linéaire au champ électrique de la lumière, ce qui entraîne une interaction complexe entre les champs et le matériau. Pour modéliser ce comportement, il est indispensable d'utiliser la relation de Taylor pour la polarisation non linéaire en fonction du champ électrique externe.

$$P(E) = \epsilon_0 [\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots + \chi^{(m)}E^m]. \quad (1.10)$$

où $\chi^{(m)}$, $m > 1$ dépendent fortement du matériau et apparaissent à des champs électriques élevés.. Le premier terme de l'équation joue un rôle important dans l'optique linéaire et est lié aux phénomènes optiques conventionnels tels que la réflexion, la réfraction, l'absorption et la diffusion. De plus, ce type d'interaction non linéaire joue un rôle clé pour la génération des impulsions THz de large bande (Thomson et al., 2007).

1.3.4 Contrôle de l'intensité lumineuse

Après avoir étudié la théorie ondulatoire de la lumière, nous pouvons nous intéresser au contrôle de la lumière et plus précisément sa polarisation. En effet, il existe différents dispositifs tels que les polariseurs ou lames d'ondes capables de transmettre et modifier l'état de polarisation d'un faisceau lumineux sans le dévier. Un retardateur d'onde est un dispositif dans lequel deux polarisations orthogonales se propagent à des vitesses de phase différentes, de sorte que l'une est retardée par rapport à l'autre. Généralement, ils sont composés de matériaux biréfringents comme le quartz de cristal. Ils sont capables de séparer la lumière polarisée incidente en différentes orientations. La lumière polarisée le long de l'axe rapide possède un indice de réfraction inférieur et traverse les lames à retard plus rapidement que la lumière polarisée le long de l'axe lent. Le retard est défini comme le déphasage qui se produit entre le composant de polarisation orienté le long de l'axe rapide et celui orienté le long de l'axe lent. Il peut être parfois nécessaire de modifier la polarisation d'un système optique. Par exemple, les lasers sont généralement polarisés horizontalement. Si le système requiert que la lumière laser se réfléchisse sur une surface métallique, cela pose un problème, car les miroirs fonctionnent de manière optimale avec une lumière polarisée verticalement. Une lame à retard de $\lambda/2$ dont les axes sont orientés à 45° peut être utilisée pour faire face à ce problème, ce qui entraîne une rotation de la polarisation vers l'axe vertical.

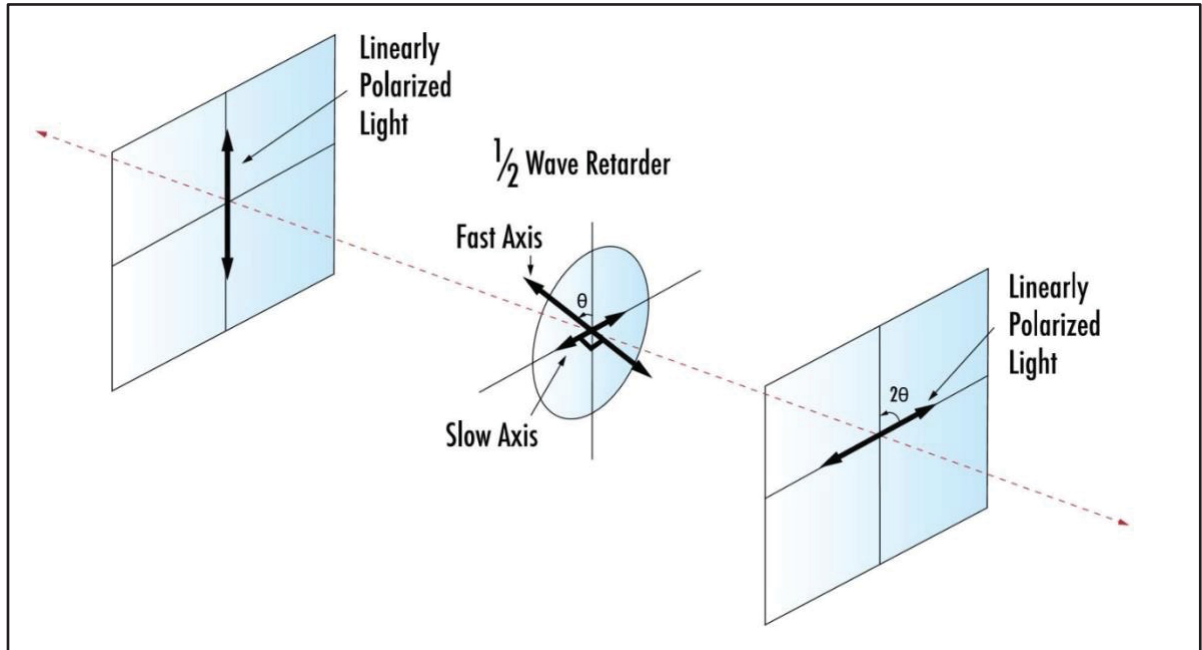


Figure 1.2 Rotation de la polarisation linéaire de la verticale à l'horizontale à l'aide d'une lame à retard de $\lambda/2$

De plus, la lumière polarisée linéairement peut être convertie en lumière polarisée circulairement et inversement en orientant correctement un polariseur linéaire et une lame à retard de $\lambda/4$. Par exemple, une lame à retard de $\lambda/4$ dont les axes sont inclinés à 45° par rapport à la polarisation linéaire génère une polarisation circulaire. Lorsque la lumière polarisée circulairement, dont l'orientation est indéfinie, traverse une lame à retard de $\lambda/4$, elle se transforme en lumière polarisée linéairement à 45° par rapport à l'axe de la lame. Aussi, si la lumière polarisée linéairement traverse une lame à retard de $\lambda/4$ à un angle autre que 45° , elle devient polarisée de manière elliptique.

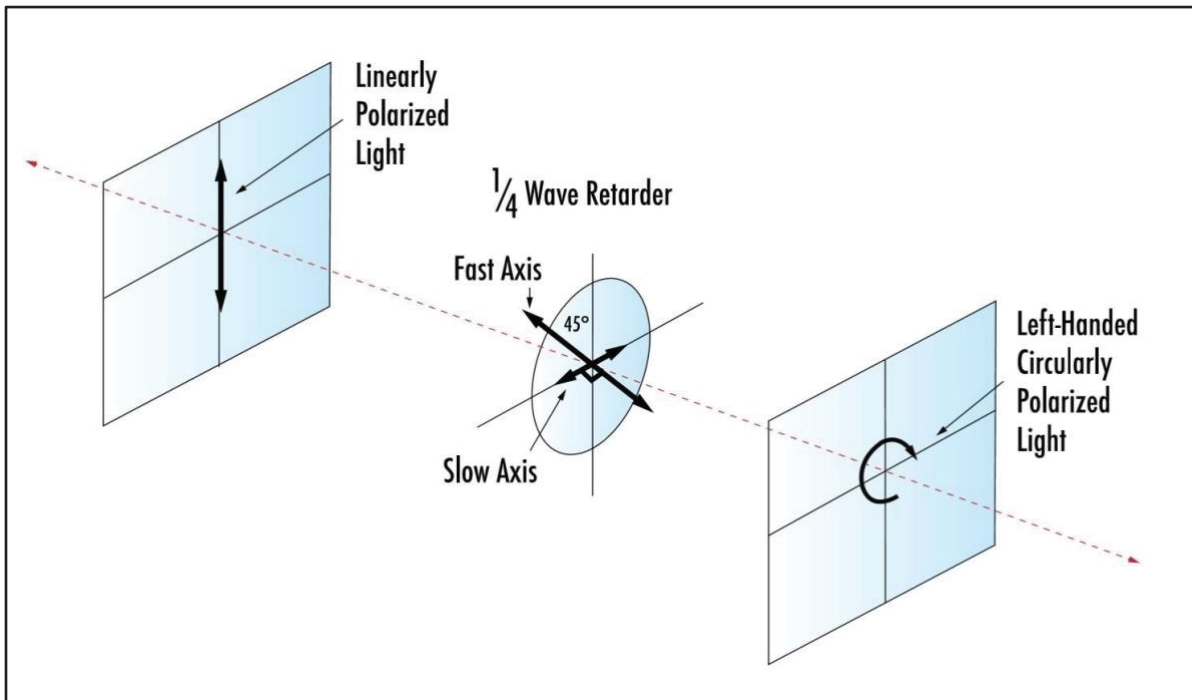


Figure 1.3 Rotation de la polarisation linéaire de la verticale à circulaire à l'aide d'une lame à retard de $\lambda/4$

1.4 Génération et détection des ondes THz

L'émission et la détection des ondes THz reposent donc sur l'utilisation d'un laser femtoseconde et de matériaux spécifiques. Cette section explore la manière dont ces phénomènes sont exploités dans les dispositifs d'émission et de détection THz. Seule la méthode utilisant les antennes photoconductrices (PCA) sera examinée en détail dans la section suivante. Notez que plusieurs autres types de génération existent, telles que la rectification optique (OR) (Kübler et al., 2005) ou l'utilisation d'émetteurs spintroniques THz (Seifert et al., 2016). De même, des techniques de détection des ondes THz comme la détection électro-optique (EO) sont décrits dans la littérature (Jepsen et al., 2011).

1.4.1 Génération et détection des ondes THz

La production de rayonnement électromagnétique peut être décrite par l'équation d'onde de Maxwell dans un milieu (Cooke, 2007) :

$$\nabla^2 E - \epsilon\mu \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \left(\frac{\partial J}{\partial t} \right) \quad (1.11)$$

où ϵ est la permittivité, μ est la perméabilité du milieu, E est le champ électrique, J représente le courant qui peut être induit par conduction J_{cond} ou par les électrons liés oscillants $J_{bound} = \frac{\partial P}{\partial t}$.

Cette équation décrit la source fondamentale de l'émission, en tenant compte des porteurs de charges libres et liés.

$$\nabla^2 E - \epsilon\mu \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu \left(\frac{\partial J_{cond}}{\partial t} + \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \right) \quad (1.12)$$

où P désigne la polarisation.

Cette équation prend en compte à la fois les porteurs de charge libres et liés, avec des termes représentant les contributions du courant de conduction et de la polarisation. L'émission d'ondes THz provient généralement d'un courant $J(t)$ variable dans le temps, d'une durée de quelques centaines de femtosecondes à quelques picosecondes. Plusieurs techniques sont utilisées pour générer un rayonnement THz, telles que les antennes photoconductrices (Burford et al., 2017), les sources photoconductrices étendues (Kim et al., 1995), la rectification optique dans les cristaux non linéaires (Nahata et al., 1996), le courant de surtension à travers les surfaces semi-conductrices (Adomavicius et al., 2004), les oscillations de charge dans les structures à puits quantiques (Chuang et al., 1994), l'excitation cohérente des phonons actifs (Dekorsy et al., 1996) et les lignes de transmission non linéaires (NLTL) (Rodwell et al., 1991). Ces méthodes utilisent principalement des impulsions laser femtosecondes pour exciter les matériaux. Dans cette étude, seulement les sources THz utilisant les antennes photoconductrices ont été étudiées.

1.4.1.1 Émission par antennes photoconductrices

Une antenne photoconductrice (PCA) est une technique fondamentale pour générer un rayonnement THz. Elle a été inventée par Austin en 1970 et développée dans les années 1980 (Austin, Cheung & Smith (1984)).

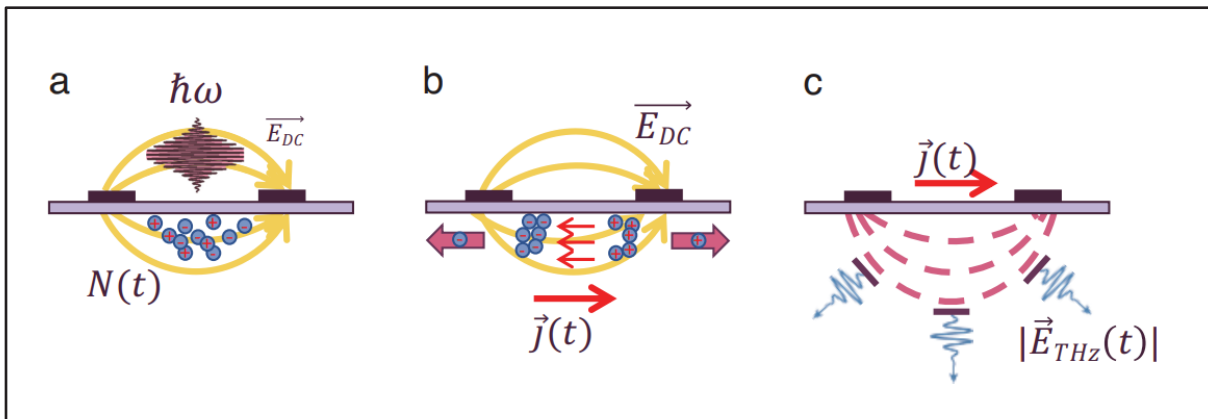


Figure 1.4 Schéma d'une antenne photoconductrice pour la génération de THz : (a) l'impulsion optique (ω) génère des électrons libres ; (b) les électrons sont accélérés dans le champ statique (\vec{E}_{DC}) et créent un photocourant ($\vec{j}(t)$) ; (c) l'impulsion THz ($|\vec{E}_{THz}(t)|$) est générée à partir de l'élément photocourant transitoire

Tiré de Zhuldybina (2021, p.42)

Les antennes photoconductrices font partie des premiers types d'émetteurs THz pulsés. Elles fonctionnent en faisant varier le photocourant généré lorsqu'une impulsion femtoseconde illumine un substrat photoconducteur soumis à un champ électrique statique. La figure 1.4 montre le schéma et le fonctionnement typique d'une antenne photoconductrice. Le champ statique est créé par une tension appliquée entre des électrodes métalliques sur le substrat photoconducteur. Lorsque le substrat est éclairé par l'impulsion femtoseconde, des porteurs de charge sont générés et accélérés entre les électrodes par le champ statique, produisant un courant transitoire dont la variation dépend de la durée de vie des porteurs de charge. Ce photocourant transitoire génère une impulsion THz perpendiculaire au courant photoconducteur. Les substrats utilisés sont généralement des semi-conducteurs tels que GaAs, InP et Si pour les lasers pompés à 800 nm, et des matériaux à faible gap tels que InGaAs et InAlAs pour les systèmes fonctionnant à 1550 nm. Pour optimiser l'émission THz, le substrat

doit présenter une mobilité élevée des porteurs, une durée de vie courte des porteurs et une résistivité élevée pour supporter des tensions de polarisation importantes. Une densité de porteurs élevée est également nécessaire pour maximiser l'amplitude du champ THz, d'où l'utilisation de matériaux absorbants à la longueur d'onde de la pompe. En raison de la mobilité généralement plus élevée des électrons par rapport aux trous dans la plupart des semi-conducteurs, le champ THz généré peut être exprimé:

$$\vec{E}_{THz}(z, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{A}{c^2 z} \frac{\partial \vec{J}(t)}{\partial t}, \quad (1.13)$$

$$\vec{E}_{THz}(z, t) = \frac{Ae}{4\pi\epsilon_0 c^2 z} \frac{\partial N(t)}{\partial t} \mu \vec{E}_b, \quad (1.14)$$

où A représente la zone éclairée par l'impulsion femtoseconde entre les électrodes, z est la distance entre le point du champ et la source THz, ϵ_0 est la permittivité du vide, μ est la mobilité des photoporteurs, E_b est le champ statique, et e est la charge électrostatique.

Il est supposé ici que le temps de vie des porteurs est plus long que le temps de relaxation intrabande, assurant ainsi que la mobilité μ reste constante. Les ondes THz émises par une antenne irradient dans toutes les directions en même temps. Cette situation est particulièrement vraie pour les antennes de dimension micrométrique. En effet, le patron de radiation augmente inversement proportionnellement à la taille de l'antenne, conformément à la loi de la diffraction. Pour collecter et collimater ces impulsions, une lentille hémisphérique en silicium est souvent placée à l'arrière du substrat. Le silicium est choisi en raison de sa faible absorption aux fréquences THz et de son indice de réfraction similaire à celui des substrats utilisés, ce qui limite la réflexion et la dispersion supplémentaire à l'interface substrat/lentille. Les antennes coplanaires, en particulier celles à grande ouverture, sont intéressantes car elles permettent d'augmenter l'amplitude du champ THz en ajustant la distance entre les électrodes (Tani et al., 1997). Elles sont capables de générer des impulsions THz intenses, ce qui est bénéfique pour les applications nécessitant le régime non linéaire. Toutefois, ces antennes sont confrontées à

des défis techniques tels que la taille de l'optique requise et les limites de la tension de polarisation qui peuvent endommager l'antenne. Enfin, les antennes photoconductrices constituent une méthode efficace pour générer un rayonnement THz, avec des variations significatives en fonction du type et des propriétés du substrat utilisé

1.4.2 Détecteurs THz

Les systèmes de détection THz se répartissent en deux catégories principales : les techniques cohérentes et les techniques incohérentes. La principale différence entre elles est que la détection cohérente mesure à la fois l'amplitude et la phase du champ, tandis que la détection incohérente ne mesure que l'intensité. Les techniques de détection cohérente sont étroitement liées aux techniques de génération, car elles partagent des méthodes fondamentales. Cette section décrit les dispositifs utilisés pour détecter les impulsions THz dans le domaine temporel, en mettant l'accent sur l'utilisation de matériaux photoconducteurs et sur l'effet électro-optique.

1.4.2.1 Échantillonnage temporel

L'échantillonnage temporel est une méthode d'acquisition utilisée pour capturer l'amplitude d'une impulsion THz en fonction du temps, permettant la reconstruction de l'impulsion émise. Une impulsion THz typique dure généralement entre 10 et 100 ps (Guerboukha et al., 2018), et la résolution temporelle souhaitée pour tracer le champ électrique de l'impulsion dans le domaine temporel est de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes (Neu et Schmittenmaer, 2018). Puisque la vitesse d'acquisition est trop élevée pour les photodiodes classiques, le processus d'échantillonnage temporel des ondes THz doit utiliser une approche alternative. Cette approche consiste à exploiter la dimension spatiale et la propagation d'une onde femtoseconde à la vitesse de la lumière pour associer chaque mesure de champ à un délai temporel spécifique et très court. Pour ce faire, le signal à mesurer doit être périodique, ce qui est le cas de l'impulsion THz, répétée plusieurs fois dans le temps (à chaque impulsion laser). Généralement, une ligne à retard est utilisée pour ajuster le délai entre l'impulsion THz et l'impulsion laser de la sonde. Ainsi, pour chaque retard, un point différent de l'onde THz peut

être échantillonné. En modifiant le retard avec la ligne à retard entre chaque mesure, il devient possible d'échantillonner la forme d'onde THz point par point (voir figure 1.5). En résumé, l'échantillonnage temporel est possible grâce à la courte durée des impulsions de la sonde, qui sont beaucoup plus courtes que celles de l'impulsion THz. Cette technique est souvent mise en œuvre à l'aide d'un amplificateur à verrouillage de détection synchrone (*lockin amplifier*), et plusieurs mesures sont généralement effectuées pour chaque position de la ligne à retard afin de réduire le bruit.

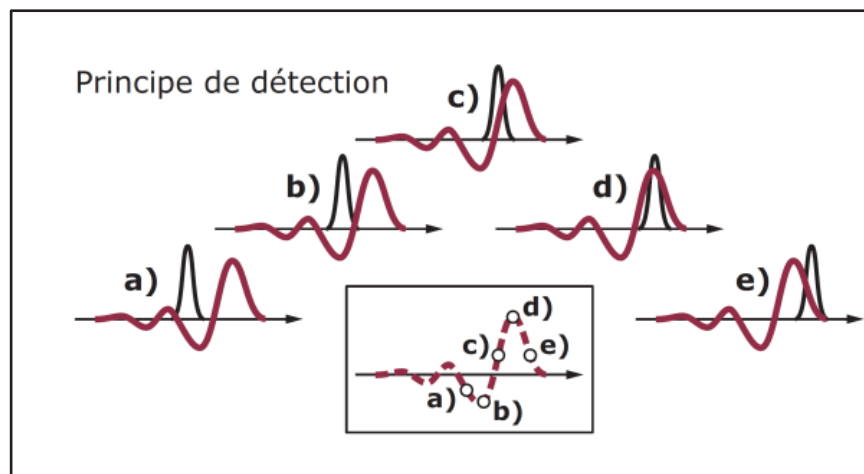


Figure 1.5 Schéma de détection THz par échantillonnage en temps plusieurs impulsions identiques (illustrées en haut de la figure) sont échantillonnées successivement pour reconstituer la forme de l'onde

1.4.2.2 Détection par antenne photoconductrice (PCA)

Selon le même principe que pour l'émission, les antennes photoconductrices peuvent détecter des impulsions THz. En effet, une impulsion laser femtoseconde va venir illuminer le semi-conducteur entre les électrodes de l'antenne générant ainsi des porteurs de charges au sein du semi-conducteur. Par la suite, le champ électrique de l'impulsion THz va accélérer ces porteurs de charges selon la direction et l'amplitude de son champ électrique et ainsi générer un photocourant aux bornes des électrodes. La densité de photocourant est linéairement proportionnelle au champ électrique de l'onde THz et le signe de la densité de courant détecté dépend directement de la polarité du champ électrique THz, ce qui en fait une méthode de

détection cohérente. Cependant, une limitation de ce type de détecteur en haute fréquence réside dans le temps de recombinaison des porteurs de charge et la durée de l'impulsion sonde. En effet, l'amplitude de la densité de photocourant détecté est un produit de convolution entre la conductivité de l'antenne et la valeur moyenne du champ électrique THz. Ces composantes sont à l'origine de la limite de détection d'une antenne PCA. C'est pourquoi il est requis de travailler avec des impulsions sonde les plus courtes possibles et avec des semi-conducteurs ayant une durée de vie la plus courte possible. Encore à ce jour, le GaAs à basse température est le matériau de choix pour travailler avec des lasers femtosecondes fonctionnant à 800 nm. Le temps d'ouverture du commutateur dépend de la durée de l'impulsion laser, tandis que le temps de fermeture est déterminé par la durée de vie des porteurs de charge dans le matériau photoconducteur. La figure 1.6 montre comment les impulsions THz sont détectées à l'aide d'une antenne photoconductrice.

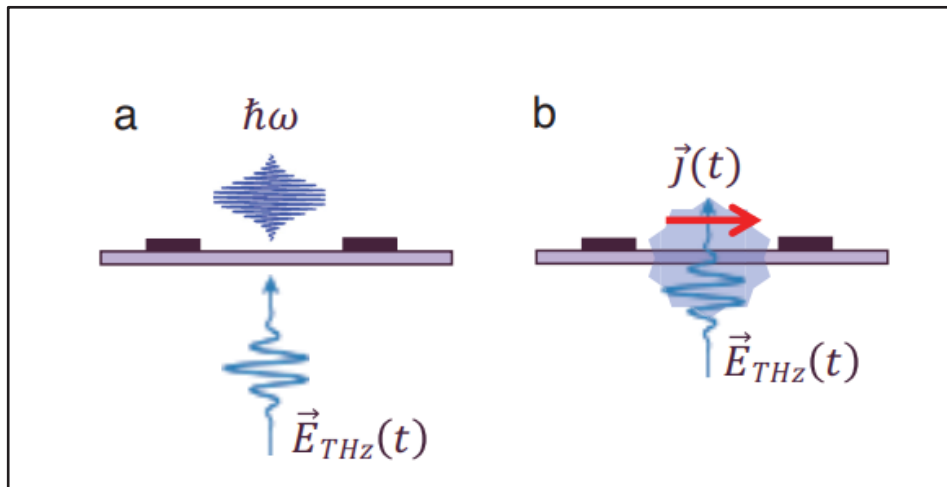


Figure 1.6 Schéma de détection THz par antenne photoconductrice : une impulsion optique $\hbar\omega$ entre en incidence avec l'antenne simultanément avec un champ THz (b) Un courant transient proportionnel au champ THz est induit entre les deux électrodes

Tiré de Zhuldybina (2021, p.50)

L'impulsion de la sonde et l'impulsion THz sont alignées et dirigées vers le matériau photoconducteur. L'impulsion de la sonde crée des porteurs de charge dans la région entre les électrodes, et ces porteurs se déplacent d'une électrode à l'autre sous l'effet du champ électrique THz, générant un photocourant. Le photocourant mesuré est proportionnel à l'amplitude instantanée du champ THz:

$$J(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} g(t - \tau) E_{THz}(t) dt, \quad (1.15)$$

où τ est le délai entre les impulsions THz et optiques, $J(t)$ est le courant transitoire et $g(t)$ est l'impulsion de la sonde (Jepsen et al. (2011)).

Pour obtenir le profil complet de l'impulsion THz, le délai entre l'impulsion de la sonde et l'impulsion THz est ajusté.

1.5 Spectroscopie térahertz dans le domaine temporel

Le développement d'émetteurs et de détecteurs d'impulsions THz a entraîné une augmentation des techniques d'imagerie et de spectroscopie THz (Guerboukha and al., 2018). L'étude de la variation d'énergie en fonction de la longueur d'onde ou de la fréquence des photons traversant un échantillon est appelée spectroscopie. Dans les années 1980, les lasers femtosecondes (fs) ont permis l'introduction de la méthode de spectroscopie dans la région des THz, ouvrant de nouvelles possibilités pour la caractérisation des matériaux. Cette méthode, basée sur l'excitation optique d'antennes photoconductrices, est connue sous le nom de THz-TDS (Van Exter et al., 1989). Dans cette section, le principe du système THz-TDS sera examiné. Étant donné qu'elle est principalement utilisée pour des applications de caractérisation et de détection, la technique sera expliquée en termes de détermination des propriétés d'un échantillon de matériau en fonction de la fréquence, ainsi que le concept d'utilisation de la transformée de Fourier. La spectroscopie dans le domaine des fréquences sera examinée comme méthode supplémentaire pour caractériser les matériaux utilisés dans ce projet de recherche. Enfin, une méthode d'imagerie THz utilisant le balayage de trame et combinée à un système d'émission et de détection d'impulsions cohérentes sera présentée.

1.5.1 Principe de la spectroscopie THz dans le domaine temporel

La spectroscopie THz dans le domaine temporel mesure l'indice de réfraction complexe d'un matériau en détectant deux impulsions THz : l'une se propageant dans un milieu de référence

et l'autre ayant interagi avec l'échantillon. Il existe deux configurations expérimentales : la configuration de réflexion, où l'on mesure le champ THz réfléchi par l'échantillon, et la configuration de transmission, où l'on mesure le champ THz qui a traversé l'échantillon. En utilisant le modèle approprié, l'indice de réfraction du matériau peut être déterminé. Cette section se concentre sur la spectroscopie de transmission THz utilisée pour nos mesures. Le signal dans le domaine temporel de la THz-TDS détecte directement le champ électrique transitoire plutôt que son intensité. Le champ électrique est généralement mesuré par le détecteur (Jepsen et al., 1996) sur une période de quelques picosecondes. Une méthode de détection rapide et sensible est donc nécessaire pour mesurer le champ électrique. Pour obtenir une résolution inférieure à la picoseconde, ces méthodes optiques utilisent une impulsion optique ultra-courte pour générer et mesurer le champ THz dépendant du temps. Une impulsion laser femtoseconde ($\lambda = 800 \text{ nm}$) est utilisée pour échantillonner un champ THz inconnu. La technique utilise alors la convolution d'une impulsion optique courte (par exemple 100 fs) avec une impulsion THz plus longue. Plusieurs méthodes différentes sont utilisées dans la partie détection du THz-TDS pour réaliser cette convolution. Toutes ces méthodes ont un point commun : elles mesurent le champ THz plutôt que l'intensité. Lorsque les impulsions optiques et THz arrivent en même temps, tous les détecteurs sont trop lents pour mesurer le signal instantanément avec une résolution de l'ordre de la picoseconde. Par conséquent, au lieu d'une mesure directe, le signal mesuré, $X(t)$, est généralement déterminé en convoluant les deux impulsions comme suit :

$$X(t_1) \propto I_{opt}(t) \otimes E_{THz}(t_1) \quad (1.16)$$

où $E_{THz}(t_1)$, est le champ électrique THz à un instant précis t_1 , et $I_{opt}(t)$ est le profil d'intensité de l'impulsion laser optique. Étant donné que l'impulsion laser optique est beaucoup plus courte que les impulsions THz, elle peut être considérée comme une fonction delta ($I_{opt}(t) \approx \delta(t)$) :

$$X(t_1) \propto \delta(t) \otimes E_{THz}(t_1), \quad (1.17)$$

En pratique, le détecteur ne sera actif que si les deux impulsions arrivent en même temps, et l'impulsion optique est beaucoup plus courte que l'impulsion THz. Cela nous permet de mesurer le champ THz en fonction du temps. De plus, le détecteur est sensible aux signes du champ électrique. Pour mesurer le signal THz à tout moment, nous retardons l'impulsion laser optique dans le champ électrique THz à l'aide d'une ligne à retard mécanique. La figure 1.7 illustre schématiquement une configuration typique pour les systèmes THz-TDS.

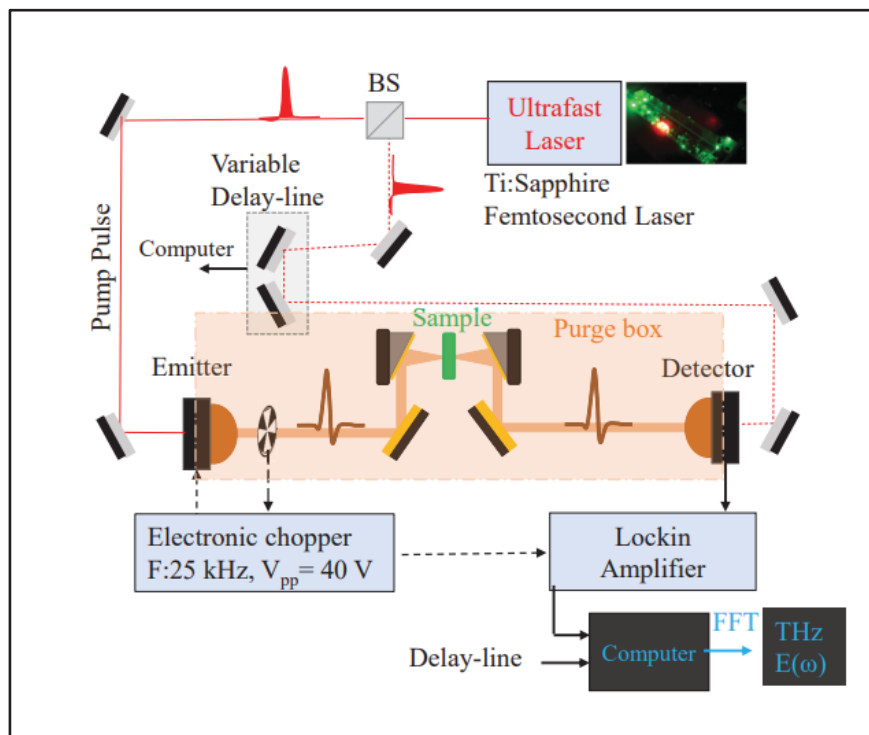


Figure 1.7 Spectromètre térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS) utilisant une antenne photoconductrice (PCA)
Tiré de Amirkhan (2017, p.45)

En général, une impulsion laser femtoseconde est divisée en deux faisceaux par un séparateur de faisceau (BS). Un faisceau est utilisé pour générer un rayonnement THz, tandis que l'autre (indiqué par une ligne pointillée) est utilisé pour la détection. Un retard est créé en prolongeant le trajet de l'un des faisceaux. Le temps de transmission de l'impulsion laser est donné par $t = \frac{l}{c}$, où c est la vitesse de la lumière (30 cm/ns ou 300 $\mu\text{m}/\text{ps}$) et l la longueur du chemin optique.

On obtient ainsi une résolution temporelle de l'ordre de la femtoseconde et une résolution spatiale de l'ordre du micromètre. Le positionnement précis est assuré par des bancs de positionnement pilotés par ordinateur, appelés lignes à retard dans le THz-TDS. Par exemple, pour chaque micromètre de déplacement de la ligne à retard, le temps de retard aller-retour change de 6,6 fs. La vitesse d'échantillonnage dans le domaine temporel dépend de la vitesse de déplacement de la ligne à retard, souvent exprimée en ps/s. Pour réduire l'absorption élevée de vapeur d'eau dans la gamme THz, le faisceau THz est contenu dans une boîte purgée avec de l'air sec ou de l'azote. Une fois les impulsions THz générées, elles traversent un échantillon placé au point focal des miroirs hors axe. Lorsque les impulsions THz interagissent avec l'échantillon, un signal proportionnel au champ électrique THz est détecté. La ligne à retard mécanique décale le faisceau de la sonde par rapport au faisceau de la pompe, ce qui permet d'analyser le champ THz à différents moments. Le THz-TDS peut également être utilisé pour identifier un échantillon dans le champ proche (Blanchard et al., 2018). Cette technique mesure la transition du champ électrique THz dans le temps à travers un échantillon et une longueur équivalente d'espace libre. Les variations de la forme d'onde THz, influencées par la géométrie de l'échantillon, peuvent être utilisées pour déterminer l'indice de réfraction complexe du matériau et des propriétés telles que l'absorption. Le THz-TDS est une méthode cohérente, très sensible et modulée en phase qui analyse l'impulsion temporelle du champ THz détecté. L'interaction du champ électrique avec un échantillon est linéaire et l'équation de Maxwell décrit cette propagation en utilisant des paramètres fondamentaux tels que la permittivité et la perméabilité. Ainsi, le concept de description linéaire est utilisé pour traiter l'impulsion dans le domaine temporel en la décomposant en ondes planes de fréquence ω , ayant toutes un vecteur κ le long de l'axe optique Z du système THz (Tonouchi, 2007).

1.5.2 La transformée de Fourier

Les informations spectrales de l'impulsion THz sont obtenues par transformation de Fourier du champ électrique THz transitoire observé, comme le montre la figure 1.8.

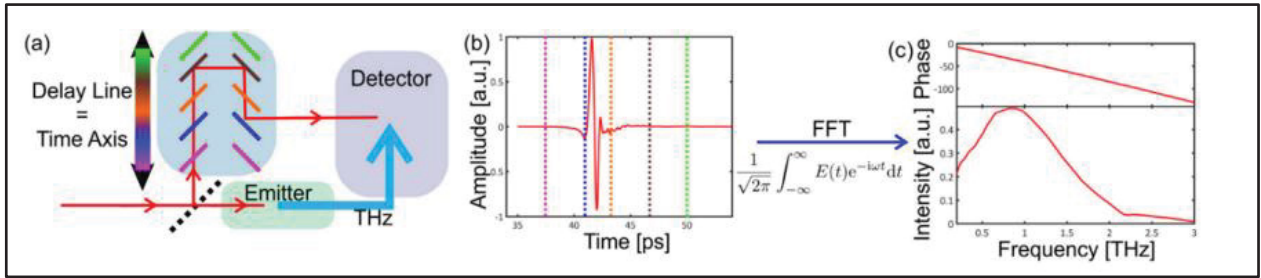


Figure 1.8 Principe d'acquisition THz TDS : (a) Schéma simplifié du TDS montrant les différentes positions de la ligne de retard en différentes couleurs, correspondant à des instants précis dans (b); (b) Signal THz mesuré dans le domaine temporel; (c) Transformation de Fourier rapide (FFT) du signal dans le domaine fréquentiel, avec la phase non enveloppée en haut et l'amplitude en bas

Tiré de Neu et Schmittenmaer (2018, p.4)

Un spectre complexe dans le domaine des fréquences est la transformée de Fourier d'une impulsion réelle dans le domaine temporel, définie par (Mathews et Walker, 1970) :

$$E(z, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(z, t) e^{-i\omega t} dt, \quad (1.18)$$

où $E(z, \omega)$ représente l'amplitude du champ complexe en fréquence et $E(z, t)$ est le champ électrique THz mesuré expérimentalement dans le domaine temporel. Le spectre complexe est caractérisé par son amplitude $E(\omega)$ et sa phase $\Phi(\omega)$, comme décrit par :

$$E(z, \omega) = E(\omega) e^{i\phi(\omega)} \quad (1.19)$$

La THz-TDS offre un avantage significatif par rapport à la spectroscopie à large bande dans l'infrarouge et le visible, car la méthode fournit à la fois des informations sur l'amplitude et la phase. Cela permet de mesurer directement le spectre sans recourir à la relation de Kramers-Kronig et de déterminer l'indice de réfraction complexe $n(\omega)$.

1.5.3 Paramètres optiques pour la caractérisation

Toutes les applications de la THz-TDS visent à déterminer l'indice de réfraction complexe du matériau et de son absorption en fonction de la fréquence. Les équations de Fresnel peuvent être utilisées pour décrire la transmission et la réflexion d'un champ électromagnétique à une interface. Lorsque le rayonnement est normalement incident sur le milieu, l'amplitude de la réflexion \tilde{r} et le coefficient de transmission \tilde{t} peuvent être écrits comme suit :

$$\tilde{t} = \frac{2\tilde{n}_i}{\tilde{n}_i + \tilde{n}_t}, \quad (1.20)$$

$$\tilde{r} = \frac{\tilde{n}_i - \tilde{n}_t}{\tilde{n}_i + \tilde{n}_t} \quad (1.21)$$

La visualisation d'un champ THz incident à un échantillon est définie dans le schéma de géométrie de spectroscopie THz comme le montre la figure ci-dessous :

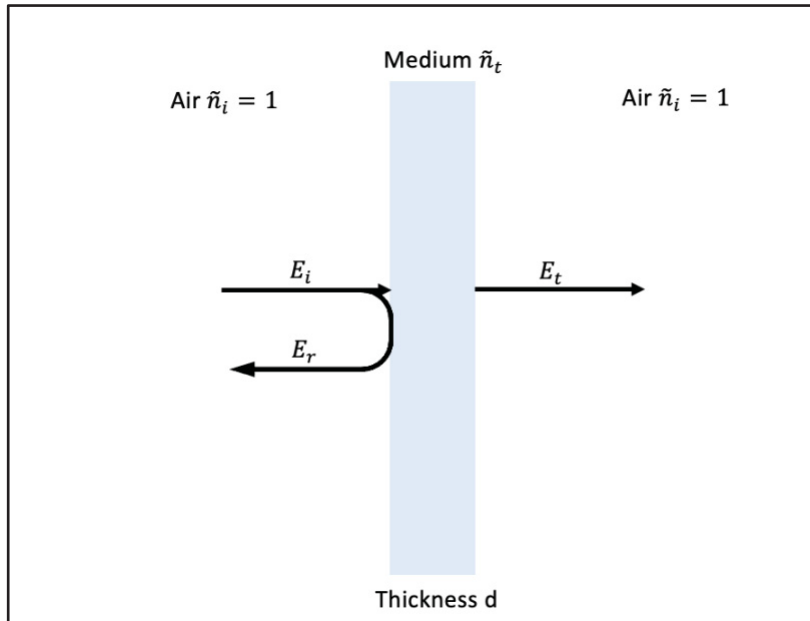


Figure 1.9 Diagramme des champs électriques incident, transmis et réfléchi dans une géométrie de plaque épaisse

Le champ détecté sera désigné comme le champ de référence $E_{ref}(\omega)$ et sera considéré comme équivalent à l'onde THz initiale $E_{in}(\omega)$. En prenant en compte les interactions avec les différentes surfaces, l'équation du champ peut être exprimée comme suit :

$$\hat{E}_{sam}(\omega) = \hat{E}_t(\omega) = \hat{E}_i(\omega) \hat{t}_{12} \hat{t}_{23} e^{-\frac{\alpha d}{2}} e^{i(n-1)\frac{\omega d}{c}} \quad (1.22)$$

En utilisant les deux champs mesurés séparément, il est possible d'extraire les paramètres de transmission en fonction de la fréquence, à savoir l'amplitude de transmission $T(\omega)$ et la phase $\varphi(\omega)$. Pour ce faire, on effectue une division point par point des deux spectres échantillonnés :

$$\begin{aligned} \frac{\hat{E}_{sam}(\omega)}{\hat{E}_{ref}(\omega)} &= \frac{\hat{E}_i(\omega) \hat{t}_{12} \hat{t}_{23} e^{-\frac{\alpha d}{2}} e^{i(n-1)\frac{\omega d}{c}}}{\hat{E}_i(\omega)} = \hat{t}_{12} \hat{t}_{23} e^{-\frac{\alpha d}{2}} e^{i(n-1)\frac{\omega d}{c}} \\ &= T(\omega) e^{i\varphi(\omega)} \end{aligned} \quad (1.23)$$

En appliquant les formules pour calculer l'indice de réfraction $n(\omega)$, le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$, et la fonction diélectrique ϵ (Jepsen et al., 2011) :

$$n(\omega) = 1 + \frac{\varphi(\omega)c}{\omega d} \quad (1.24)$$

$$\alpha(\omega) = -\frac{2}{d} \ln \left(\frac{(n+1)^2}{4n} T(\omega) \right) \quad (1.25)$$

$$\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' = (n + i\kappa)^2 \quad (1.26)$$

$$\kappa = \frac{\varphi(\omega)c}{2\omega} \quad (1.27)$$

où d représente l'épaisseur de l'échantillon, c la vitesse de la lumière, et κ le coefficient d'extinction. La figure 1.10 résume l'extraction des paramètres optiques après une mesure.

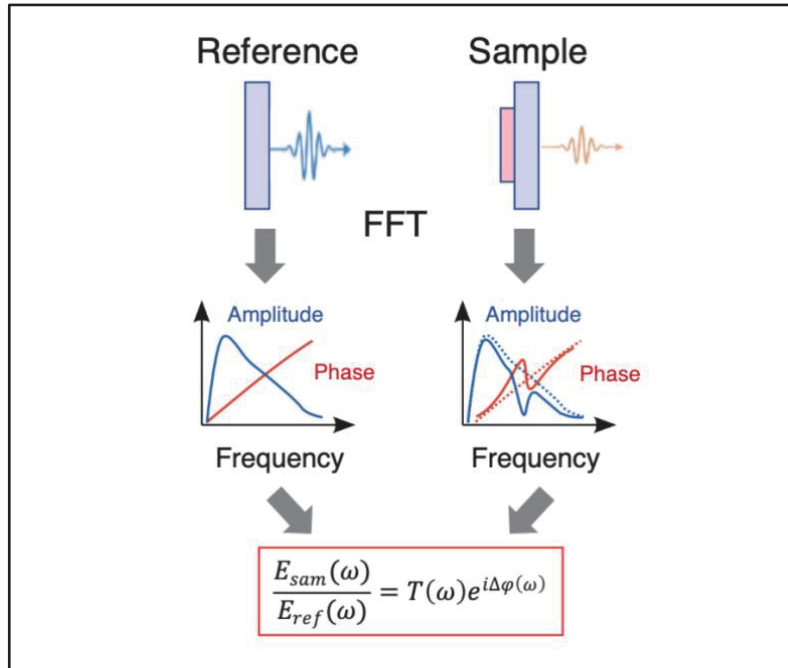


Figure 1.10 Représentation d'une mesure utilisant THz-TDS pour récupérer les informations spectrales d'un échantillon (amplitude normalisée et différence de phase)

Tiré de Zhuldybina (2021, p. 56)

1.5.4 Comparaison avec les systèmes dans le domaine fréquentiel

L'utilisation de la THz-TDS peut s'avérer très efficace pour l'étude du comportement d'un matériel face à un stimuli externe tel que le champ électrique, magnétique ou encore la température. La technologie des émetteurs et capteurs THz en ondes continues (CW) implique de nombreux types de dispositifs techniques, contrairement aux méthodes de radiation THz de large bande passante qui reposent principalement sur des technologies optiques ultrarapides. Les efforts pour intégrer la technologie optique avec l'électronique ont donné naissance à des dispositifs optoélectroniques THz tels que les photomélangeurs. La mise en œuvre de dispositifs réels nécessite des sources THz compactes et portables. La génération de radiation THz en onde continues (CW) est réalisée par hétérodynage optique dans des photoconducteurs à large bande passante : la sortie de deux lasers du proche infrarouge (NIR) CW est convertie en radiation THz, précisément à la fréquence de différence des lasers NIR. Le composant central est le "photomélangeur", une structure microscopique métal-semi-conducteur-métal. Une lumière laser NIR éclaire cette structure à deux fréquences adjacentes (voir Figure 1.11),

créant des porteurs de charge dans le semi-conducteur. L'application d'une tension de polarisation aux électrodes métalliques génère un photocourant oscillant à la fréquence de battement. Une structure d'antenne entourant le photomélangeur transforme ce photocourant oscillant en onde THz. Les photomélangeurs sont basés soit sur GaAs, soit sur InGaAs/InP et nécessitent des longueurs d'onde laser inférieures à la bande interdite du semi-conducteur (environ 0,8 μm ou 1,5 μm , respectivement). Les deux régimes de longueur d'onde présentent des avantages distincts. Les systèmes avec émetteurs InGaAs offrent une gamme dynamique record et bénéficient des composants de 1,5 μm , matures et peu coûteux. Le principal inconvénient de cette méthode est que la puissance de sortie est relativement faible par rapport aux autres techniques de génération de THz en onde continue. Son efficacité de conversion optique en THz est de 10^{-6} à 10^{-5} , et la puissance de sortie typique est dans la gamme des microwatts.

Le transport des porteurs dans le semi-conducteur est un facteur important qui régit les processus de photomélange. Étant donné que le photomélange nécessite une excitation optique continue, la puissance de sortie THz maximale est limitée par la faible conductivité thermique du matériau (environ 15 W/mK) (Lee Y-S, 2009). Le système que nous possédons, TeraScan 1550 de TOPTICA, combine la technologie laser de 1,5 μm avec des photomélangeurs InGaAs. Les modules photomélangeurs sont équipés d'une lentille en silicium, d'un connecteur électrique et d'une fibre pigtail SM/PM. La conception tout-en-fibre permet une intégration efficace et flexible pour différentes configurations, telles que la spectroscopie en transmission ou en réflexion. Concernant les lasers, les systèmes THz de TOPTICA utilisent la technologie laser à rétroaction distribuée (DFB). Les lasers DFB à 1,5 μm combinent une haute puissance de sortie, une largeur de raie étroite et des plages allant jusqu'à 600 GHz par diode. Une structure de réseau dans la zone active du semi-conducteur restreint l'émission laser à un seul mode longitudinal. Sachant que la fréquence de différence de deux lasers DFB peut être contrôlée avec une précision de l'ordre du mégahertz, les techniques térahertz CW sont particulièrement adaptées à la spectroscopie haute résolution, par exemple pour la détection de traces de gaz à basse pression. Lors de la numérisation de la fréquence THz, le signal brut présente un motif oscillant. L'enveloppe de ce motif d'interférences fournit le spectre THz. Le logiciel de contrôle intégré au système offre la possibilité de calculer l'enveloppe du

photocourant en temps réel. Cette fonctionnalité sera abordée plus en détail dans la présentation des résultats de cette étude.

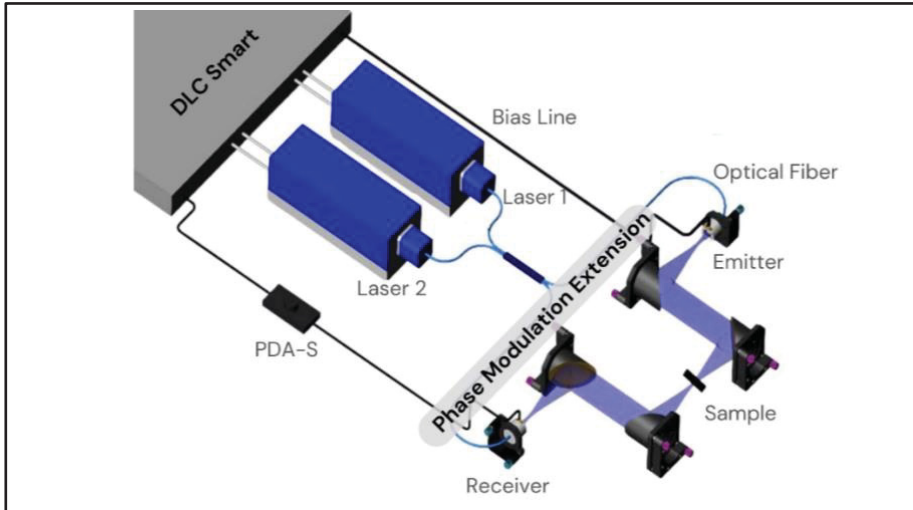


Figure 1.11 Spectromètre térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS). L'extension de modulation de phase permet de balayer rapidement la phase des ondes térahertz, grâce à un système symétrique utilisant deux étireurs de fibre enroulés autour d'actionneurs piézoélectriques

1.5.5 Imagerie

Aujourd'hui, l'imagerie par spectroscopie THz est utilisée dans de nombreux domaines, notamment la biologie, les produits pharmaceutiques, l'inspection des aliments, la détection des explosifs, l'inspection automobile, l'identification des matériaux et la surveillance de l'environnement (Gueboukha et al., 2018). La THz-TDS produit des images THz fiables en se concentrant uniquement sur l'amplitude de l'impulsion THz. Lorsqu'une impulsion électromagnétique picoseconde traverse un échantillon, elle est décalée, déformée et atténuée en raison de la dispersion et de l'absorption du matériau. En comparant le spectre de l'impulsion transmise, obtenu par transformée de Fourier rapide (FFT) du signal temporel mesuré, avec celui d'un signal de référence sans échantillon, nous pouvons calculer le coefficient de transmission complexe en fonction de la fréquence de l'échantillon. L'indice de réfraction complexe est ensuite extrait. En répétant ce processus sur différentes parties de l'échantillon (par balayage de trame), nous pouvons reconstruire l'image de l'échantillon et obtenir des informations spectrales pour chaque pixel, créant ainsi une image THz multispectrale. Ce

processus d'imagerie permet de cartographier l'indice de réfraction ou le coefficient d'absorption à n'importe quelle fréquence THz, et peut être réalisé en transmission ou en réflexion. Quelle que soit la configuration expérimentale, l'imagerie des propriétés optiques des échantillons nécessite un prétraitement (FFT des formes d'onde pour chaque pixel) et un post-traitement pour extraire avec précision n et κ . Les systèmes THz-TDS équipés d'une platine de translation X-Y peuvent réaliser une imagerie tridimensionnelle pixel par pixel, créant ainsi des profils tomographiques THz. La méthode a été utilisée dans des études pour surveiller les propriétés à des interfaces internes spécifiques d'objets, telles que les changements d'indice de réfraction en fonction de la position ou les changements de phase dans les matériaux. De multiples échos THz peuvent être observés dans une trace du domaine temporel à différents délais lorsque des impulsions THz traversent un milieu comportant une ou plusieurs interfaces partiellement réfléchissantes ou transmissibles situées à différentes profondeurs. Ces interfaces produisent des réflexions THz multiples représentant des discontinuités de l'indice de réfraction en fonction de la profondeur, révélant la structure interne d'objets contenant une ou plusieurs couches. La position respective dans le domaine temporel peut être utilisée pour calculer les informations relatives à la profondeur et à l'épaisseur. L'indice de réfraction est supposé constant sur toutes les fréquences de la bande passante THz et sur la taille du spot THz. La figure 1.12 montre le dispositif de mesure THz comprenant une platine de translation X-Y permettant de réaliser des images THz.

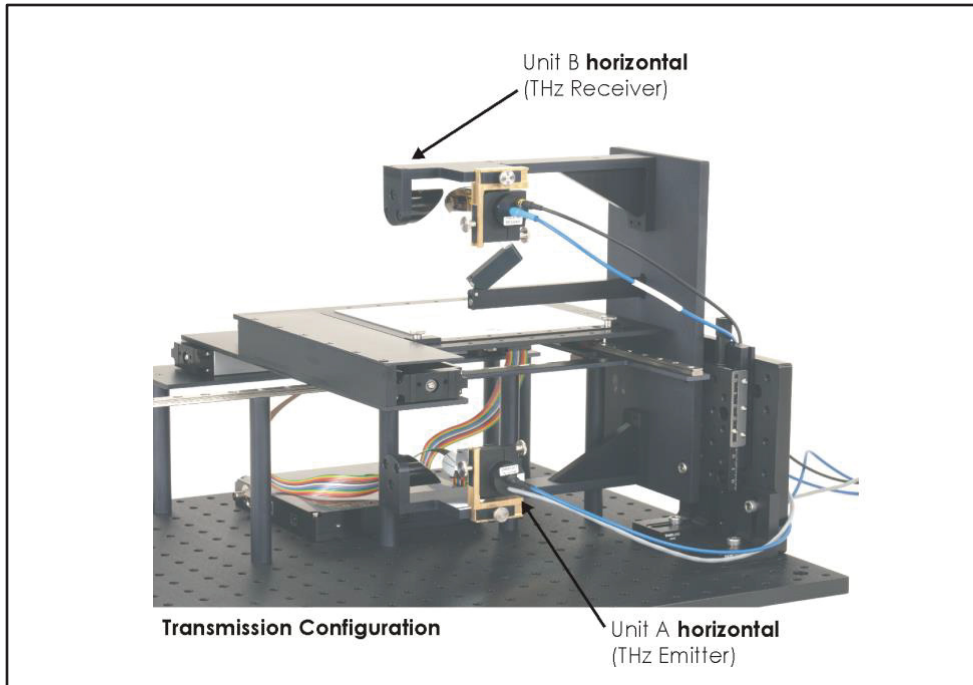


Figure 1.12 Système d'imagerie commercialisé en mode de transmission

La figure 1.13 représente l'image du champ électrique THz d'une carte à puce en plastique utilisée dans les transports publics. L'antenne en forme de parallélogramme comprend six boucles de fil espacées de 0,5 mm et a été utilisée pour évaluer le point focal et la position focale des ondes THz dans le système avant les mesures d'imagerie spectroscopique THz.

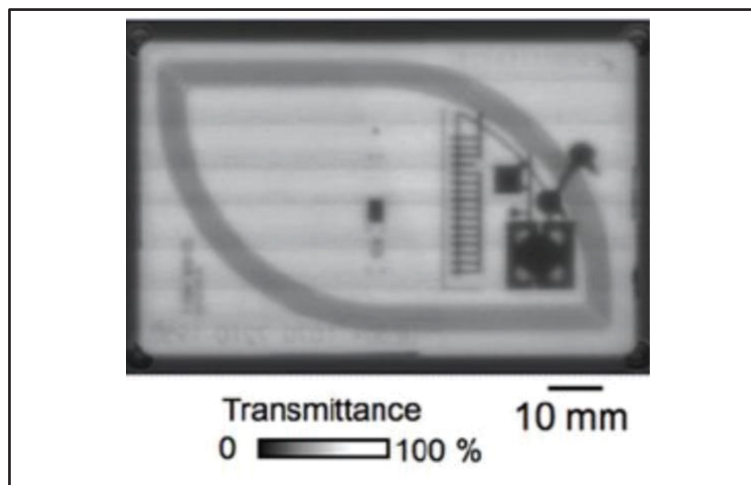


Figure 1.13 Image THz d'une carte à puce en plastique (86 mm \times 54 mm) utilisée dans les transports publics

Tiré de Ajito et al., 2011

1.6 Les cristaux liquides

1.6.1 Les propriétés physiques

Les cristaux liquides (LC) sont une sorte de matière qui existe entre les solides cristallins et les liquides. Ils possèdent un ordre moléculaire qui entraîne une anisotropie dans leurs propriétés mécaniques, optiques, électriques et magnétiques (de Gennes et al., 1974).

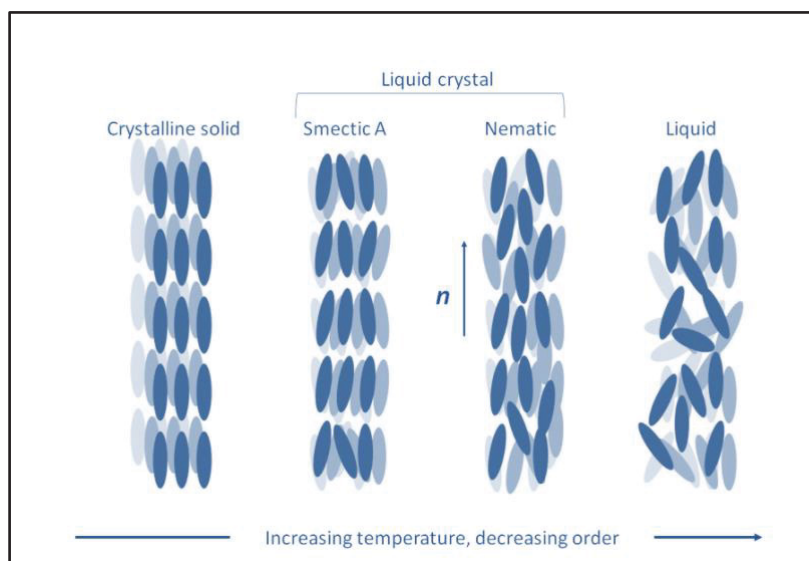


Figure 1.14 Phases cristallines liquides thermotropes et orientation moyenne de la molécule décrite par un vecteur unitaire n

Les cristaux liquides thermotropes, qui présentent une phase cristalline liquide dans une plage de température spécifique, sont le plus souvent utilisés dans des applications optiques. Ils peuvent être divisés en trois groupes principaux : les nématiques (NLC), les smectiques et les cholestériques (de Gennes, 1974). Toutefois, les nématiques sont les plus utilisés pour les lentilles LC. Les nématiques sont un milieu optique uniaxial caractérisé par un ordre d'orientation à longue portée et une libre circulation des centres de masse (voir Figure 1.14). Les molécules ont une forme allongée, en forme de bâtonnet, et leur direction d'orientation moyenne est caractérisée par un vecteur unitaire n appelé directeur. De nombreuses molécules de LC possèdent un moment dipolaire électrique permanent. Comme le montre la Figure 1.15, sous l'influence d'un champ électrique, elles ont tendance à tourner et à orienter leurs longs

axes moléculaires le long du champ (pour les LC à anisotropie diélectrique positive). Lorsqu'elles sont dispersées sur un substrat (par exemple, une lame de verre, un film polymère), l'alignement des molécules de LC peut être contrôlé en prétraitant la surface et en créant un angle d'inclinaison. Une cellule nématique avec un petit angle d'inclinaison (quelques degrés), presque parallèle aux surfaces, est appelée cellule planaire.

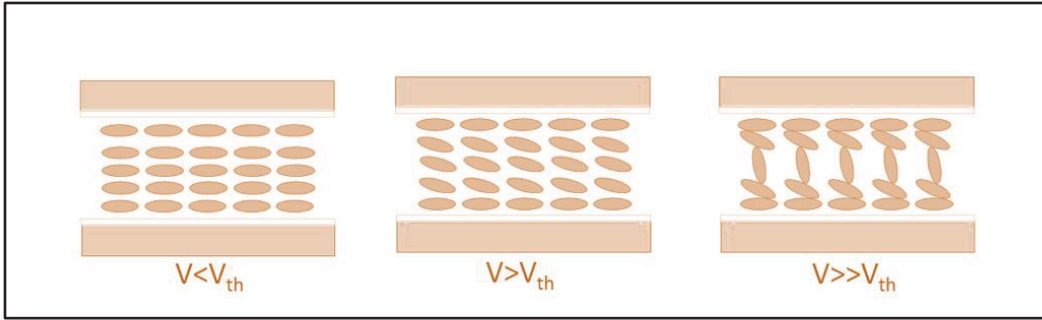


Figure 1.15 Transition de Fredericksz dans un champ électrique. Les couches superficielles restent alignées parallèlement

Si les électrodes transparentes sont déposées sur les substrats en verre (à l'intérieur de la cellule), l'orientation des molécules de LC peut être modifiée par l'application d'un champ électrique. Pour cette configuration, à une certaine tension critique V_{th} , les molécules commencent à se réorienter et à tourner parallèlement au champ électrique, il s'agit de la transition de Fredericksz. La tension de seuil peut être exprimée comme suit (Blinov et al., 1984):

$$V_{th} = \pi \sqrt{\frac{K_{ii}}{\varepsilon_0 |\varepsilon_a|}} \quad (1.28)$$

où K_{ii} est la constante élastique de Frank, ε_0 est la permittivité du vide et $\varepsilon_a = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$ est l'anisotropie diélectrique.

Lorsque la lumière incidente se propage à travers un LC, le taux de son changement de phase dépend de l'anisotropie optique du LC, de son angle d'incidence et de sa polarisation. L'indice de réfraction est différent pour la lumière se déplaçant perpendiculairement et parallèlement à l'orientation du directeur du LC. La lumière dont la polarisation est perpendiculaire à l'axe

optique est régie par un indice de réfraction n_o (pour « ordinaire »). La lumière dont la polarisation est le long de la direction de l'axe optique a un indice optique n_e (pour « extraordinaire »). Lorsque de la lumière non polarisée pénètre dans un matériau biréfringent uniaxial (en supposant une incidence normale), elle est divisée en deux faisceaux voyageant dans des directions différentes : le rayon ordinaire ne change pas de direction, tandis que le rayon extraordinaire se courbe (est réfracté) lorsqu'il traverse le matériau. Le rayon ordinaire aura toujours un indice de réfraction de n_o , tandis que l'indice de réfraction du rayon extraordinaire sera compris entre n_o et n_e , en fonction de la direction du rayon, comme le décrit l'ellipsoïde d'indice. L'indice de réfraction extraordinaire effectif du LC peut être décrit à l'aide de l'expression suivante :

$$n_{eff}(r) = \frac{n_o n_e}{\sqrt{n_o^2 \cos^2 \theta + n_e^2 \sin^2 \theta}} \quad (1.29)$$

où θ est l'angle de direction en chaque point par rapport à la direction de propagation de la lumière (vecteur d'onde). L'ampleur de la différence est quantifiée par la biréfringence LC : $\Delta n = n_e - n_o$.

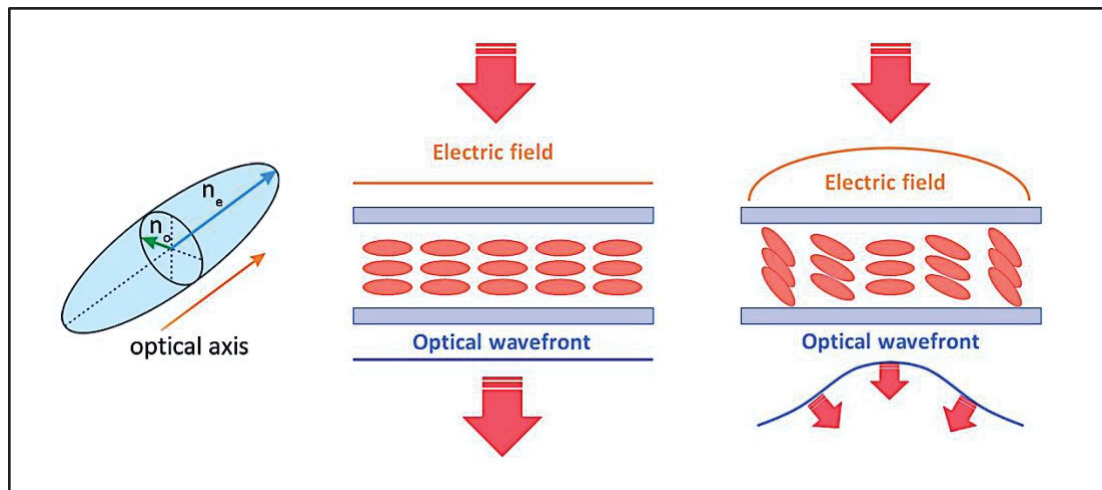


Figure 1.16 Contrôle par champ électrique du front d'onde optique traversant la cellule LC

Lorsque les molécules s'alignent le long du champ électrique selon une forme spécifique (proche de la parabole), une variation continue de l'indice de réfraction (d'où une lentille) est créée. En d'autres termes, l'orientation spatiale des molécules de LC affecte le front d'onde

planaire d'entrée de l'onde (extraordinaire) polarisée linéairement, de sorte qu'elle se déplace à une vitesse lumineuse différente en chaque point. En conséquence, l'onde transmise est un front d'onde parabolique convergent, qui provoque la focalisation de la lumière, comme le montre la figure 1.16. En effet, le front d'onde peut être modulé arbitrairement, ce qui permet de corriger l'orientation et l'aberration.

1.6.2 Dynamique de la réorientation des LC

La théorie du continuum pour les nématiques trouve son origine dans les travaux d'Oseen et de Zocher, qui ont été améliorés par la suite par Frank (Demus et al., 1998). Pour décrire l'alignement moléculaire, on utilise le champ vectoriel unitaire $\vec{n}(\vec{r})$.

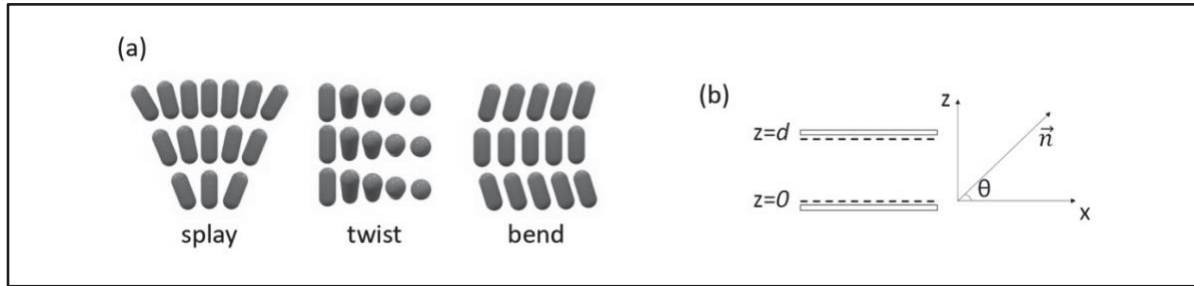


Figure 1.17 (a) Constante de Frank élastique et déformations correspondantes : K1 - évasement, K2 - torsion, K3 - flexion. (b) Vecteur directeur dans le plan xOz

En ne prenant en compte que les forces intermoléculaires de courte portée et en considérant la parité (symétrie $\vec{n} \rightarrow -\vec{n}$) ainsi que la symétrie de rotation des molécules, l'énergie libre de déformation suivante peut être obtenue (de Gennes et al., 1974):

$$F_D = \frac{1}{2} K_1 \int (\text{div } \vec{n})^2 dV + \frac{1}{2} K_2 \int (\vec{n} \cdot \text{rot } \vec{n})^2 dV + \frac{1}{2} K_3 \int (\vec{n} \times \text{rot } \vec{n})^2 dV \quad (1.30)$$

Dans cette équation, trois constantes élastiques ont été introduites, correspondant à trois types de déformation différents :

K_1 - déformation avec $\text{div} \mathbf{n} \neq 0$ - évasement ;

K_2 - déformation avec $\mathbf{n} \cdot \text{rot} \mathbf{n} \neq 0$ - torsion ;

K_3 - déformation avec $\mathbf{n} \times \text{rot} \mathbf{n} \neq 0$ - flexion ;

La contribution du champ électrique à l'énergie libre est donnée par :

$$F_E = -\frac{1}{2} \int (E \cdot D) dV, \quad (1.31)$$

Par conséquent, à partir de l'énergie libre totale :

$$F_T = F_D + F_E \quad (1.32)$$

Il est possible de trouver une distribution stable du champ directeur nématique. En considérant la géométrie, et en représentant le directeur comme :

$$\mathbf{n} = (\cos \theta, 0, \sin \theta), \quad (1.33)$$

L'équation différentielle pour θ est obtenue en trouvant une variation de l'énergie libre totale et en l'égalant à zéro, puisqu'un état stationnaire correspond au minimum de l'énergie libre.

Quelques approximations sont souvent utilisées pour faciliter l'équation :

1) pour la plupart des LC, on peut supposer que $K_1 = K_2 = K_3 = K$ - approximation à une constante ;

2) pour les lentilles LC minces avec une ouverture de quelques millimètres, le champ électrique le long de l'axe z est beaucoup plus important que dans les directions $x - y$. Par conséquent, le champ électrique $E_z \gg E_x$. Par conséquent, le champ électrique $E_z \gg E_x, E_y$ et toutes les dérivées $\partial/\partial_z \gg \partial/\partial_x, \partial/\partial_y$, nous pouvons donc négliger les dérivées du champ et de l'angle du directeur dans les directions x et y et ne prendre en compte que la composante z du champ.

Dans ce cas, l'équation suivante peut être obtenue :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} + \frac{\epsilon_0 \epsilon_a}{K} \left(\frac{\partial V}{\partial z} \right)^2 \sin \theta \cos \theta = 0 \quad (1.34)$$

Avec les conditions aux limites : $\theta(z = 0) = \theta(z = d) = \theta_0$, qui correspondent à un fort ancrage sur les substrats cellulaires, avec l'angle d'inclinaison θ_0 . Ici, d est l'épaisseur de la cellule LC.

Cela doit être résolue simultanément avec les équations de Maxwell pour la distribution du potentiel électrique V à l'intérieur de la cellule LC (puisque le tenseur de permittivité diélectrique dépend également de l'orientation des molécules comme dans (Solva et al., 2015):

$$\nabla \cdot \left(\left(\varepsilon_0 \hat{\varepsilon} + i \frac{\sigma}{\omega} \right) \nabla V \right) = 0, \quad (1.35)$$

où σ est la conductivité électrique, ω la fréquence du champ électrique et ε_0 la permittivité du vide. Les conditions aux limites de cette équation dépendent de la tension appliquée aux électrodes de la cellule, par exemple : $V(z = 0) = 0, V(z = d) = V_0$,

Ces conditions sont typiques d'une cellule LC avec des électrodes plates (la différence de potentiel V_0 est appliquée entre les électrodes supérieures et inférieures).

En raison de la complexité de cette approche auto-cohérente, ce système d'équations différentielles partielles couplées est généralement résolu numériquement pour les lentilles LC, en particulier pour les géométries complexes ; toutefois, des solutions analytiques approximatives peuvent être trouvées pour certains systèmes.

La cellule LC peut également être représentée comme une plaque de phase, le retard de phase dépendant de l'orientation moléculaire à l'intérieur de la cellule. Le retard de phase entre les rayons ordinaires et extraordinaires à la sortie de la cellule est donné par :

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{-d/2}^{d/2} \frac{n_o n_e}{\sqrt{n_o^2 \cos^2 \theta(z) + n_e^2 \sin^2 \theta(z)}} - n_{\perp} dz \quad (1.36)$$

Peu après la création de la théorie de l'équilibre, Eriksen a proposé de la généraliser pour le comportement dynamique. Leslie l'a ensuite complétée par des équations constitutives, ce qui a donné naissance à une théorie dynamique complète.

Si nous considérons une transition dynamique de Freederikz ne considérant qu'une réorientation pure, la dynamique de la rotation de l'axe directeur est décrite par une équation d'Eriksen-Leslie, qui peut être simplifiée en utilisant des approximations à une constante et à petit angle comme suit (Yang et al., 2014) :

$$K \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} + \varepsilon_0 \varepsilon_a E^2 \theta = \gamma_1 \frac{\partial \theta}{\partial t}, \quad (1.37)$$

Dans ce cas, les temps de montée et de descente, également appelés temps d'excitation et de relaxation, peuvent être estimés comme suit (Yang et al., 2014) :

$$\tau_{decay} = \frac{\gamma_1 d^2}{\pi^2 K}, \quad (1.38)$$

$$\tau_{rise} = \frac{\tau_{decay}}{\left(\frac{V}{V_{th}}\right)^2 - 1}, \quad (1.39)$$

où V est la tension d'alimentation.

On constate que les temps de réponse dépendent de l'épaisseur de la cellule LC d ainsi que des propriétés élastiques du matériau LC (relation γ_1/K).

1.6.3 Applications des cristaux liquides

Les avantages de ce type de cellules accordables sont leur taille miniature et leur poids léger, leur faible coût et leur capacité à corriger le front d'onde et l'aberration. La technologie des cristaux liquides a eu un impact significatif dans divers domaines tels que la science, l'ingénierie et la technologie des appareils.

Les lentilles de LC consomment beaucoup moins d'énergie, et sont très faciles à contrôler en appliquant un champ électrique. La consommation d'énergie d'une « lentille complète » (indépendante de la polarisation), basée sur un principe de contrôle modal, peut être estimée comme suit :

$$P = 2fC_{total}V^2 \quad (1.40)$$

où C_{total} est la capacité totale de la cellule LC, V et f sont la tension AC appliquée et la fréquence, respectivement.

Les applications des lentilles LC comprennent l'imagerie (caméras de téléphones portables et webcams, réalité augmentée, projecteurs holographiques, etc.) (Wang et al., 2020) et des applications non liées à l'imagerie (communications par fibre, photovoltaïque et autres)

(Kumar et al., 2017). Ce matériau unique continue de fournir des solutions efficaces dans un large éventail d'applications. Les écrans à cristaux liquides (LCD), qui sont devenus une industrie majeure grâce à des avancées scientifiques et techniques significatives. Les thermomètres à cristaux liquides utilisent des cristaux liquides cholestériques (chiral-nématiques) qui réfléchissent la lumière en fonction de la température, ce qui permet des mesures précises (Smith et al., 2001). L'imagerie optique à l'aide de cristaux liquides est un domaine en développement, impliquant une cellule de cristal liquide entre des photoconducteurs pour enregistrer des images basées sur des modèles électriques induits par la lumière (Mu et al., 2006). Les cristaux liquides cholestériques sont utilisés en imagerie médicale pour détecter les points chauds, tels que les tumeurs, tandis que les cristaux liquides nématiques améliorent les applications de résonance magnétique en fournissant des spectres RMN détaillés (Woltman et al., 2007). Les cristaux liquides sont également utilisés comme solvants dans les séparations chromatographiques, ce qui permet de contrôler les réactions chimiques et d'analyser les molécules. Les applications industrielles des polymères à cristaux liquides incluent les revêtements ignifuges et les matériaux améliorés pour le moulage, grâce à leurs propriétés de surface et à leur module d'élasticité uniques. Cependant, certaines limitations et défis demeurent pour les chercheurs. Un des principaux inconvénients des lentilles LC réside dans la limitation de la puissance optique maximale atteignable. En raison des propriétés chimiques et physiques des matériaux LC, la création de lentilles LC est soumise à deux contraintes principales : la biréfringence et l'épaisseur des cellules. Il est important de noter que les lentilles LC sont bien développées pour les domaines visibles (VIS) (Notaros et al., 2022) et infrarouge proche (NIR) (Bortolozzo et al., 2013), mais qu'elles ne sont pas encore pleinement optimisées pour la gamme des térahertz (THz).

1.7 Les ondes térahertz et les cristaux liquides

Toutes les propriétés des LC décrites jusqu'à présent les rendent adaptées à l'optique et font qu'elles sont largement utilisées en photonique pour la manipulation de la lumière. La technologie des cristaux liquides (LC) existe depuis plus de 100 ans, et il existe de nombreuses applications de ces matériaux exceptionnels au-delà des écrans à cristaux liquides, qui sont les

plus courants. Dans ce travail, nous nous concentrerons sur les LC à haute biréfringence pour les applications THz, mais les LC sont utilisés dans divers domaines. Tout d'abord, les lasers LC basés sur des LC cholestériques ont été démontrés en utilisant le LC cholestérique comme un cristal photonique unidimensionnel (Li, 2012). Les LC sont également utilisés dans l'électronique organique, en tant que semi-conducteurs organiques dans les cellules solaires. Les micro/nanofibres avec un cœur de LC constituent une méthode alternative qui a été introduite, avec l'avantage que la fabrication de ces fibres est plus simple que celle des fibres de verre (Du et al., 2004; Larsen et al., 2003). Enfin, les LC, en tant que matériaux organiques, sont faciles à utiliser dans les applications biologiques, car les membranes des cellules du corps humain sont dans un état liquide cristallin lamellaire lyotrope. Il existe de nombreuses applications intéressantes des LC en biologie, biotechnologie, science alimentaire et pharmacologie, telles que la biodétection avec des LC et la délivrance de médicaments avec des cubosomes et des crèmes LC (Lagerwall et al., 2012; Hegmann et al., 2007; Eich et al., 1987; Sato, 1999).

Les applications des ondes THz nécessitent une variété d'éléments optiques actifs et passifs, tels que des lentilles, des déphaseurs, des modulateurs, des filtres, des réseaux de phase, des commutateurs, etc. Une solution prometteuse est l'utilisation de cristaux liquides, en raison de leur anisotropie diélectrique élevée et de la possibilité de les ajuster avec un champ électrique ou magnétique. La littérature présente de nombreuses solutions pour l'utilisation de cristaux liquides dans des dispositifs dans la région THz. Une application est un filtre accordable pour la gamme THz utilisant un cristal liquide à commutation à double fréquence (DFSW-LC) (Göbel et al., 2009). Les cristaux liquides à double fréquence ont une valeur d'anisotropie diélectrique $\Delta\epsilon$ qui peut être négative ou positive en fonction de la fréquence de la tension de commande. Pour les basses fréquences (dans ce cas 1 kHz), les cristaux liquides ont une valeur $\Delta\epsilon$ positive, et les axes longs des molécules sont organisés parallèlement au vecteur du champ électrique appliqué. Pour les hautes fréquences (dans ce cas 40 kHz), les cristaux liquides ont un $\Delta\epsilon$ négatif, et le directeur des cristaux liquides est perpendiculaire au vecteur du champ électrique appliqué. L'utilisation de deux fréquences de tension pour contrôler l'anisotropie des cristaux liquides permet des changements d'orientation des cristaux liquides beaucoup plus rapides que les autres techniques, car le changement d'orientation des cristaux liquides est

toujours forcé par le champ électrique et non par la réorganisation spontanée des molécules. Cette solution est avantageuse car elle élimine le besoin de deux sources de tension externes, ce qui rend le système de mesure plus facile à mettre en œuvre. Le filtre décrit est basé sur un effet Fabry-Perot dans l'espace formé par deux structures en peigne en métal doré situées en haut et en bas de deux plaques de quartz. Les dents du peigne sont orientées parallèlement au champ électrique de l'onde THz incidente et agissent comme un miroir réfléchissant pour le signal THz. L'épaisseur de la couche de cristaux liquides est de 100 μm . La largeur de bande du filtre pour une orientation homéotropique et homogène des cristaux liquides est d'environ 0,450 THz et 0,466 THz respectivement. La plage d'accord est de 16 GHz avec une biréfringence LC $\Delta n=0,08$. Pour une orientation homéotropique des cristaux liquides, les pertes diélectriques sont beaucoup plus élevées, environ deux fois plus élevées que dans le cas d'une orientation homogène des cristaux liquides. L'amélioration des paramètres des cristaux liquides, la réduction de l'absorption et l'augmentation de l'anisotropie de la permittivité électrique permettront d'augmenter la plage d'accord de ce type d'équipement et d'accroître son utilité dans les applications térahertz.

Une autre application est un déphaseur LC magnétiquement accordable (Chen et al., 2004). Le déphaseur LC se compose de deux cellules LC homéotropes (E7), chacune d'une épaisseur de 1,5 mm, et d'un aimant rotatif (voir Figure 1. 18). Le champ magnétique appliqué au milieu de la cellule était de 0,427 T (champ magnétique seuil d'environ 0,01 T). L'angle de rotation maximal possible de l'aimant était de $\theta=54^\circ$ (angle d'inclinaison du champ magnétique par rapport à la direction de propagation de l'onde THz). Le déphasage $\delta(\theta)$ dépend de l'épaisseur du LC, des variations des indices de réfraction et de la fréquence de l'onde incidente. Pour les paramètres du dispositif ci-dessus, le déphasage était de $\delta(\theta)=368^\circ$ pour 1,025 THz pour l'angle d'inclinaison maximal du champ magnétique. Dans cet article, les résultats des mesures de trois mélanges LC dans la gamme THz ont été présentés. L'un des principaux avantages des mélanges LC mesurés est leur faible absorption, mais ils présentent également une faible anisotropie de l'indice de réfraction, inférieure à $\Delta n=0,14$. Lorsque la biréfringence est faible, une couche de LC plus épaisse est nécessaire dans des applications potentielles telles que les déphaseurs. Le développement de la technologie térahertz nécessite la construction de divers dispositifs pour moduler et contrôler le faisceau THz. Au cours de la dernière décennie,

plusieurs dispositifs accordables à base de cristaux liquides ont été créés. Deux d'entre eux sont décrits dans ce travail. Cependant, ces systèmes restent lents en raison de l'utilisation de couches épaisses de cristaux liquides. Les dispositifs nécessitent des tensions de commande élevées et présentent des pertes importantes. Le contrôle des cristaux liquides par un champ magnétique devient difficile en raison de l'utilisation de systèmes plus complexes que ceux décrits dans cet article. Nous supposons qu'il est possible de synthétiser des matériaux à cristaux liquides présentant une anisotropie diélectrique plus élevée et une absorption plus faible dans la gamme THz que ceux décrits ci-dessus. Cela permettra de réduire l'épaisseur de la couche de cristaux liquides appliquée, réduisant ainsi la tension de commande et augmentant la vitesse d'accordabilité des cristaux liquides. Par conséquent, cette biréfringence accordable fait des LC un matériau encore plus intéressant pour l'optique femtoseconde.

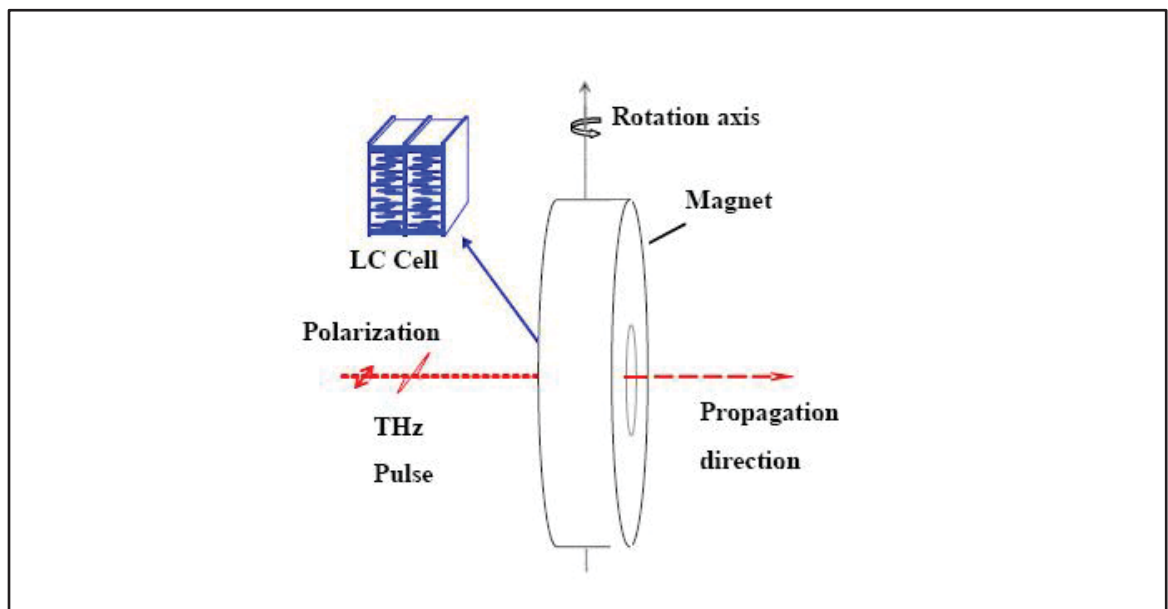


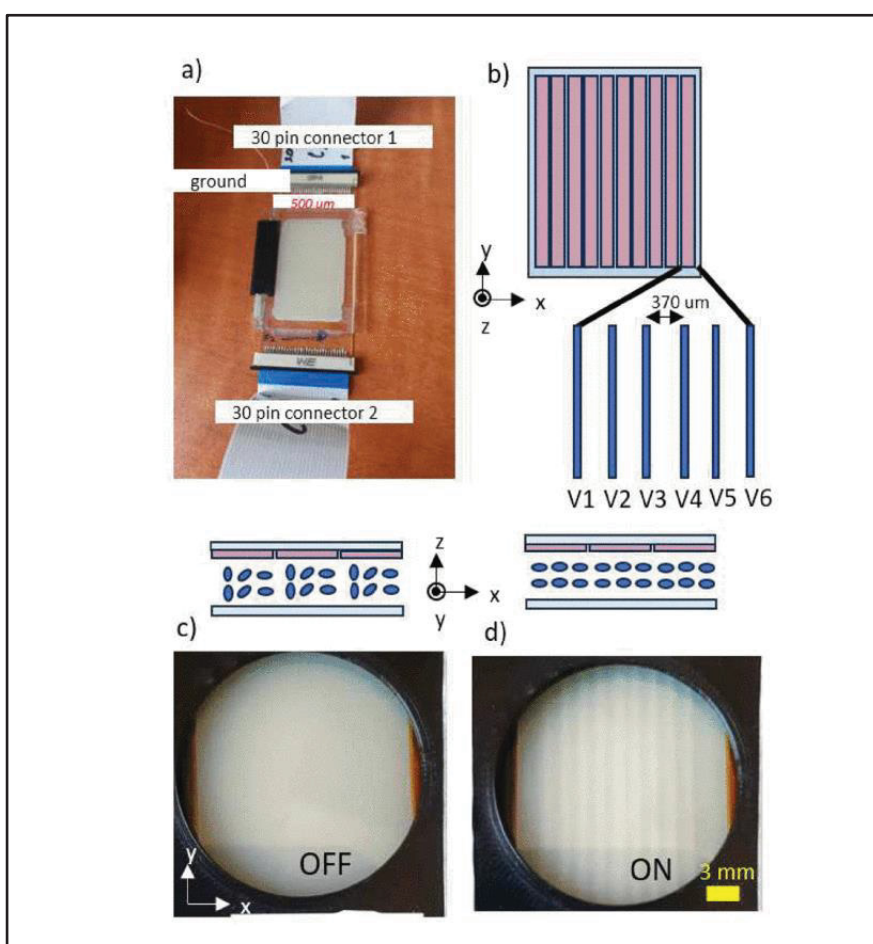
Figure 1.18 Schéma de la caractérisation THz du comportement et la réponse du LC aux champs magnétiques externe.

Tiré de Chen et al., 2004

1.8 Les électrodes interdigitées

Le progrès des technologies de modulation THz est un prérequis pour des communications sans fil à large bande, à haute capacité et à haute vitesse, ainsi que pour la surveillance de sécurité, l'imagerie médicale haute résolution et la caractérisation des matériaux (Wang et al., 2021). Bien que la fabrication de composants statiques pour ces dispositifs soit relativement simple grâce aux avancées des techniques de micro fabrication et aux grandes longueurs d'onde, le développement de composants ajustables dynamiquement, sans utiliser de mouvements mécaniques, reste un défi majeur. Cette difficulté s'explique par la faible efficacité des matériaux électro-optiques traditionnels pour les longueurs d'onde millimétriques, qui nécessitent une importante profondeur de propagation. Le déphasage électro-optique dépend de plusieurs paramètres tels que la longueur d'onde dans le vide, l'épaisseur du matériau, le coefficient électro-optique, le champ électrique appliqué et l'indice de réfraction à l'état fondamental. Par exemple, pour obtenir un déphasage $\Delta\phi \approx \pi/2$ à une longueur d'onde de 1 mm, il faudrait appliquer une tension très élevée, ce qui n'est pas réaliste en termes de faisabilité, de pertes et de coût. C'est pourquoi l'idée d'utiliser des matériaux à cristaux liquides pour créer des éléments de déphasage a été explorée (Chodorow et al., 2013). Cependant, les approches traditionnelles reposaient sur des structures à guides d'ondes ou des cellules planes avec des électrodes latérales, afin de minimiser les pertes causées par les électrodes en oxyde d'indium-étain (ITO), couramment utilisées dans les écrans à cristaux liquides (LCD). L'ITO est couramment utilisé dans la plage de fréquence visible en raison de ses propriétés attrayantes, telles qu'une faible résistivité, une surface lisse et une bonne adhésion à divers substrats (Afre et al., 2018). De plus, il est facile à préparer à température ambiante et présente un bon rapport coût-efficacité. Des recherches récentes ont montré qu'il est possible de modifier les valeurs de l'épaisseur de la couche de LC nécessaires pour utiliser des électrodes ITO standards, en redessinant leur structure de manière à simplifier le fonctionnement tout en réduisant les pertes électromagnétiques (Pusenkova et al., 2024). Dans la figure suivante, le schéma des électrodes montre que la cellule est divisée en 10 zones, chacune contenant 6 électrodes de contrôle. Lorsque la tension alternative est appliquée, cela permet de générer différentes orientations moléculaires non uniformes dans la cellule. L'écart

entre les "doigts" des électrodes est choisi en fonction du "champ frangeant" pour réguler le profil du champ électrique à l'intérieur des cristaux liquides. Diverses configurations de commande des tensions peuvent être utilisées. Grâce au champ frangeant, la distribution du potentiel électrique dans la direction x , perpendiculaire aux électrodes, reste relativement homogène. Les photos montrent la cellule dans les états OFF et ON. Finalement, ce dispositif, basé sur des LC nématiques et un design d'électrodes interdigitées, est prometteur pour une capacité de reconfiguration polyvalente avec de faibles pertes pour les fréquences THz.



Tiré de Pusenкова et al., 2024

1.9 Les applications biomédicales

La physique biomédicale progresse rapidement, exploitant de nombreuses techniques d'imagerie et de spectroscopie à travers le spectre électromagnétique, et plusieurs technologies expérimentales émergent actuellement dans le domaine de l'imagerie médicale (Wolbarst et al., 2006). Dans le spectre électromagnétique, le rayonnement THz se situe dans une gamme qui est principalement excitée par des modes vibrationnels et peut être étendue à des modes rotationnels à des fréquences plus basses. La réponse du rayonnement THz aux matériaux biologiques peut être déterminée à l'aide du THz-TDS. La réponse diélectrique THz de l'eau liquide, qui est un composant majeur des tissus biologiques, est particulièrement intéressante. La cohérence et la sensibilité du TDS en font un outil idéal pour l'analyse. Des tissus humains fraîchement prélevés ont été étudiés à l'aide d'un système d'imagerie THz à large bande couvrant des fréquences d'environ 0,5 à 2,5 THz (Fitzgerald et al., 2003). L'indice de réfraction et le coefficient d'absorption linéaire varient en fonction des types de tissus examinés, tels que la peau, le tissu adipeux, le muscle strié, la veine et le nerf. Les différences observées ont été jugées suffisamment significatives pour envisager des applications médicales. Une autre application importante et prometteuse se trouve dans le domaine pharmaceutique. Elle permet de détecter des différences de manière non destructive en utilisant un rayonnement à ondes longues et à faible énergie qui n'induit pas de changements de phase ou de réactions photochimiques. En outre, en raison des faibles densités de puissance utilisées (bien inférieures à celles utilisées en Raman, par exemple), l'échantillon n'est pas chauffé. Des études ont montré que la spectroscopie THz dans le domaine temporel peut être utilisée pour étudier la structure des formes cristallines moléculaires de l'acide benzoïque, de l'acide 2-, 3- et 4-hydroxybenzoïque et de l'acide acétylsalicylique (Walther et al., 2002). Bien que ces molécules soient structurellement très similaires, leurs spectres THz présentent des différences marquées, et des quantités aussi faibles que $5 \times 10^{-8} \text{ mol}$ dans le faisceau ont été détectées. Ceci souligne l'importance de cette gamme spectrale en tant que région de signature conformationnelle, soit une empreinte digitale unique qui reflète la forme précise et l'arrangement spatial des molécules. En spectroscopie THz, la détection de ces signatures est cruciale pour identifier et mesurer les variations subtiles de la structure moléculaire, souvent

indétectables dans d'autres gammes de fréquences. Des études d'imagerie antérieures ont examiné la réponse du rayonnement THz à la peau normale in vivo (Crawley et al., 2003 ; Cole et al., 2001). La peau normale se compose de trois couches principales : la couche cornée, l'épiderme et le derme (de la couche la plus externe à la plus interne). La couche cornée de l'avant-bras mesure généralement environ 10 μm (alors que dans d'autres zones, comme la paume de la main, elle peut atteindre 200 μm). Comme 10 μm dépassent les capacités de résolution du système d'imagerie temporelle, l'onde réfléchie sur l'avant-bras était dominée par la réflexion au niveau de l'épiderme, ce qui permettait de déterminer les propriétés optiques de cette couche. Cependant, sur la paume de la main, où la couche cornée est plus épaisse, le système a pu résoudre la couche cornée car la structure en couches a généré plusieurs réflexions : l'épaisseur a pu être calculée à partir du retard optique entre les pics réfléchis. La figure 1.20 montre une image en coupe transversale (b-scan) du bord de la main, illustrant le profil de profondeur de la peau en fonction de la position le long d'une ligne traversant le bord de la main. Elle montre comment l'épaisseur de la couche cornée varie de la paume de la main, à gauche de l'image, au dos de la main, à droite.

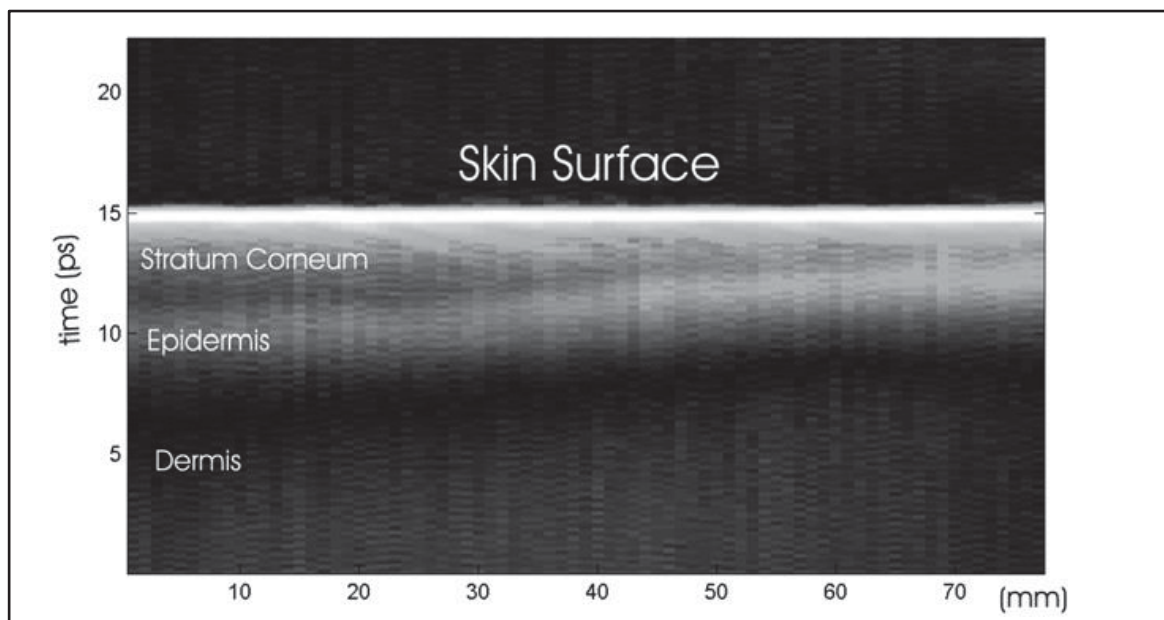


Figure 1.20 Image axiale (b-scan) du bord de la main. L'amplitude THz est indiquée en niveaux de gris et est tracée en fonction du délai optique (axe vertical) et de la position en x à travers la zone scannée (axe horizontal). La diminution de l'épaisseur du stratum corneum, de la paume ($x = 30$ mm) au dos de la main ($x = 70$ mm), est clairement visible.

Tiré de Pickwell et al., 2006.

1.10 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre un bref aperçu du domaine des dispositifs THz à base de cristaux liquides et discuté comment l'interaction entre l'onde électromagnétique et ces dispositifs peuvent induire des dynamiques intéressantes. Au regard des résultats pertinents présentés dans la littérature jusqu'à présent sur l'intérêt pour divers types de modulateurs, nous avons remarqué que ces travaux se sont limités à certaines fréquences. Avec les intérêts que la bande térahertz apporte, il est donc crucial de développer et d'étudier plusieurs alternatives pour des dispositifs LC actifs à grande ouverture, à faible perte et large bande opérant dans la gamme THz.

CHAPITRE 2

TERAHERTZ PHASE IMAGING OF LARGE-APERTURE LIQUID CRYSTAL MODULATOR WITH ITO INTERDIGITATED ELECTRODE

A. Le Burlout¹, A. Pusenkova², J. Lafrenière-Greig¹, X. Ropagnol^{1,3}, T. Galstian², and F. Blanchard¹

¹Département de Génie Électrique, École de technologie supérieure,
1100 Notre-Dame Ouest, Montréal, Québec, Canada H3C 1K3

²Département de Génie Physique, Université de Laval,
1045 Avenue de la Médecine, Québec, Québec, Canada G1V 0A6

³Institut national de la recherche scientifique,
Varennnes, Québec, Canada J3X 1P7

Paper published in *J. Phys. D: Appl. Phys.*, September 2024.

Abstract: We have fabricated and characterized a large-aperture electrooptic phase modulation device operating in the terahertz (THz) frequency range. The device consists of a 1.6 mm thick nematic liquid crystal placed between glass plates with a novel interdigitated electrode design. Using THz time-domain spectroscopy (THz-TDS) coupled with raster scanning imaging, we evaluated phase modulation across a 25 mm diameter LC device and mapped the spatial uniformity of phase shift. Our results confirm the functionality of the LC cell as a controllable quarter-wave plate at 0.26 THz and half-wave plate at 0.52 THz. This work contributes to the development of large-aperture and transmissive LC devices as low-cost phase plates for THz waves and paves the way for future applications in THz modulators.

2.1 Introduction

Terahertz (THz) modulators are key components for several emerging applications, notably in communications (Ma and al., 2019) and imaging (Guerboukha and al., 2018). In both fields, filtering and active control of amplitude, phase and frequency are highly desirable, for example in the development of Reconfigurable Intelligent Surfaces (RISs) (Yurduseven and al., 2020). Since these waves are naturally larger than those of the visible (VIS) or near infrared (NIR)

wavelengths, they offer certain advantages while posing other challenges. For example, they promise to make THz filters or resonant structures easier to manufacture, without the need for complex cleanroom techniques (Ahmad and al., 2024). For active control, liquid crystals (LC), sometimes coupled with a resonant structure, remain a particularly attractive choice (Yang and al., 2023). As with visible light applications (Yang and al., 2023, Lin and al., 2017), the anisotropic and dielectric properties of LCs could significantly expand the range of THz applications, enabling cutting-edge technologies such as phase shifters (Ding and al., 2019, Wu and al., 2020, Sahoo and al., 2022), absorbers and filters (Wang and al., 2020, Deng and al., 2022, Nickpay and al., 2022), RIS with delay lines (Neuder and al., 2024), and frequency shifters (Kowordziej and al., 2014, Chen and al., 2015, Shen and al., 2018), among others. For instance, in these demonstrations, most designs incorporate a resonant structure in combination with an LC material (metadevices). In this way, the resonant structure effectively captures THz waves at the operating frequency, while minimizing the interaction length with the LC material.

Surprisingly enough, some of these LC materials may have rather significant (at the order of 0.2-0.3) birefringence $\Delta n_{\parallel} = n_{\parallel} - n_{\perp}$ at THz frequencies, where n_{\parallel} and n_{\perp} are, respectively, refractive index values for the electric displacement vector that is parallel and perpendicular to the direction of natural alignment of long molecular axes of the LC, often called director [18]. In addition, the dielectric torque, applied by rather moderate voltages (few volts) may reorient the director, changing thus the optical path difference (OPD), from $PD = n_{\parallel}d$ to $n_{\perp}d$, where d is the thickness of the LC, providing thus a maximal possible change of $OPD = \Delta nd$. However, there are important differences compared with VIS or NIR ranges. THz waves are generally collimated using large optics, such as parabolic mirrors 25 to 50 mm in diameter. Consequently, THz modulators and filters of similar size are needed to achieve modulation in the flat phase distribution plane, i.e. not at the focus. In addition, the use of broadband pulses in transmission mode may prove difficult if the modulator consists of an LC metadevice. Despite a notable increase in interest in various types of modulators in current scientific research (Ma and al., 2019, Degl'Innocenti and al., 2022), there has been only limited investigation into large-aperture and broadband LC modulators operating in the THz range (Chen and al., 2004, Wu and al., 2006).

Achieving this goal requires further exploration of two primary factors: (i) integrating electrode configurations that minimally interact with THz waves (Yang and al., 2015, Fan and al., 2022), and (ii) understanding the relationship between the long interaction length of THz waves with LCs and their high absorption in liquids (Reuter and al., 2013). Indeed, it is worth mentioning that, in the transmission mode (which is our main interest), the larger the sample, the further away peripheral metal electrodes must be placed to drive the LC, which inevitably will increase the required voltages (Wu and al., 2006). Alternative approaches were explored, for example, by using carbon nano tube surfaces (Fan and al., 2022). However, the industrial process for manufacturing thin films of these materials is not yet well established. In addition, the two-dimensional (2D) uniformity of liquid crystals in cells with layers a millimeter thick or more - essential for inducing significant birefringence in the THz range - has not been confirmed. Successful manufacture and characterization of these large LC cells could pave the way for new phase plates of various shapes, such as vector beams (Petrov and al., 2022), tailored to the desired operating frequency. It is therefore essential to develop and demonstrate multiple alternatives for broadband, low-loss, large-aperture active LC devices operating in the THz range.

In this work, we present a new large-aperture LC cell structure featuring interdigitated electrodes with low losses for THz waves. The cell features a 25 mm diameter aperture operating in the 0 to 1 THz range. To characterize the LC sample with its new electrode design, we used THz time-domain spectroscopy (THz-TDS). Unlike optical measurements, which rely on sensors to obtain intensity, the time-resolved capability of THz-TDS allows us to capture both the amplitude and phase of the electric field (Neu and al., 2018). This feature makes THz-TDS particularly useful for characterizing phase modulators such as LC devices. Combined with a raster scanning unit, it provides a complete 2D mapping of the uniformity of LC devices. In addition to the spatial distribution of cell birefringence, our results show a significant phase shift of 7 rad/THz. We have also confirmed the minimal losses associated with the thin indium oxide (ITO) interdigital electrode when oriented in the optimum operating position. Finally, real-time measurements of the device at 300 GHz reveal a switching time of 16 seconds followed by a slow natural reorientation of almost an hour after the bias voltage is switched off.

2.2 Materials and methods

2.2.1 Liquid crystal sample

We have used here a nematic LC, which is an anisotropic fluid (De Gennes and al., 1993) with an anisotropy axis (along the unit vector \mathbf{n} , called director; and defined by the average molecular orientation of the LC) that can be reoriented by external electric or magnetic fields (Wu and al., 2006, Yang and al., 2015). This allows the dynamic manipulation of the effective extraordinary refractive index n_e of the LC:

$$n_e(\theta) = \frac{n_{\parallel} n_{\perp}}{\sqrt{n_{\perp}^2 \sin^2 \theta + n_{\parallel}^2 \cos^2 \theta}}, \quad (2.1)$$

where θ is the angle between the wavevector and the director; n_{\parallel} and n_{\perp} are refractive index values for electric inductions aligned, respectively, along the director and in the perpendicular direction. The value $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp}$ is defined as optical birefringence of the medium.

Novel compounds have been synthesized to increase the birefringence and reduce absorption and dichroism in microwave and THz ranges (Reuter and al., 2013). The value of birefringence is crucial for THz phase shifters, as it dictates the amount of liquid required for the desired function. The maximal achievable optical phase difference $\Delta\varphi$ can be estimated using the following equation:

$$\Delta\varphi = \Delta n d \frac{2\pi}{\lambda_0}, \quad (2.2)$$

where λ_0 is the wavelength in vacuum.

Typically, the visible applications (e.g., $\lambda_0 = 0.5 \mu\text{m}$) require LC cells of micrometer thicknesses. However, in the THz domain (with wavelengths at the order of 1 mm) they must be much thicker (in the order of millimeters) to reach noticeable phase modulations. This makes the reorientation times longer (minutes) (Neuder and al., 2024) and create challenges in the cell orientation and tunability.

The sample, illustrated in Fig. 1(a), contains liquid crystals that are 1600 μm thick with a clear aperture diameter of 1 inch (25 mm). It is filled with mixture 1825 of nematic liquid crystal,

whose properties are described in detail in references (Chodorow and al., 2013) and (Mansourian and al., 2021). This cell consists of two glass substrates with a thickness $t = 550 \mu\text{m}$. A thin layer (40 nm) of polyimide is applied, baked, and rubbed to maintain the planar orientation of the LC molecules. The glass substrates are bonded together using UV glue, with liquid crystal filled in between.

Generally, for applications with electromagnetic waves located in the visible spectrum, electrodes are made from a homogenous thin layer of conductive indium tin oxide (ITO), directly deposited onto the substrates. This is already a very well-established technology in the display industry, which explains our interest to these materials. However, ITO film is only transparent in the visible and near-IR range, while completely attenuating THz waves. This approach is therefore unsuitable for THz applications, and another electrode solution needs to be proposed, such as, side electrodes (Chodorow and al., 2013). The present paper proposes an interdigital ITO electrode design (see Fig. 1(b)), composed of thin patterned ITO tracks of about 30 nm width, with a periodicity (pitch) of $370 \mu\text{m}$. This structure is similar to metal-grid THz polarizers, which are commonly used to polarize or attenuate THz waves (Blanchard and al., 2014). Our experiments with linearly polarized THz pulses show that this specific patterned ITO configuration achieves near-perfect transmission in the operating orientation. In addition, the use of a liquid crystal layer thicker than 1 mm allows relatively large interdigitated electrode spacings ($370 \mu\text{m}$), as the electric field inside the liquid crystal layer is smoothed (Wu and al., 2006). This approach is particularly promising for transmission-mode phase modulation applications.

Figure 2.1(c) shows the two experimental conditions, i.e., with and without the application of a bias voltage (V-bias), and illustrates the orientation of LC molecules' as a function of bias voltage. To induce a phase shift on the THz wave, a square voltage of 1 kHz and 20 volts AC was applied to the electrodes. Initially, with no voltage applied, the LC molecules align parallel to the cell substrates and along the direction perpendicular of the electrode's stripes. Upon applying voltage, molecules align along the bias field direction. This direction is parallel to the THz beam propagation. Therefore, when the biased voltage is applied, no change in refractive index is expected with respect to the rotation angle of the LC cell (i.e., no perceived birefringence exists). We therefore study the THz properties of our LC cell by measuring the

THz pulses transmitted at 10° angular intervals, from 0° to 360° , when the voltage is switched off, then repeating this measurement when the voltage is switched on. To validate the phase change obtained when the electric field is applied, we calculate the differential between the phase values for the voltage-on and voltage-off measurements for each angle of rotation. It should be noted that our measurements were carried out over the entire aperture using a 2D time-domain scan. It's important to note that a THz polarizer is placed before the LC cell to ensure that only linearly polarized light passes through the sample.

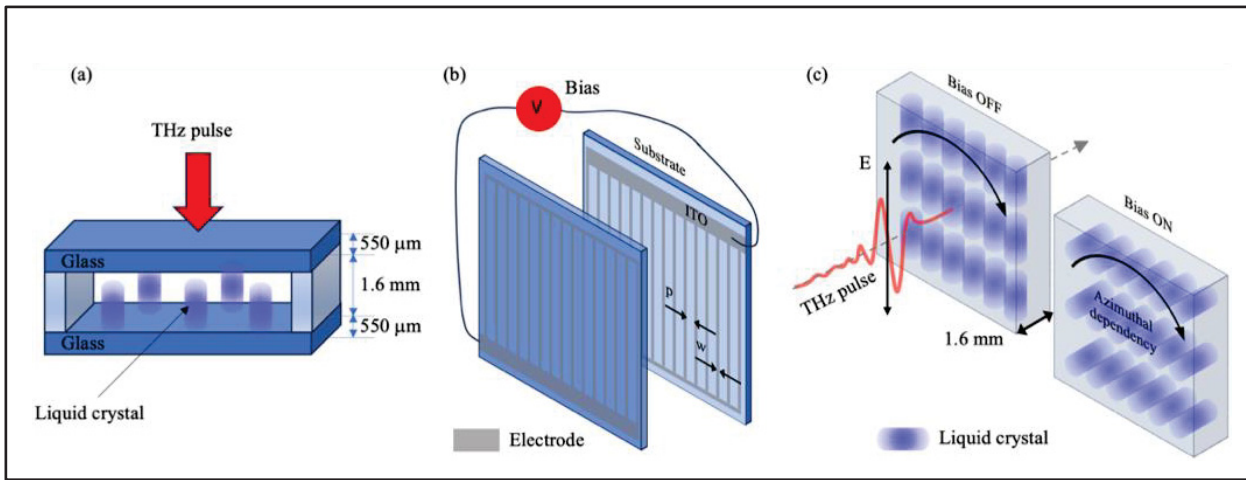


Figure 2.1 (a) Illustration of the LC sample with its physical dimension. (b) Configuration of the electrodes deposited on the glass substrate. The liquid crystal is inserted between the two substrates. (c) Illustration of molecule orientation as a function of bias voltage

2.2.2 Experimental setup TDS

Figure 2(a) shows the THz-TDS used in this experiment, a Toptica system, model TeraFlash pro, which uses InGaAs photoconductive antennas for emission and detection, pumped by laser pulses with a wavelength of 1550 nm. As this figure also shows, THz radiation is collected and guided by four one-inch diameter 90° off-axis parabolic mirrors (OAPMs). The sample is placed at the focal point of the THz beam, between the second and third OAPMs. A 2-inch-diameter wire-grid polarizer is placed before the sample to ensure that the incoming THz beam is linearly polarized. The TeraFlash system allows spectroscopic measurements from 100 GHz to 4 THz, as shown in Fig. 2.2 (b) with the time-domain traces in inset. However, due to the

absorption in the two glass substrates, measurements are limited to the 100-1000 GHz range. The measurement of the reference pulse was done in ambient air.

To understand the impact of the electrodes, substrates, and liquid crystals, we examine THz pulses through three configurations: (1) a single glass substrate plate, (2) a glass plate with an ITO interdigital electrode, and (3) a complete cell with two substrates and electrodes but without LC material. Notably in Fig. 2.2 (b), the spectrum of the substrate (yellow) completely overlaps with that of the configuration with one electrode when the latter is set perpendicular to the THz field polarization (Mansourian and al., 2021). Additionally, the spectra of the empty cell (green) and the cell containing LCs (red) are mostly equivalent, as expected given that the absorption of the LC mixture is about 5 cm^{-1} in this frequency range (Reuter and al., 2013). Using these data and equation (5) as presented in the next section, we determined that the extraordinary index at 300 GHz was 1.76 for the liquid crystal used in this study. This value was obtained by analyzing the time-domain traces of the cell containing the liquid crystal and the cell without the liquid crystal.

As we will discuss below, the phase needs some extra care to have a good correlation between biased and unbiased measurement. Moreover, this situation becomes more critical if 2D mapping is performed (Gueboukha and al., 2018, Herráez and al., 2002). Indeed, it should be noted that the LC assessment, carried out in this work, was obtained by systematically scanning the entire LC cell via a raster scanning. The imaging device comprises two precise linear stages for scanning the sample through the focus of the THz beam. For this sample, the imaging area covers $25 \times 25 \text{ mm}^2$ with a resolution of 0.5 mm in each axis, resulting in a total of 2500 THz traces. To better understand the transmission behavior and phase change of the LC device, we will also present the azimuthal dependence of the normalized amplitude and phase information in the next section.

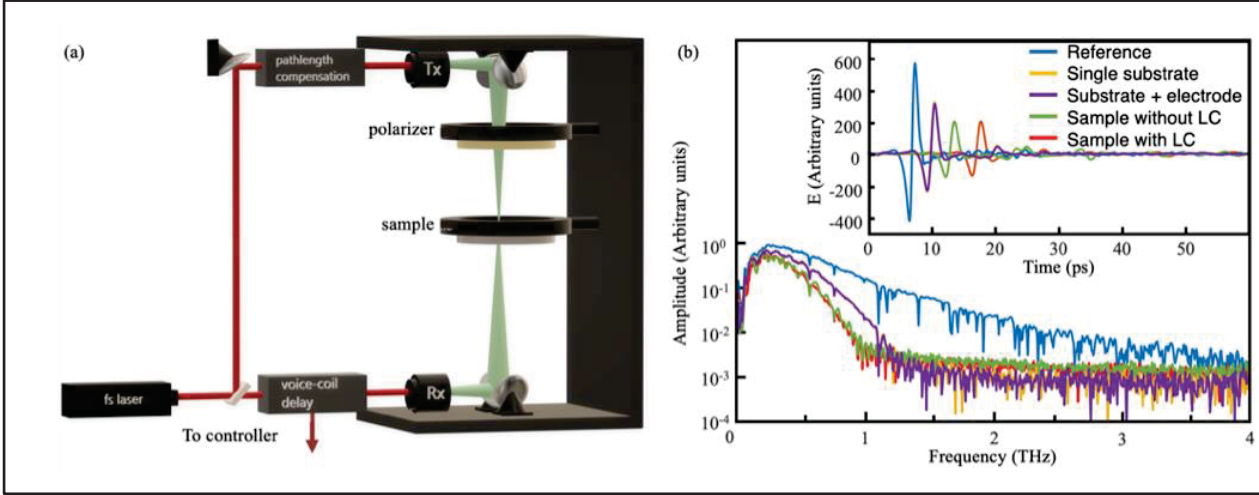


Figure 2.2 (a) Schematic of the THz-TDS system. (b) Spectra of Fourier transform of the THz pulse and the time-domain signal in inset of the reference (blue) and different samples

2.3 Results and discussion

2.3.1 Normalized transmission

Unlike the complexity of active phase-change measurements in reflection mode (Herráez and al., 2002), THz measurements in transmission mode are easier to perform because the path, travelled by the THz beam, remains constant between measurements. However, significant absorption in samples can introduce a substantial error in phase change, particularly when the phase starts to wrap around itself. In transmission, the sample is mounted at normal incidence with respect to the propagation direction of the THz radiation. This prevents additional signal losses caused by lateral shift of the THz beam, which occurs due to refraction in the sample. The measured transmission function of a sample and a reference measurement can be express as follow (Neu and al., 2018):

$$\tilde{T}(f) = \frac{\tilde{E}_s(f)}{\tilde{E}_r(f)} = |T|e^{i\Delta\phi} \quad (2.3)$$

where $\tilde{E}_s(f)$ is the Fourier-transformed time trace recorded through the sample, $\tilde{E}_r(f)$ is the Fourier-transformed reference time trace recorded through air, $|T|$ is the transmission amplitude and $\Delta\phi$ is the frequency-resolved phase difference between the two signals.

Measurement of phase and spectral amplitude enables direct calculation of complex-valued physical properties of materials, such as absorption α and refractive index n . As mentioned previously, we have determined an average refractive index of 1.7 for liquid crystals with a thickness of $d=1.6$ mm using the following formula (Neu and al., 2018):

$$\alpha(f) = -\frac{2}{d} \ln \left[|T| \frac{(n+1)^2}{4n} \right], \quad (2.4)$$

$$n(f) = 1 + \frac{c\Delta\phi}{2\pi f d}, \quad (2.5)$$

where c is the speed of light and f is the THz frequency.

The initial evaluation of the LC device aims to understand the influence of the electrodes and polarization field on THz wave transmission as a function of cell rotation, i.e., keeping the incoming THz polarization fixed. Indeed, significant transmission losses from the electrodes would render it ineffective as an active phase modulator. It is therefore important to determine if the electrode is properly aligned with the operating orientation angle of the LC device. Figure 3(a) shows a visible image of the LC device used for analyzing transmission as a function of rotation. Figure 2.3 (b) shows the variation in phase ($\Delta\Phi$) or normalized phase, obtained by subtracting the phase information under bias-off conditions from that under bias-on conditions. This figure shows two distinct regions: one with strong phase changes and the other with no phase change. This behavior is repeated twice over the entire rotation, as expected due to the symmetry of the elongation shape of the liquid crystals. In this figure, we'll focus our analysis on two specific angles, as indicated by the two orange dotted lines: 270 degrees for significant phase modulation and 180 degrees for a region with no phase change. The extraction of the phase difference for these two cases are shown in Fig. 2.3 (c). This figure shows that a significant phase shift is obtained in the region from 100 GHz to 1THz, with the LC device behaving like a quarter-wave plate at 260 GHz and like a half-wave plate at 520 GHz. Next, we measured the normalized amplitude transmission across the frequency range of 0 to 1 THz

for different rotation angles in three specific cases: (d) a glass plate with an ITO interdigital electrode, (e) biased LC device, and (f) unbiased LC device. All normalized transmissions are obtained from the FFT response of the sample compared with the FFT of a pulse propagating only in air (without sample). In Fig. 2.3 (d), the modulation of the normalized transmission as a function of the rotation angle of the single substrate with the ITO electrode layer is influenced solely by the attenuation of the electric field parallel to the electrode stripes. This attenuation is similar to the effect produced by a wire grid polarizer on an electromagnetic wave (Blanchard and al., 2014). It's important to note that the strongest transmission is observed at 270 degrees and 90 degrees, where phase changes are maximal. A second important result in Fig. 2.3 (e) and (f) is that the normalized amplitude transmission remains virtually unchanged with and without bias voltage. Unfortunately, above 1 THz, high absorption losses make it extremely difficult to develop THz LC cells using glass substrate that can operate efficiently at these frequencies. To overcome this problem, a new substrate with a lower absorption coefficient (such as diamond) could be used. The second important piece of information is to note that maximum absorption occurs for rotation angles that will not be used when activating the cell polarization field (e.g., for angles around 0° or 180°).

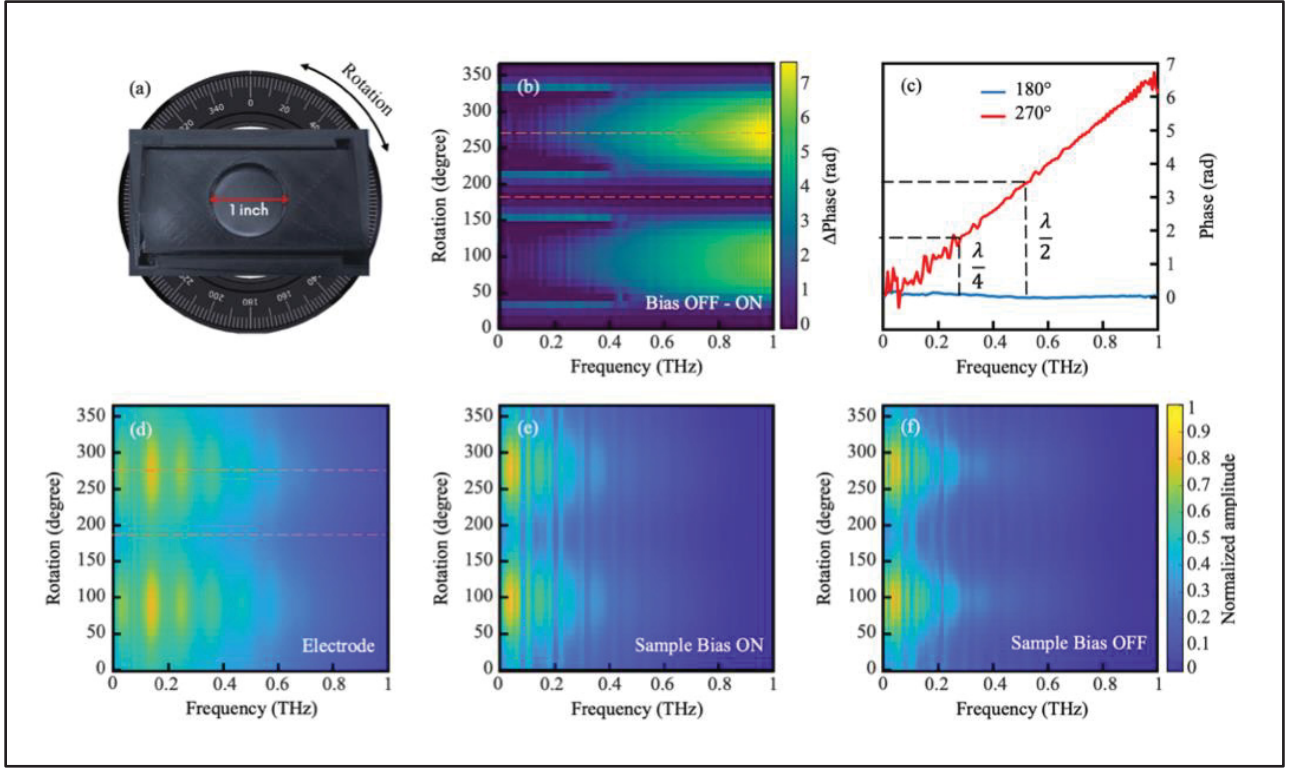


Figure 2.3 (a) Visible image of the LC sample with its rotating mount. (b) Phase shift vs. frequency at various angles, with (c) showing maximum (red) and minimum (blue) phase shifts. (d) Normalized transmission of a single glass substrate with ITO electrode. Normalized transmission of the LC sample (e) without bias voltage, and (f) with bias voltage. All data are normalized to a reference pulse in air without sample, and taken as a function of THz bandwidth and sample rotation angle

2.3.2 Active phase modulation

To assess the impact of angle of rotation and applied bias voltage on liquid crystals, we recorded both amplitude and phase of the signal at different frequencies from 0 to 1 THz. Phase information was extracted from the angle value after performing a Fourier transform (FFT) on the time-domain data. The phase spectrum, derived directly from the angle between the real and imaginary parts of the transfer function, is generally bounded between $-\pi$ and π . This wrapping phenomenon means that whenever the phase value exceeds π in absolute magnitude, it wraps around the opposite polarity of 2π . This effect, known as phase wrapping, also occurs

when performing FFT on noisy signals. It is therefore vital to differentiate between a legitimate phase jump, i.e., one that arises from a significant phase change, and a phase jump related to the low signal-to-noise ratio of the data, which therefore does not correspond to a real phase change. To mitigate this bias, a modified Blackman Window is applied to each time-domain data before proceeding with the FFT calculation, i.e., attenuating the values at both ends using cosines:

$$\begin{cases} w(i) = 0.5 \left(\cos \left(\frac{\pi}{a_s - 1} (i - (a_s - 1)) \right) + 1 \right), 0 \leq a_s \\ w(i) = 1, a_s \leq i \leq n - a_e \\ w(i) = 0.5 \left(\cos \left(\frac{\pi}{a_e - 1} (i - (n - a_e)) \right) + 1 \right) \end{cases} \quad (2.6)$$

a_s represents the length of the region at the start, a_e the length of the region at the end, and n , the total length of the pulse.

Although this filtering procedure reduces the occurrence of phase wrapping in a single time-domain trace, extracting the phase angle from a time-domain hypercube (a 2D spatial mapping of a sample with the third dimension being temporal evolution) may still result in 2π phase jumps across all three axes. To ensure a continuous phase distribution along both spatial and spectral axes, a 3D phase unwrapping algorithm is employed to unwrap the phase information in 2D (Herráez and al., 2002). This algorithm has been selected due to its low time complexity allowing it to function seamlessly on large images. The linear relationship between the frequency and the unwrapped phase allows the reconstruction of an image by using the slope of the linear regression in every pixel. The region is determined by finding the start and stop indices that maximise the coefficient of determination (R^2) of the linear fit on regions of varying length. To reduce time complexity, this operation is only performed on the pixel located at the center of the images.

Using this algorithm, Fig. 2.4 (a) and (b) represent the unwrapped differential phase of the full aperture, when bias is on and then off, of THz data measured for two distinct angles where maximum and minimum phase shifts occurred: 180° and 270° , respectively. In Fig. 4(a), the

maximum phase shift as a function of frequency, in units of [rad/THz], can be directly extracted from the above algorithm, with a linear fit. It can also be seen that a rotation difference of 90° from the maximum position at 270° results in a minimal phase shift, as shown in Fig. 2.4 (b). Indeed, a near-zero differential phase shift is observed at the 180° rotation position, as expected based on the LC orientation shown in Fig. 2.3(b).

In these differential raster-scan imaging in transmission mode, a quick assertion of the LC device can be made. The red and blue tones indicate the areas with the highest and lowest phase differences, respectively. To understand this linear behavior of the differential phase change as a function of THz frequency, Fig. 2.3(c) illustrates this dependence for the two orientations of 180° and 270° . However, as seen in Fig. 2.4(a), certain areas, such as the right-side part of the sample at 270° , reveal a smaller phase difference which may be the consequence of a thinner layer of liquid crystal (cell deformation during the manual fabrication). To visualize the variation in the differential phase distribution, Fig. 2.4(c) displays the rad/THz profile extracted for the two rotation cases. These curves were obtained along the X and Y directions from the white dotted lines visible in Fig. 4(a) and (b). The difference between the cross-sections of the X and Y axes clearly indicates the spatial inhomogeneity within the cell. In fact, the phase decrease beyond 20 mm observed at 270° along the x-axis in Fig. 4(c) is due to liquid crystal inhomogeneity. The phase difference is linearly proportional to the liquid crystal thickness, so a thinner liquid crystal layer results in a smaller phase difference, as shown in Fig. 4(c). Over time, when the device is stored vertically, the liquid crystal molecules shift within the cell, causing uneven distribution and disrupting uniform alignment. This variation in refractive index leads to inconsistent phase transmission and the decrease observed in the measurements.

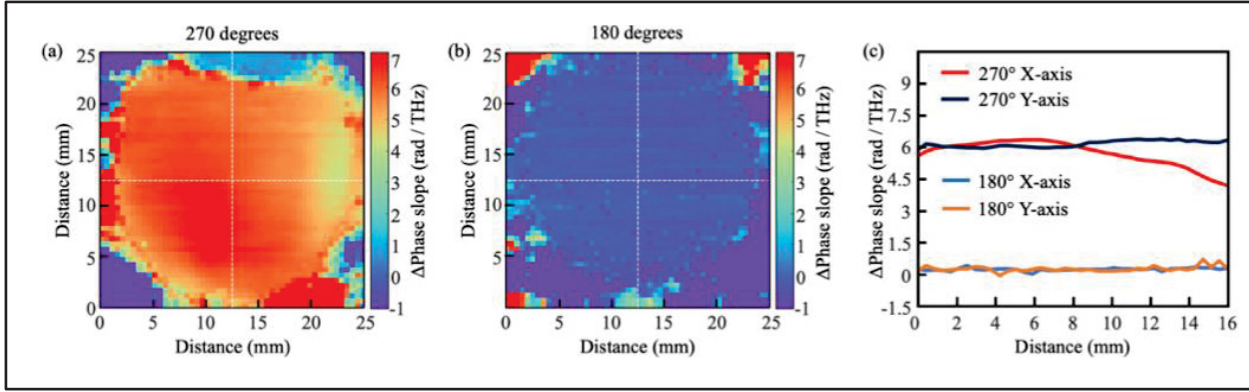


Figure 2.4 (a) TDS image of phase shift between non-active and active cell at 180 degrees. (b) TDS image of phase shift between non-active and active cell at 270 degrees. (c) Phase shift between non-active and active vs position on the cell at different angle

2.3.3 Relaxation time measurement of the LC molecules

The response times are crucial for investigating any active modulator. For a 1.6 mm thick LC solution, we expect that the turn-on (τ_{on}) and turn-off (τ_{off}) times will be relatively long, as indicated by the following equations (Herráez and al., 2002):

$$\tau_{off} = \frac{\gamma_1 d^2}{K_x \pi^2} \quad (2.7)$$

$$\tau_{on} = \frac{\tau_{off}}{\left| \left(\frac{V}{V_{th}} \right)^2 - 1 \right|} \quad (2.8)$$

$$V_{th} = \sqrt{\frac{K_x}{\epsilon_0 \Delta \epsilon}} \quad (2.9)$$

where $\Delta \epsilon$ and V are the dielectric anisotropy of the LC and the switching bias voltage of the cell respectively, γ_1 is the rotational viscosity and K_x is the appropriate expression for the elastic constant of the LC mixture, which is dependent upon the alignment of the LC cell. V_{th} is the threshold voltage of the LC cell.

Given the squared dependence of activation and deactivation times on thickness, fast devices at THz frequencies require thin cells filled by materials with relatively high birefringence (Neuder and al., 2024). While the birefringence of LC mixtures is well documented at visible

frequencies, their properties at THz frequencies are less well understood. Figure 2.5 shows phase changes in real time relative to the off state (no voltage on the electrodes) at 0.3 THz, with the inset showing a close-up view of the phase change relative to the on state (presence of a polarized voltage). This measurement was performed using a continuous-wave (CW) THz system, as described previously (Le Boulout and al., 2023). The molecules respond rapidly to the electric field once the voltage is applied, but natural relaxation is slower. Our measurements indicate a switching time of 16 seconds for the device. It should be noted that the response is fast under an electric field due to $\tau_{\text{on}} \propto 1/E^2$ thanks to our large applied DC field of 12.5 V/m. However, complete relaxation of the molecules in the LC to their initial planar position takes around an hour, indicating a significant delay once the electric field is removed, as $\tau_{\text{off}} \propto d^2$. Fortunately, this long response time could be improved by introducing an additional set of electrodes to return the molecules to their initial state (Oh-e and al., 2023). We are currently testing next generation of electrodes (patent pending), which would allow not only generating an electric field that is perpendicular to cell substrates (used to reorient molecules from their ground state), but also, when desired, we can generate electrical field with a significant component that is parallel to these substrates. This should allow helping bringing back the molecular orientation much faster than the natural relaxation. We shall report the corresponding results soon.

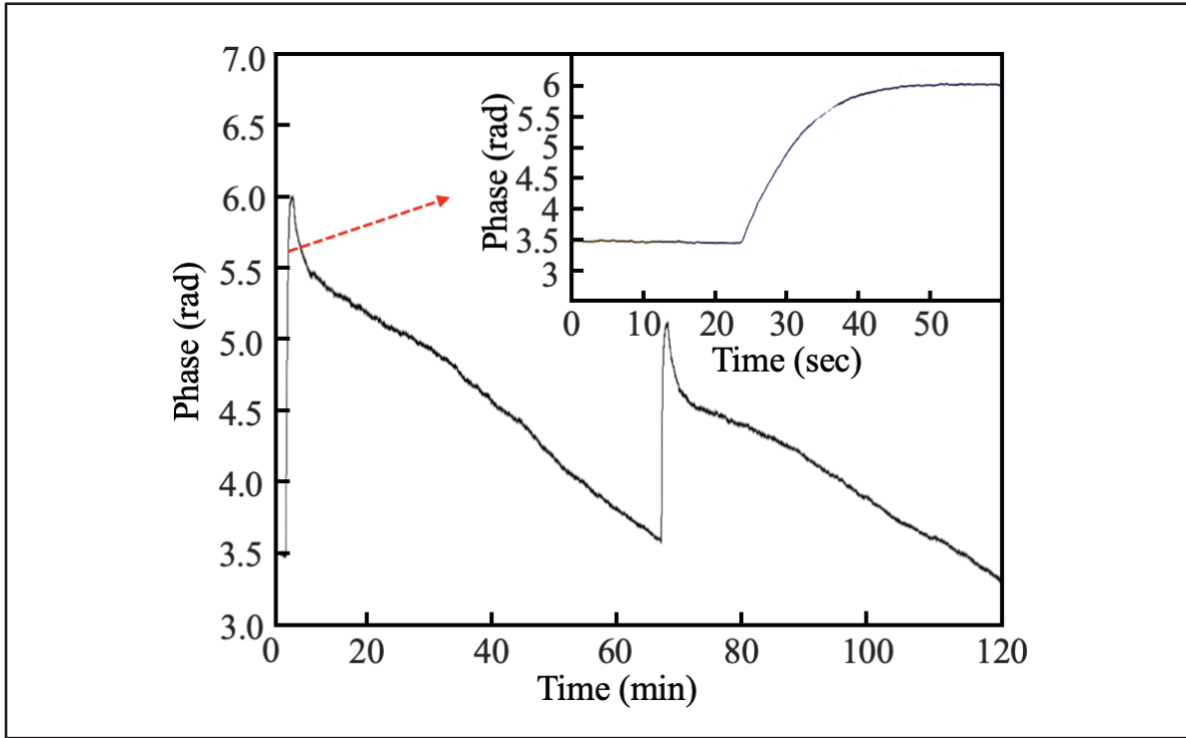


Figure 2.5 Real-time phase response to voltage activation and deactivation. Zoomed view of activation in inset

2.4 Conclusion

In summary, we have fabricated and fully characterized a large aperture LC cell using THz time domain spectroscopy and raster scanning imaging. We found that the LC cells operate in the low THz frequency range, specifically between 100 GHz and 1 THz. Additionally, we demonstrated that the maximum relative phase difference corresponds to the maximum transmission of the LC cell, which is crucial for future applications. Moreover, THz-TDS coupled with raster imaging capability proved sufficiently sensitive for studying these cells and mapping the inhomogeneity of LC thickness across the entire aperture. We also determined that our large aperture LC cell functions as a controllable quarter-wave plate and half-wave plate at 0.26 THz and 0.52 THz, respectively. In summary, our work confirms the fabrication process for aligning molecules in a 1.6 mm thick LC cell. We also validate the functionality of our novel ITO electrode configuration for THz waves. THz-TDS successfully characterized the 2D mapping of phase changes, and real-time CW THz phase tracking monitored the LC

sample's switching time. This study paves the way for future characterization of LC cells operating at THz frequencies, essential for enabling applications such as THz modulators.

ACKNOWLEDGMENT

Funding. F. B. gratefully acknowledges financial support from NSERC grant number 2023-03322, and the CRC tier2 grant number CRC-2019-127 on Spatiotemporal encryption of THz light. T.G. thanks NSERC for the grant 05888, CRC for the grant 230212 and the Volkswagen Group Innovation for their valuable advises. The authors acknowledge financial support from NSERC grant number RGPIN-2023-03322, and the CRC tier2 grant number CRC-2019-00127 on Spatiotemporal encryption of THz light.

CONFLICT OF INTEREST

The authors have no conflicts to disclose.

DATA AVAILABILITY

Data underlying the results presented in this paper are not publicly available at this time, but may be obtained from the authors upon reasonable request.

2.5 Appendix

To evaluate the influence of the rotation angle and the bias voltage applied to the liquid crystals, we measured the azimuthal dependence of the amplitude and phase of the sample with and without applied bias voltage. The results of the phase images with and without an applied field are shown in Fig. 2.6. for the angle 180° and 270° . In this figure, the phase modulation shows sinusoidal behavior without the application of an external electric field, confirming the natural alignment of the LC dipoles inside the cell. However, the application of an external field has completely erased the polar response, as predicted by the orientation of the LC molecules.

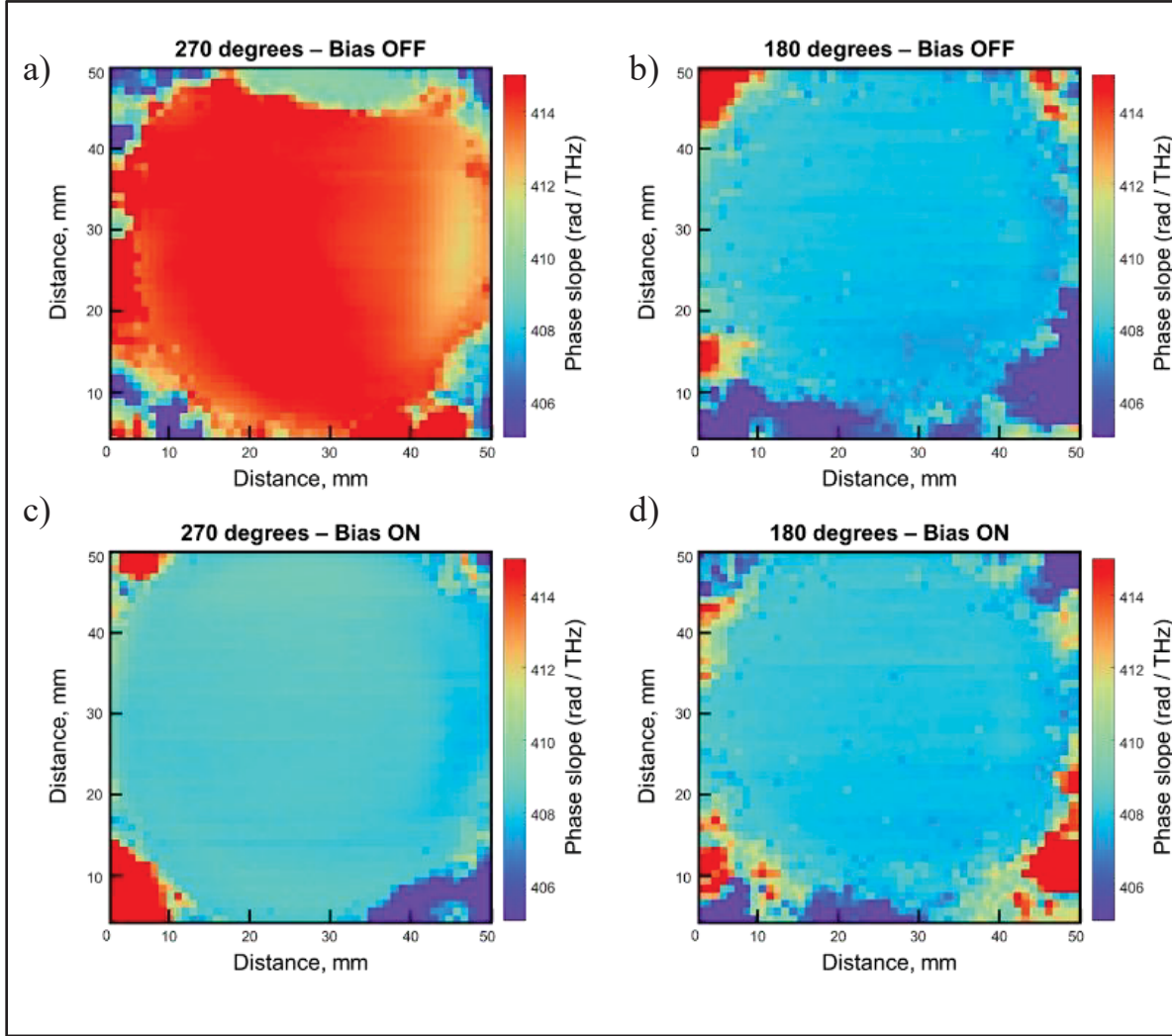


Figure 2.6 TDS image of phase value for (a) non-active and (c) active cell at 270 degrees.

TDS image of phase value for (b) non-active and (d) active cell at 180 degrees

CONCLUSION

L'objectif principal de ce travail était de caractériser un dispositif électro-optique de modulation de phase à grande ouverture fonctionnant dans la gamme de fréquence THz. Pour atteindre l'objectif visé dans l'introduction, cette thèse a été structurée comme suit : le premier chapitre présente une brève revue de la littérature sur certains aspects fondamentaux du rayonnement THz.

Dans ce chapitre, nous avons présenté, parmi les méthodes existantes, la technique utilisée dans nos expériences pour la génération et la détection de ces ondes. Ces outils comprennent des méthodes de caractérisation. En effet, les techniques de spectroscopie THz temporelles et dans le domaine fréquentiel ont été présentées. Pour comprendre la physique de notre dispositif, les notions de base sur les cristaux liquides et leur dynamique ont été illustrées. Enfin, certaines applications liant ces matériaux aux applications THz nous a permis de révéler l'intérêt de notre étude.

Le deuxième chapitre présente les résultats de nos études et quelques discussions. En suivant la méthodologie élaborée au chapitre deux, nous avons commencé la première section par la conception d'électrode, composée de fines bandes d'ITO interdigitées. Cette structure est similaire à un polariseur THz à grille métallique couramment utilisé comme polariseur et atténuateur THz. Par conséquent, la configuration de l'électrode doit être bien caractérisée pour comprendre pleinement les propriétés de transmission finales de notre dispositif THz LC.

À partir de la description du matériau et du système de caractérisation, la section suivante traite des propriétés THz de notre cellule LC en mesurant les impulsions THz transmis. Les mesures sont réalisées à des intervalles angulaires de 10° , de 0° à 360° , lorsque la tension est éteinte, puis en répétant cette mesure lorsque la tension est allumée. Pour valider le changement de phase obtenu lorsque le champ électrique est appliqué, nous calculons la différence entre les valeurs de phase pour les mesures tension allumée et tension éteinte pour chaque angle de rotation. Il est important de noter qu'un polariseur THz est placé avant la cellule LC pour s'assurer que seule la lumière polarisée linéairement passe à travers l'échantillon. La cellule présente une transmission à deux angles d'intérêt et révèle une influence directe de leur

signature de transmission avec l'orientation des molécules de cristaux liquides. Les LC ont des propriétés d'absorption complémentaires, qui varient considérablement en fonction de l'épaisseur de la cellule et de l'électrode choisie. Tout au long de cette étude, nous avons étudié la performance des cellules à cristaux liquides et observé que la différence de phase relative maximale correspond directement à la transmission maximale, ce qui est crucial pour les applications futures. Ensuite, la sensibilité de l'imagerie matricielle THz nous a permis de détecter les variations d'épaisseur des cellules LC sur l'ensemble de l'ouverture, un facteur essentiel pour le maintien d'une performance uniforme. Nos résultats montrent que les cellules LC à grande ouverture fonctionnent comme une plaque quart d'onde à 0,26 THz et comme une plaque demi-onde à 0,52 THz. En tant que technique de test sans contact et non destructive, la spectroscopie est parfaitement adaptée à la caractérisation détaillée des cellules à cristaux liquides (LC) à grande ouverture et pourrait finalement servir de paramètre de rétroaction pour optimiser les performances de l'activation en temps réel.

Cette recherche améliore non seulement notre compréhension des cellules LC aux fréquences THz, mais ouvre également la voie à leur utilisation dans des applications telles que les modulateurs THz. Nos résultats soulignent le potentiel de la technologie THz pour améliorer la précision et la fonctionnalité des dispositifs optiques, fournissant une base solide pour la recherche future et la mise en œuvre industrielle. L'étude met en évidence les voies prometteuses pour l'avancement de la technologie des cellules LC et son intégration dans des systèmes optiques de haute précision.

Discussion et Recommandations

Pour poursuivre les travaux entamés durant cette maîtrise, plusieurs recommandations peuvent être proposées. Celles-ci concernent le développement de nouvelles structures de cellule à cristaux liquides.

Le premier ensemble de recommandations concerne la modification du substrat de verre par du plastique dans les plaques à grande ouverture de cristaux liquides. Actuellement, seul un modèle composé de molécules de LC entre deux plaques de verre est étudié. Les matériaux

optiques classiques, tels que le verre, absorbent fortement les THz (Naftaly et Miles, 2007), tandis que les matériaux cristallins, tels que le quartz, sont souvent anisotropes et moins absorbants. Un matériau idéal serait transparent à la fois dans le visible et dans les THz. Il devrait avoir un faible indice de réfraction pour réduire les pertes par réflexion et les aberrations géométriques, tout en étant proche de l'indice dans le visible pour faciliter l'alignement et le contrôle des dispositifs THz. Les propriétés thermoplastiques seraient également avantageuses pour la fabrication de lentilles et de plaques de phase. Dans la recherche de ce matériau idéal, il serait intéressant d'effectuer une étude sur les substrats à base de polycristallin, tel que le diamant, qui sont également mécaniquement robustes et peuvent être utilisés pour fabriquer des lentilles ou des plaques de phase pour des applications optiques (Xiao et al., 2023).

Le deuxième ensemble de recommandations concerne la structure d'électrodes permettant de commuter efficacement les cristaux liquides dans la construction d'un modulateur de phase. Le dispositif utilisait une orientation particulière des électrodes pour générer un champ électrique permettant de commuter le cristal liquide dans un plan. À l'issue de cette étude, nous avons réalisé que le comportement de commutation des cristaux liquides ne dépendait pas seulement du matériau des cristaux liquides, mais qu'il était extrêmement sensible à la géométrie globale des électrodes. Nous avons donc découvert que la variation des dimensions des électrodes influence un certain nombre de paramètres, tels que le déphasage et le temps de réponse de la commutation des cristaux liquides. Sur la base de cette découverte, il serait intéressant de proposer un nouveau type de commutation de cristaux liquides, permettant une commutation réversible entre les deux états d'orientation des cristaux liquides : un état dans le plan X et un état dans le plan Y, en modifiant la disposition et la géométrie des électrodes. L'application d'un champ dans un plan puis dans l'autre pourrait réduire le temps de relaxation des molécules de cristaux liquides en forçant le retour à la normale.

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- A. Le Boulout, A. Pusenkova, M. Zhuldybina, X. Ropagnol, T. Galstian, and F. Blanchard, "Characterization of active liquid crystal with continuous terahertz waves," In 2023 Photonics North (PN) (pp. 1-2). IEEE (2023).
- A. Leitenstorfer, et al., "The 2023 terahertz science and technology roadmap," J. Phys. D: Appl. Phys. 56, 1-95 (2023).
- A. Pusenkova, T. Gisder, M. Meinecke, H. Schroeder, H. G. Kurz, T. Galstian, "Liquid crystal dynamically steerable GHz and THz devices for automotive and other application," IRS-2024, Wrocław.
- A.K. Sahoo, Y.-H. Lin, C.-S. Yang, O. Wada, C.-L. Yen, and C.-L. Pan, "Electrically tunable dual-layer twisted nematic liquid crystal THz phase shifters with intermediate composite polymer thin film," Opt. Mater. Express 12(12), 4733 (2022).
- Alfihed, S.; Bergen, M.H.; Ciocoiu, A.; Holzman, J.F.; Foulds, I.G. Characterization and Integration of Terahertz Technology within Microfluidic Platforms. Micromachines (2018)
- B. Ferguson and X.-C. Zhang, "Materials for terahertz science and technology," Nat. Mater. 1, 26 (2002).
- Burford, N. M., & El-Shenawee, M. O. (2017). Review of terahertz photoconductive antenna technology. Optical Engineering, 56(1), 010901. <https://doi.org/10.1117/1.oe.56.1.01090>
- C. Ding, F.-Y. Meng, H.-L. Mu, J.-F. Lv, Y.-H. Liu, Q.-Y. Fang, S.-S. Xu, and Q. Wu, "Bifunctional co-design of liquid crystal phase shifter and band-stop filter," J. Phys. D: Appl. Phys. 52(41), 415002 (2019).
- C. Jansen, S. Wietzke, O. Peters, M. Scheller, N. Vieweg, M. Salhi, N. Krumbholz, C. Jördens, T. Hochrein, and M. Koch, "Terahertz imaging: applications and perspectives," Appl. Opt. 49, E48 (2010)
- C. R. Smith, D. R. Sabatino, and T. J. Praisner, "Temperature sensing with thermochromic liquid crystals," Experiments in Fluids 30, 190–201 (2001).
- C. S. Yang, C. Kuo, C. C. Tang, J. C. Chen, R. P. Pan, and C. L. Pan, "Liquid-crystal terahertz quarter-wave plate using chemical-vapor-deposited graphene electrodes," IEEE Photonics Journal 7, 1-8 (2015).
- C.-C. Chen, W.-F. Chiang, M.-C. Tsai, S.-A. Jiang, T.-H. Chang, S.-H. Wang, and C.-Y. Huang, "Continuously tunable and fast-response terahertz metamaterials using in-plane-switching dual-frequency liquid crystal cells," Opt. Lett. 40(9), 2021 (2015).

C.-Y. Chen, C.-F. Hsieh, Y.-F. Lin, R.-P. Pan, and C.-L. Pan, "Magnetically tunable room-temperature 2 pi Liquid crystal terahertz phase shifter," *Opt. Express* 12(12), 2625–2630 (2004).

Castro-Camus E, Johnston MB. Conformational changes of photoactive yellow protein monitored by terahertz spectroscopy. *Chemical Physics Letters*. 2008;455(4-6):289-292.

Ch. Fattinger and D. Grischkowsky, "Terahertz beams," *Applied Physics Letters* 54, 490–492 (1989).

Chodorow, U., Parka, J., Kula, P., Herman, J., Chojnowska, O., Dabrowski, R., & Chigrinov, V. G. "Terahertz properties of fluorinated liquid crystals. *Liquid Crystals*," 40(11), 1586–1590 (2013).

D. Demus et al. *Handbook of Liquid Crystals Set*. Wiley, 1998. doi: 10.1002/9783527619276.

D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, "Picosecond photoconducting Hertzian dipoles," *Applied Physics Letters* 45, 284–286 (1984).

D. M. Mittleman, "Perspective: Terahertz science and technology," *Journal of Applied Physics* 122, 230901 (2017)

D. Saeedkia and S. Safavi-Naeini, "Terahertz Photonics: Optoelectronic Techniques for Generation and Detection of Terahertz Waves," *J. Lightwave Technol.* 26, 2409–2423 (2008)

D. Wang, C. Liu, S. Lin, and Q. Wang, "Holographic display technology based on liquid crystal device," *J Soc Info Display* 28, 136–147 (2020)

Danciu, M.; Alexa-Stratulat, T.; Stefanescu, C.; Dodi, G.; Tamba, B.I.; Mihai, C.T.; Stanciu, G.D.; Luca, A.; Spiridon, I.A.; Ungureanu, L.B.; et al. Terahertz Spectroscopy and Imaging: A Cutting-Edge Method for Diagnosing Digestive Cancers. *Materials* 2019

Deng-Ke Yang and Shin-Tson Wu. *Fundamentals of Liquid Crystal Devices*. Wiley, 2014. doi: 10.1002/9781118751992.

Dexheimer, S. L. (2007). *Terahertz spectroscopy: principles and applications*. CRC press.

E. M. Pogson, R. A. Lewis, M. Koeberle, and R. Jacoby, "Terahertz time-domain spectroscopy of nematic liquid crystals," *Proc. SPIE* 7728, 77281Y (2010).

E. Pickwell and V. P. Wallace, "Biomedical applications of terahertz technology," *J. Phys. D: Appl. Phys.* 39, R301–R310 (2006)

F. Blanchard, K. Sumida, C. Wolpert, M. Trotsalas, T. Tanaka, A. Doi, S. Kitagawa, D. G. Cooke, S. Furukawa, and K. Tanaka, "Terahertz phase contrast imaging of sorption kinetics in porous coordination polymer nanocrystals using differential optical resonator," *Opt. Express* 22, 11061-11069 (2014).

F. Miyamaru, Y. Saito, K. Yamamoto, T. Furuya, S. Nishizawa, and M. Tani, "Dependence of emission of terahertz radiation on geometrical parameters of dipole photoconductive antennas," *Applied Physics Letters* 96, 211104 (2010)

Fritzsche, C., Snow, B., Sargent, J., Klass, D., Kaur, S. and Parri, O. (2019), 77-1: Invited Paper: Liquid Crystals beyond Displays: Smart Antennas and Digital Optics. *SID Symposium Digest of Technical Papers*, 50: 1098-1101. <https://doi.org/10.1002/sdtp.13120>

G. Deng, H. Hu, H. Mo, Z. Yin, H. Lu, M. Hu, J. Li, and J. Yang, "Liquid crystal-based wide-angle metasurface absorber with large frequency tunability and low voltage," *Opt. Express* 30(13), 22550 (2022).

Grischkowsky D, Keiding S, Van Exter M, et al. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *JOSA B*. 1990;7(10):2006-2015.

H. Guerboukha, K. Nallappan, and M. Skorobogatiy, "Toward real-time terahertz imaging," *Adv. Opt. Photon.* 10, 843 (2018).

H. Wu, C.-F. Hsieh, T.-T. Tang, R.-P. Pan, and C.-L. Pan, "Electrically tunable room-temperature 2π liquid crystal terahertz phase shifter," *Photonics Technology Letters, IEEE*. 18. 1488-1490 (2006).

H. Xiao, Z. Zhang, W. Xu, Q. Wang, Y. Xiao, L. Ding, J. Huang, H. Li, B. He, and F.M. Peeters, "Terahertz optoelectronic properties of synthetic single crystal diamond," *Diamond and Related Materials* **139**, 110266 (2023).

H. Yu, H. Wang, Q. Wang, S. Ge, and W. Hu, "Liquid Crystal-Tuned Planar Optics in Terahertz Range," *Applied Sciences*. 13, 1428 (2023).

He, Y., Parrott, E. P. & Pickwell-Macpherson, E. Adaptive sampling for terahertz time-domain spectroscopy and imaging. *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* 7, 118–123 (2017).

I. C. Khoo, D. H. Werner, X. Liang, A. Diaz, and B. Weiner, "Nanosphere dispersed liquid crystals for tunable negative-zero-positive index of refraction in the optical and terahertz regimes," *Opt. Lett.* 31, 2592-2594 (2006).

I. F. Akyildiz, J. M. Jornet, and C. Han, "Terahertz band: Next frontier for wireless communications," *Physical Communication* 12, 16–32 (2014).

Igor R. Guralnik, Mikhail Y. Loktev, and Alexander F. Naumov. "Electrophysics of adaptive LC lens with modal control". In: *International Conference on Atomic and Molecular Pulsed Lasers III*. Ed. by Victor F. Tarasenko, Georgy V. Mayer, and Gue- orgii G. Petrash. 2000. doi: 10.1117/12.383457.

J. B. Baxter, and G. W. Guglietta, "Terahertz spectroscopy," *Anal. Chem.* 83, 4342-4368 (2011).

- J. E. Bjarnason, T. L. J. Chan, A. W. M. Lee, M. A. Celis, and E. R. Brown, "Millimeter-wave, terahertz, and mid-infrared transmission through common clothing," *Applied Physics Letters* 85, 519–521 (2004)
- J. Neu, and C. A. Schmuttenmaer, "Tutorial: An introduction to terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS)," *Journal of Applied Physics* 124, 231101 (2018).
- J. Wang, H. Tian, S. Li, G. Wang, Y. Wang, L. Li, and Z. Zhou, "Dual-band terahertz switch with stretchable Bloch-mode metasurface," *New J. Phys.* 22(11), 113008 (2020).
- J. Wu, Z. Shen, S. Ge, B. Chen, Z. Shen, T. Wang, C. Zhang, W. Hu, K. Fan, W. Padilla, Y. Lu, B. Jin, J. Chen, and P. Wu, "Liquid crystal programmable metasurface for terahertz beam steering," *Applied Physics Letters* 116(13), 131104 (2020).
- Jepsen, P. U. (2019). Phase Retrieval in Terahertz Time-Domain Measurements: a "how to" Tutorial. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*. <https://doi.org/10.1007/s10762-019-00578-0>
- K. Ajito, Y. Ueno, H.-J. Song, E. Tamechika, N. Kukutsu, *Molecular Crystals and Liquid Crystals* 2011, 538, 33.
- L. Cheng, T. Sarkar, J. Lourembam, R. Tutchton, M. Motapathula, D. Zhao, J.-X. Zhu, T. Venkatesan, E. E. M. Chia, *Applied Physics Letters* 2020, 117, 261902
- L. Guiramand, J. E. Nneck, X. Ropagnol, T. Ozaki, and F. Blanchard, "Near-optimal intense and powerful terahertz source by optical rectification in lithium niobate crystal," *Photonics Research*, 10(2), 340 (2022).
- L. Liebermeister, S. Nellen, R. B. Kohlhaas, S. Lauck, M. Deumer, S. Breuer, M. Schell, and B. Globisch, "Optoelectronic frequency-modulated continuous-wave terahertz spectroscopy with 4 THz bandwidth," *Nat. Commun.* **12**(1), 1–10 (2021).
- Lee Y-S (2009) *Principles of terahertz science and technology*. Springer, New York, 340
- Lev M. Blinov. *Electro-optical and Magneto-optical Properties of Liquid Crystals*. Wiley, 1984.
- Louis Begel and Tigran Galstian. "Dynamic compensation of gradient index rod lens aberrations by using liquid crystals". In: *Applied Optics* 57(26) (2018), p. 7618. doi: 10.1364/ao.57.007618.
- M. A. Herráez, D. R. Burton, M. J. Lalor, and M. A. Gdeisat, "Fast two-dimensional phase-unwrapping algorithm based on sorting by reliability following a noncontinuous path," *Applied optics*, 41, 7437-7444 (2002).
- M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer, "Transient photoconductivity in GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy," *Phys. Rev. B* 62, 15764–15777 (2000)
- M. Koch, D. M. Mittleman, J. Ornik, and E. Castro-Camus, "Terahertz time-domain spectroscopy," *Nature Review Methods Primers* 3, 48 (2023).

M. Kumar and S. Kumar, "Liquid crystals in photovoltaics: a new generation of organic photovoltaics," *Polym J* 49, 85–111 (2017)

M. Mansourian, M. Zhuldybina, X. Ropagnol, N. D. Trinh, C. Bois, and F. Blanchard, "Fabrication and characterization of a terahertz polarizer from a roll-to-roll printer," In *2021 Photonics North (PN)* (pp. 1-1). IEEE (2021).

M. Oh-e, and D. Y. Zheng, "Reversibly switching liquid crystals between three orthogonal orientation states for use in rapid-response THz phase shifters," *Optics Express* 31, 8632-8640 (2023).

M. Reuter, N. Vieweg, B. M. Fischer, M. Mikulicz, M. Koch, K. Garbat, R. and Dąbrowski, "Highly birefringent, low-loss liquid crystals for terahertz applications," *APL Mater* 1, 012107 (2013).

M. Tonouchi, "Cutting-edge terahertz technology", *Nature Photon* 1, 97–105 (2007).

M.-R. Nickpay, M. Danaie, and A. Shahzadi, "Highly Sensitive THz Refractive Index Sensor Based on Folded Split-Ring Metamaterial Graphene Resonators," *Plasmonics* 17(1), 237–248 (2022).

Markelz AG, Knab JR, Chen JY, et al. Protein dynamical transition in terahertz dielectric response. *Chemical Physics Letters*. 2007;442(4-6):413-417.

Mittleman, D. M. (2017). Perspective: Terahertz science and technology. *Journal of Applied Physics*, 122(23). <https://doi.org/10.1063/1.5007683>

N. V. Petrov, B. Sokolenko, M. S. Kulya, A. Gorodetsky, and A. V. Chernykh, "Design of broadband terahertz vector and vortex beams: I. Review of materials and components," *Light: Advanced Manufacturing* 3, 640-652 (2022).

O. Masahito, and D.-Y. Zheng, "Reversibly switching liquid crystals between three orthogonal orientation states for use in rapid-response THz phase shifters," *Opt. Express* 31, 8632-8640 (2023).

O. Yurduseven, S. D. Assimonis, and M. Matthaiou, "Intelligent reflecting surfaces with spatial modulation: An electromagnetic perspective," *IEEE Open Journal of the Communications Society* 1, 1256-1266 (2020).

Oleksandr Sova and Tigran Galstian. "Liquid crystal lens with optimized wavefront across the entire clear aperture". In: *Optics Communications* 433 (2019), pp. 290–296. doi: 10.1016/j.optcom.2018.10.030.

Owen, A. J. (1995). *Uses of Derivative Spectroscopy*. Spectroscopy, 8.

P. G. De Gennes, and J. Prost, (1993). *The physics of liquid crystals* (No. 83). Oxford university press.

P. U. Jepsen, D. Cooke, and M. Koch, "Terahertz spectroscopy and imaging – modern techniques and applications," *Laser & Photonics Reviews* 5, 124-166 (2011).

- Q. Mu, Z. Cao, L. Hu, D. Li, and L. Xuan, "Adaptive optics imaging system based on a high-resolution liquid crystal on silicon device," *Opt. Express* 14, 8013 (2006).
- R. A. Lewis, "A review of terahertz detectors," *Journal of Physics D: Applied Physics* 52, 433001 (2019).
- R. Ahmad, M. Zhuldybina, X. Ropagnol, N. D. Trinh, C. Bois, J. Schneider, and F. Blanchard, "Reconfigurable Terahertz Moiré Frequency Selective Surface Based on Additive Manufacturing Technology," *Applied Sciences* 13, 3302 (2023).
- R. Ahmad, X. Ropagnol, N. D. Trinh, C. Bois, and F. Blanchard, "Reconfigurable screen-printed terahertz frequency selective surface based on metallic checkerboard pattern," *Flexible and Printed Electronics* 9, 025005 (2024).
- R. Degl'Innocenti, H. Lin, and M. Navarro-Cia, "Recent progress in terahertz metamaterial modulators," *Nanophotonics* 11, 1485-1514 (2022).
- R. Kowerdziej, J. Parka, and P. Nyga, "Tunable liquid crystalline metamaterial structure in GHz range," *Molecular Crystals and Liquid Crystals* 545, 91-95 (2011).
- R. Kowerdziej, M. Olifierczuk, J. Parka, and J. Wróbel, "Terahertz characterization of tunable metamaterial based on electrically controlled nematic liquid crystal," *Applied Physics Letters* 105(2), 022908 (2014).
- R. M. Woodward, "Terahertz technology in global homeland security (Invited Paper)," in T. T. Saito, ed. (2005), pp. 22–31
- R. Neuder, M. Späth, M. Schüßler, and A. Jiménez-Saez, "Architecture for sub-100 ms liquid crystal reconfigurable intelligent surface based on defected delay lines," *Commun Eng* 3, 70 (2024).
- Rahm M, Li J-S, Padilla WJ. THz wave modulators: a brief review on different modulation techniques. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*. 2013;34(1):1-27.
- Roman Dąbrowski, Przemysław Kula, and Jakub Herman. "High Birefringence Liquid Crystals". In: *Crystals* 3(3) (2013), pp. 443–482. doi: 10.3390/cryst3030443.
- S. Alfihed, M. H. Bergen, A. Ciocoiu, J. F. Holzman, and L. G. Foulds, "Characterization and Integration of Terahertz Technology within Microfluidic Platforms," *Micromachines* 9, 453 (2018).
- S. J. Woltman, G. D. Jay, and G. P. Crawford, "Liquid-crystal materials find a new order in biomedical applications," *Nature Mater* 6, 929–938 (2007).
- S. Kaya, M. Karabiyik, and N. Pala, "THz Detectors," in *Photodetectors*, (Elsevier, 2016), pp. 373–414.

- S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai, "Generation of coherent terahertz radiation by photomixing in dipole photoconductive antennas," *Applied Physics Letters* 70, 559–561 (1997)
- S. Nellen, T. Ishibashi, A. Deninger, R. B. Kohlhaas, L. Liebermeister, M. Schell, and B. Globisch, "Experimental comparison of UTC- and Pin-Photodiodes for continuous-wave terahertz generation," *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* 41, 343–354 (2020).
- S. S. Dhillon et al., "The 2017 terahertz science and technology roadmap," *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 043001 (2017).
- Sengupta, K., Nagatsuma, T., & Mittleman, D. M. (2018). Terahertz integrated electronic and hybrid electronic–photonic systems. *Nature Electronics*, 1(12), 622–635. <https://doi.org/10.1038/s41928-018-0173-2>
- Siles GA, Riera JM, Garcia-del-Pino P. Atmospheric attenuation in wireless communication systems at millimeter and THz frequencies [Wireless Corner]. *IEEE Antennas and Propagation Magazine*. 2015;57(1):48-61.
- Sizov, F. F. (2017). Infrared and terahertz in biomedicine. *Semiconductor Physics Quantum Electronics and Optoelectronics*, 20(3), 273–283. <https://doi.org/10.15407/spqeo20.03.273>
- T. Galstian, O. Sova, K. Asatryan, V. Presniakov, A. Zohrabyan, and M. Evensen, "Optical camera with liquid crystal autofocus lens," *Opt. Express* 25, 29945–29964 (2017).
- T. S. Rappaport, et al., "Wireless communications and applications above 100 GHz: Opportunities and challenges for 6G and beyond" *IEEE Access* 7, 78729–78757 (2019).
- Tao, Y. H., Fitzgerald, A. J., & Wallace, V. P. (2020). Non-contact, non-destructive testing in various industrial sectors with terahertz technology. *Sensors (Switzerland)*, 20(3). <https://doi.org/10.3390/s20030712>
- Tonouchi M. *Nature Photon.* 1, 97–105 (2007). CrossRef| CAS| Web of Science® Times Cited. 2007;726.
- Ueno, Y., & Ajito, K. (2008). *Anal. Sci.*, 24, 185–192.
- Usami, M. et al. Development of a THz spectroscopic imaging system. *Phys. Med. Biol.* 47, 3749–3753 (2002).
- Vasić B, Zografopoulos DC, Isić G, et al. Electrically tunable terahertz polarization converter based on overcoupled metal-isolator-metal metamaterials infiltrated with liquid crystals. *Nanotechnology*. 2017;28(12):124002.
- Vieweg N, Koch M. "Terahertz properties of liquid crystals with negative dielectric anisotropy," *Applied optics*, 49(30):5764-7 (2010).

- Woodward, R. M. (2005). <title>Terahertz technology in global homeland security (Invited Paper)</title>. *Optics and Photonics in Global Homeland Security*, 5781(0), 22–31. <https://doi.org/10.1117/12.606392>
- Wu, Hsinying & Hsieh, Cho-Fan & Tang, Tsung-Ta & Pan, Ru-Pin & Pan, Ci-Ling. (2006). Electrically tunable room-temperature 2π liquid crystal terahertz phase shifter. *Photonics Technology Letters, IEEE*. 18. 1488 - 1490. 10.1109/LPT.2006.877579.
- Y. Yang, A. Forbes, and L. Cao, “A review of liquid crystal spatial light modulators: devices and applications,” *Opto-Electronic Science* 2, 230026-1 (2023).
- Y.-H. Lin, Y.-J. Wang and V. Reshetnyak, "Liquid crystal lenses with tunable focal length," *Liq. Cryst. Rev.* 5, 111-143 (2017).
- Y.-H. Lin, Y.-J. Wang and V. Reshetnyak, "Liquid crystal lenses with tunable focal length," *Liq. Cryst. Rev.* 5, 111-143 (2017).
- Y.Ji, F. Fan, Z. Zhang, J. Cheng, and S. Chang, “Active terahertz liquid crystal device with carbon nanotube film as both alignment layer and transparent electrodes,” *Carbon* 190, 376-383 (2022).
- Yamagiwa, M. et al. Real-time amplitude and phase imaging of optically opaque objects by combining full-field off-axis terahertz digital holography with angular spectrum reconstruction. *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* 39, 561–572 (2018)
- Yu H, Wang H, Wang Q, Ge S, Hu W. Liquid Crystal-Tuned Planar Optics in Terahertz Range. *Applied Sciences*. 2023; 13(3):1428. <https://doi.org/10.3390/app13031428>
- Yu, C. C., Fan, S., Sun, Y. & Pickwell-MacPherson, E. The potential of terahertz imaging for cancer diagnosis: a review of investigations to date. *Quatit. Imag. Med. Surg.* 2, 33–45 (2012)
- Yuki Arakawa et al. “Design of an extremely high birefringence nematic liquid crystal based on a dinaphthyl-diacetylene mesogen”. In: *Journal of Materials Chemistry* 22(28) (2012), p. 13908. doi: 10.1039/c2jm32448b.
- Z. Shen, S. Zhou, S. Ge, W. Duan, P. Chen, L. Wang, W. Hu, and Y. Lu, “Liquid-crystal-integrated metadvice: towards active multifunctional terahertz wave manipulations,” *Opt. Lett.* 43(19), 4695 (2018).
- Z. T. Ma, Z. X. Geng, Z. Y. Fan, J. Liu, and H. D. Chen, “Modulators for terahertz communication: the current state of the art,” *Research* 2019, 6482975 (2019).
- Zhong H, Karpowicz N, Xu J, et al., editors. Inspection of space shuttle insulation foam defects using a 0.2 THz Gunn diode oscillator. *Infrared and Millimeter Waves, Conference Digest of the 2004 Joint 29th International Conference on 2004 and 12th International Conference on Terahertz Electronics, 2004.*; 2004: IEEE.
- Zhuldybina, M. (2021). Quality control of printed electronics using terahertz radiation.

Zhuldybina, M., Ropagnol, X., & Blanchard, F. (n.d.). Towards in-situ quality control of conductive printable electronics: a review of possible pathways. *Flexible and Printed Electronics*. <https://doi.org/10.1088/1361-6579/aa6e9f>

Zhuldybina, M., Ropagnol, X., Trudeau, C., Bolduc, M., Zednik, R. J., & Blanchard, F. (2019). Contactless in situ electrical characterization method of printed electronic devices with terahertz spectroscopy. *Sensors* (Switzerland), 19(3). <https://doi.org/10.3390/s19030444>

Zografopoulos DC, Beccherelli R. Tunable terahertz fishnet metamaterials based on thin nematic liquid crystal layers for fast switching. *Scientific reports*. 2015;5(1):1-11.