

Étude des phénomènes dynamiques ultrarapides et
des caractéristiques impulsionnelles d'émission
térahertz du supraconducteur $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

par

Stéphane Savard

thèse présentée au département de physique
en vue de l'obtention du grade de docteur ès sciences (Ph.D.)

FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 11 septembre 2009

Composition du jury

Le _____, le jury a accepté la thèse de M. Stéphane Savard dans sa version finale.

Prof. Patrick Fournier
Département de physique
Co-directeur de recherche

Prof. Denis Morris
Département de physique
Co-directeur de recherche

Prof. Serge Charlebois
Département de génie électrique et informatique
Membre

Prof. Frank A. Hegmann
Department of Physics, University of Alberta
Membre externe

Prof. René Côté
Département de physique
Président-rapporteur

À ma famille, mes parents et amis, ainsi qu'à la mémoire de grand-papa.

Sommaire

Les premières études d'antennes à base de supraconducteurs à haute température critique émettant une impulsion électromagnétique dont le contenu en fréquence se situe dans le domaine térahertz remontent à 1996. Une antenne supraconductrice est formée d'un micro-pont d'une couche mince supraconductrice sur lequel un courant continu est appliqué. Un faisceau laser dans le visible est focalisé sur le micro-pont et place le supraconducteur dans un état hors-équilibre où des paires sont brisées. Grâce à la relaxation des quasiparticules en surplus et éventuellement de la reformation des paires supraconductrices, nous pouvons étudier la nature de la supraconductivité. L'analyse de la cinétique temporelle du champ électromagnétique émis par une telle antenne térahertz supraconductrice s'est avérée utile pour décrire **qualitativement** les caractéristiques de celle-ci en fonction des paramètres d'opération tels que le courant appliqué, la température et la puissance d'excitation.

La compréhension de l'état hors-équilibre est la clé pour comprendre le fonctionnement des antennes térahertz supraconductrices à haute température critique. Dans le but de comprendre ultimement cet état hors-équilibre, nous avons besoin d'une méthode et d'un modèle pour extraire de façon plus systématique les propriétés intrinsèques du matériau qui compose l'antenne térahertz à partir des caractéristiques d'émission de celle-ci.

Nous avons développé une procédure pour calibrer le spectromètre dans le domaine temporel en utilisant des antennes térahertz de GaAs bombardé aux protons H⁺ comme émetteur et détecteur. Une fois le montage calibré, nous y avons inséré une antenne émettrice dipolaire de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Un modèle avec des fonctions exponentielles de montée et de descente du signal est utilisé pour lisser le spectre du champ électromagnétique de l'antenne de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, ce qui nous permet d'extraire les propriétés intrinsèques de ce dernier. Pour confirmer la validité du modèle choisi, nous avons mesuré les propriétés intrinsèques du même échantillon de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ avec la technique

pompe-visible et sonde-téraherz donnant, elle aussi, accès aux temps caractéristiques régissant l'évolution hors-équilibre de ce matériau. Dans le meilleur scénario, ces temps caractéristiques devraient correspondre à ceux évalués grâce à la modélisation des antennes.

Un bon contrôle des paramètres de croissance des couches minces supraconductrices et de fabrication du dispositif nous a permis de réaliser des antennes d'émission téraherz possédant d'excellentes caractéristiques en terme de largeur de bande d'émission (typiquement 3 THz) exploitables pour des applications de spectroscopie résolue dans le domaine temporel. Le modèle développé et retenu pour le lissage du spectre téraherz décrit bien les caractéristiques de l'antenne supraconductrice pour tous les paramètres d'opération. Toutefois, le lien avec la technique pompe-sonde lors de la comparaison des propriétés intrinsèques n'est pas direct malgré que les deux techniques montrent que le temps de relaxation des porteurs augmente près de la température critique. Les données en pompe-sonde indiquent que la mesure du temps de relaxation dépend de la fréquence de la sonde, ce qui complique la correspondance des propriétés intrinsèques entre les deux techniques. De même, le temps de relaxation extrait à partir du spectre de l'antenne téraherz augmente en s'approchant de la température critique (T_c) de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Le comportement en température du temps de relaxation correspond à une loi de puissance qui est fonction de l'inverse du gap supraconducteur avec un exposant 5 soit $1/\Delta^5(T)$.

Le travail présenté dans cette thèse permet de mieux décrire les caractéristiques des antennes supraconductrices à haute température critique et de les relier aux propriétés intrinsèques du matériau qui les compose. De plus, cette thèse présente les paramètres à ajuster comme le courant appliqué, la puissance de la pompe, la température d'opération, etc, afin d'optimiser l'émission et les performances de ces antennes supraconductrices entre autres pour maximiser leur étendue en fréquence dans une perspective d'application en spectroscopie téraherz. Cependant, plusieurs des résultats obtenus soulèvent la difficulté de décrire l'état hors-équilibre et la nécessité de développer une théorie pour le supraconducteur $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier mes directeurs de thèse, les professeurs Denis Morris et Patrick Fournier, pour ce projet bi-disciplinaire. Mon initiation à l'optique ultra-rapide en mettant sur place un spectromètre térahertz et la consolidation de mes connaissances sur les propriétés des supraconducteurs à haute température critique au travers de ce projet m'ont permis d'élargir mes horizons et de tendre ultimement vers le concept d'être un VRAI physicien ! Lors de mes discussions avec eux, ils ont su me communiquer leur rigueur, leurs sens critique et pratique. L'imaginaire est parfois séduisant... mais un calcul physique simple nous ramène rapidement à la réalité !

Je tiens également à remercier les techniciens mécaniques et électroniques du département : Stéphane Pelletier, Mario Castonguay, Michael Lacerte et Marcel Zakorzerny. Leur apport est sans égal et permet aux étudiants de sauver un temps incroyable que nous pouvons consacrer à la recherche. Maintenant que j'ai pu me familiariser avec les techniques d'usinage, j'apprécie encore plus leur travail. Au niveau de l'informatique, j'aimerais remercier Patrick Vachon qui a été un atout particulièrement pendant la rédaction de ma thèse. Par deux reprises mon ordinateur principal a succombé pendant la rédaction, j'ai écrit ma thèse sur cinq ordinateurs différents, il faut le faire ! Un expert pour les problèmes de compatibilité est essentiel en de pareils moments.

Je ne pourrais pas oublier la contribution de Jean-François Allard, un étudiant au doctorat du Pr Denis Morris. C'est la personne avec qui j'ai passé le plus de temps dans le laboratoire : matin, midi, soir et ... Jean-François m'a tout appris sur l'optique. C'est ensemble que nous avons réalisé un spectromètre térahertz avec des caractéristiques enviabiles et comparables à ce qui se fait de mieux dans la littérature. Ta minutie, ta persévérance et ton aptitude de travail sont des qualités rares, toute personne rêverait de t'avoir dans son laboratoire. C'est sans parler de ton sens de l'humour qui est un bonus ! J'ai bien apprécié ta compagnie pendant ces années.

Mon projet m'a amené à collaborer avec Jessie Petersen, un étudiant au doctorat du

Pr Steve Dodge à **Simon-Fraser University**. Pendant trois semaines très intensives, Jessie et moi avons travaillé comme des acharnés pour obtenir des résultats surprenants en spectroscopie pompe-sonde et qui m'ont permis de conclure et d'ajouter une touche d'originalité à ma thèse. Jessie, je tiens à te remercier pour ton enthousiasme, ta persévérance et ta créativité pendant cette courte période. Je remercie le Pr. Steve Dodge d'avoir accepté cette collaboration grâce au financement particulier du **CIFAR**.

Un merci particulier à David Fournier, mon acolyte depuis la maîtrise, et Jacques Renaud pour nos nombreux échanges avant qu'ils deviennent docteurs et quittent avant que je termine. J'ai beaucoup apprécié leur sens physique et leur esprit critique. Merci à Alexandre Langlois pour ses trucs en tout genre. J'ai eu la chance de partager le même local de bureaux qu'eux.

Merci à Mario Poirier et Claude Bourbonnais pour nos nombreuses courses autour du lac, de la montagne et de la carrière... vous êtes des exemples à suivre au niveau du conditionnement physique et de l'équilibre à atteindre : pas plus qu'un verre le jeudi !

Un gros merci à Julie, ma compagne de vie depuis le milieu de ma maîtrise, qui a su me distraire pour oublier les durs moments et me communiquer sa joie de vivre. Grâce à toi, j'ai pu garder un équilibre sain dans ma vie. Son support moral ainsi que celui de sa famille et de la mienne ont été indispensables. Merci à vous ainsi que tous mes autres amis que je ne peux nommer par manque d'espace.

Finalement, le dernier remerciement est plus formel, mais essentiel pour le maintien de la recherche : merci à l'université de Sherbrooke pour les infrastructures, le CRN2 pour les salles blanches, le CRSNG et le FQRNT.

Table des matières

| | |
|--|----------|
| Sommaire | iv |
| Table des matières | viii |
| Liste des tableaux | xi |
| Liste des figures | xii |
| Introduction | 1 |
| 1 Théorie | 6 |
| 1.1 Perturbation par un faisceau pompe | 7 |
| 1.1.1 GaAs | 7 |
| 1.1.2 Supraconducteur | 11 |
| 1.2 Antennes térahertz | 17 |
| 1.2.1 Principe de fonctionnement | 17 |
| 1.2.2 Détection du spectre | 24 |
| 1.3 Pompe-visible et sonde-térahertz | 25 |
| 1.3.1 Principe de fonctionnement | 25 |
| 1.3.2 Amplitude de transmission | 28 |
| 1.3.3 Conductivité CA | 29 |
| 1.4 Modèle à deux températures | 31 |
| 1.5 Modèles de lissage | 33 |
| 1.5.1 Spectroscopie dans le domaine temporel | 33 |
| 1.5.2 Pompe-sonde | 34 |
| 1.6 Effet de la répétition de la mesure | 37 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 2 | Méthode expérimentale | 39 |
| 2.1 | Antennes térahertz | 40 |
| 2.1.1 | Préparation des échantillons | 40 |
| 2.1.2 | Caractérisation structurale | 44 |
| 2.1.3 | Technique de spectroscopie dans le domaine temporel | 47 |
| 2.1.4 | Résistivité | 56 |
| 2.1.5 | Traitements des données | 58 |
| 2.2 | Pompe-visible et sonde-térahertz | 62 |
| 2.2.1 | Description des échantillons | 62 |
| 2.2.2 | Montage | 64 |
| 2.2.3 | Extraction des temps caractéristiques | 69 |
| 3 | Antennes térahertz | 71 |
| 3.1 | Résultats et analyses | 72 |
| 3.1.1 | Qualité structurale | 72 |
| 3.1.2 | Caractérisation des composants du montage | 80 |
| 3.1.3 | Calibration | 88 |
| 3.1.4 | Antenne supraconductrice | 92 |
| 3.2 | Discussions | 118 |
| 4 | Mesures pompe-sonde | 122 |
| 4.1 | Perturbation | 123 |
| 4.2 | Temps de relaxation court τ_{r1} | 125 |
| 4.2.1 | Supraconducteur | 125 |
| 4.2.2 | Semiconducteur | 128 |
| 4.3 | Effets de la puissance d'excitation | 132 |
| 4.4 | Dépendance de τ_{r1} avec la fréquence de la sonde | 134 |
| 4.5 | Épaisseur de la couche mince | 136 |
| 4.6 | Effets de la température | 140 |
| 4.7 | Discussion | 145 |
| 4.7.1 | Comparaison de τ_r | 145 |
| 4.7.2 | Dépendance en température de τ_r | 147 |
| | Conclusion | 152 |

| | |
|--|------------|
| <i>Table des matières</i> | x |
| A Calculs de la perturbation de YBCO | 157 |
| B Calcul de la conductivité en CC de YBCO | 159 |
| C Rapport des amplitudes de transmission | 160 |
| C.1 Effet de l'épaisseur | 160 |
| D Spectres et lissages des antennes de YBCO | 162 |
| Bibliographie | 172 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|---|-----|
| 3.1 | Indice de réfraction des différents matériaux utilisés dans le montage de spectroscopie dans le domaine temporel. | 88 |
| 3.2 | Caractéristiques du détecteur de GaAs : H+ obtenues à partir de la méthode de calibration développée dans le cadre de ce travail. | 91 |
| 3.3 | Effet de la température sur la différence de temps δt de la trace térahertz ($I_M(t)$) de YBCO. | 96 |
| 3.4 | Paramètres et propriétés de YBCO utilisés pour le calcul de la température induite dans la couche mince par impulsion. | 114 |
| 3.5 | Effet de la puissance laser sur l'évaluation du temps de relaxation à 40 K. | 117 |
| 3.6 | Paramètres en ordre d'importance pour l'optimisation d'une antenne supraconductrice avant la conception d'une application. | 119 |
| 4.1 | Caractéristiques de l'échantillon 070831YA de 38 nm d'épaisseur extraites à partir de $\Delta E_m(t_d)$ à 50 K pour une puissance d'excitation de 8 mW. | 126 |
| 4.2 | Caractéristiques de l'échantillon de GaAs H+ multi-énergies extraites à partir de $\Delta E_m(t_d)$ à température ambiante. | 131 |
| A.1 | Paramètres utilisés pour le calcul du nombre de quasiparticules en surplus initialement dans la couche mince de YBCO. | 157 |

Liste des figures

| | | |
|------|--|----|
| 1.1 | Structure de bande du GaAs implanté aux protons H+ à l'équilibre. | 8 |
| 1.2 | Structure de bande du GaAs implanté aux protons H+ après perturbation. | 9 |
| 1.3 | Allure de $N_{he}(t)$ pour τ_r et τ_c respectivement égale à 1 ps et 0.250 ps. | 11 |
| 1.4 | Allure de $E_{THz}(t)$ pour τ_r et τ_c respectivement donnés par 1 ps et 0.250 ps. | 19 |
| 1.5 | Exemple simulé d'une trace térahertz ou du courant mesuré $I_m(t)$ pour une antenne d'émission et de détection. | 25 |
| 1.6 | Schéma permettant d'introduire la technique de mesure pompe-sonde. | 26 |
| 1.7 | Effet d'un filtrage basse fréquence $I_m(\omega)$ dans l'espace du temps. | 35 |
| 2.1 | Schéma de la maille cristalline par rapport à celle du substrat. | 41 |
| 2.2 | Principe de fonctionnement de la technique de croissance d'ablation laser. | 41 |
| 2.3 | Antenne térahertz supraconductrice de type dipolaire conçue à Sherbrooke. Le micro-pont est la région éclairée par un faisceau laser. Les deux contacts Cr-Au sur chaque électrode permet d'utiliser la technique à quatre pointes et ainsi mesurer la différence de potentiel aux bornes du micro-pont. | 43 |
| 2.4 | Schéma de la technique à quatre pointes. | 46 |
| 2.5 | Schéma du montage de spectroscopie dans le domaine temporel. L'antenne d'émission supraconductrice est désignée par le terme Source. | 48 |
| 2.6 | Schéma du montage du cryostat contenant l'antenne térahertz supraconductrice. | 51 |
| 2.7 | Doigt froid du cryostat et porte-échantillon amovible. | 52 |
| 2.8 | Porte-échantillon de l'antenne térahertz supraconductrice. | 54 |
| 2.9 | Exemple d'une trace térahertz avec un échantillon. | 56 |
| 2.10 | Schéma du montage de la résistivité temporelle d'une antenne. | 58 |
| 2.11 | Les trois étapes de corrections de la trace térahertz ($I_M(t)$). | 60 |
| 2.12 | Enveloppe du spectre en fréquence térahertz à lisser. | 61 |

| | |
|---|----|
| 2.13 Montage de spectroscopie avec une pompe visible et une sonde térahertz. | 66 |
| 2.14 Illustration du temps d'arrivée de la pompe et de la sonde sur l'échantillon. | 67 |
| 2.15 Schéma du support à échantillon dans le cryostat pour le montage pompe-sonde. | 69 |
| 3.1 Spectre de diffraction des rayons X de la couche mince 070823YA de 60 nm d'épaisseur à la température ambiante. | 73 |
| 3.2 Comparaison du spectre de diffraction pour une couche de 38 nm et de 60 nm. | 75 |
| 3.3 Détermination de la température critique de l'antenne 070823YA de 60 nm d'épaisseur avec la technique de susceptibilité CA. | 76 |
| 3.4 Détermination de la température critique de l'échantillon 070831YA de 38 nm d'épaisseur avec la technique de susceptibilité CA. | 77 |
| 3.5 Détermination de la résistance des antennes 070823YA (60 nm) et 070831YA (38 nm) et de leur comportement en température. | 78 |
| 3.6 Détermination du courant critique de l'antenne 070823YA de 60 nm. | 79 |
| 3.7 Caractéristiques de transmission térahertz d'un substrat de $LaAlO_3$ de 0.5 mm d'épaisseur. | 82 |
| 3.8 Caractéristiques de transmission térahertz d'une gaufre de silicium de 0.4 mm d'épaisseur. | 83 |
| 3.9 Caractéristiques de transmission térahertz de la fenêtre du cryostat de Teflon de 5.95 mm d'épaisseur. | 84 |
| 3.10 Caractéristiques de transmission térahertz d'un substrat de GaAs non-dopé de 0.4 mm d'épaisseur. | 85 |
| 3.11 Caractéristiques de transmission térahertz d'un substrat de saphir Al_2O_3 de 0.5 mm d'épaisseur. | 86 |
| 3.12 Caractéristiques de transmission térahertz d'une couche de YBCO de 60 nm sur substrat de saphir Al_2O_3 de 0.5 mm d'épaisseur à la température ambiante. | 87 |
| 3.13 Trace térahertz d'un émetteur et détecteur de GaAs : H+ à température ambiante. | 90 |
| 3.14 La courbe rouge est la TF de la trace térahertz de la figure 3.13(a). | 91 |
| 3.15 Comparaison des antennes d'émission supraconductrice et semiconductrice ayant le même détecteur. | 93 |

| | | |
|------|--|-----|
| 3.16 | Trace térahertz en fonction de la température de l'antenne 070823YA pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 95 |
| 3.17 | Simulation de la trace térahertz $I_M(t)$ pour différents τ_r et τ_c de l'antenne d'émission. | 97 |
| 3.18 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ en fonction de la température de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 99 |
| 3.19 | Temps de relaxation de l'antenne d'émission (τ_r) 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW à différentes températures. | 100 |
| 3.20 | Comportement en température de l'amplitude de la trace des antennes 070813YA et 070823YA pour une même puissance et un même courant continu appliqué (50 mA). | 102 |
| 3.21 | Caractéristiques de l'antenne 070831YA à 20 K pour un courant appliqué et une puissance d'excitation fixes. | 104 |
| 3.22 | Effet du courant sur la trace térahertz ($I_M(t)$) de l'antenne 070823YA (60 nm) à une température de 50 K et une puissance d'excitation de 6 mW. | 106 |
| 3.23 | Effet du courant sur l'amplitude du maxima $I_M(t_d)$ de la trace térahertz de l'antenne 070823YA (60 nm) à une température de 30 K et une puissance d'excitation de 6 mW. | 107 |
| 3.24 | Trace térahertz de l'antenne 070823YA (60 nm) pour deux températures différentes. Le courant est maintenu constant à 30 mA au delà du courant critique. | 107 |
| 3.25 | Comportement de l'amplitude du maximum de la trace térahertz ($I_M(t_d)$) de l'antenne 070117YL (120 nm) en fonction du courant continu appliqué. | 108 |
| 3.26 | Mesure temporelle de la tension aux bornes du micro-pont de l'antenne 070117YL (120 nm). La fréquence du hacheur est de 1.66 kHz. | 111 |
| 3.27 | Courbe V-I de l'antenne 070823YA dont les propriétés sont comparables à 070117YL. | 112 |
| 3.28 | Modélisation du changement de la température phononique T_p | 114 |
| 3.29 | Effet de la puissance de la pompe d'excitation sur l'évaluation du temps de relaxation τ_r de l'antenne 070823YA à 40 K pour un courant de 50 mA. | 116 |
| 3.30 | Amplitude d'émission térahertz évaluée au maximum de la trace térahertz de l'antenne 070823YA à 40 K pour un courant de 50 mA. | 117 |
| 3.31 | Comparaison des traces térahertz de l'antenne 070823YA à 40 K pour une puissance laser de 65 mW et à 75 K pour une puissance de 8 mW. | 118 |

| | | |
|------|---|-----|
| 4.1 | Effet de la pompe d'excitation sur l'impulsion térahertz de la sonde qui se propage au travers d'une couche mince de YBCO de 38 nm. | 124 |
| 4.2 | Évolution du maximum de la trace de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ après excitation optique d'une couche mince de YBCO de 38 nm. | 127 |
| 4.3 | Lissage bimoléculaire sur la trace pompe-sonde d'une couche mince de YBCO de 38 nm. | 129 |
| 4.4 | Évolution du maximum de la trace de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ après excitation optique d'un substrat de GaAs bombardé de protons multi-énergies (GaAs : H+). | 130 |
| 4.5 | Amplitude du maximum de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ en fonction du temps pour diverses puissances d'excitation laser. | 132 |
| 4.6 | Données du balayage en mode 2D de YBCO (070831YA) pour différents temps t' | 135 |
| 4.7 | Lissage des données du balayage en mode 2D de YBCO (070831YA) pour différents temps t' | 137 |
| 4.8 | Données du balayage en mode 2D de YBCO (070823YA) de 60 nm pour différents temps t' | 138 |
| 4.9 | Influence de l'épaisseur de la couche de YBCO sur la variation du champ électrique transmis ($\Delta E_m(t)$). | 139 |
| 4.10 | Comportement en température des données pompe-sonde de l'échantillon de YBCO de 38 nm. | 142 |
| 4.11 | Comportement en température des temps de relaxation de l'échantillon de YBCO de 38 nm. | 143 |
| 4.12 | Comportement en température des amplitudes des termes de relaxation de l'échantillon de YBCO de 38 nm. | 144 |
| 4.13 | Comportement en température des temps de relaxation et des amplitude des termes de relaxation de l'échantillon de YBCO de 60 nm sur LAO. | 146 |
| 4.14 | Sommaire des données importantes de la thèse. | 148 |
| 4.15 | Lissage du comportement en température du temps de relaxation de l'antenne térahertz de 080723YA (60 nm). | 150 |
| D.1 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 23 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 163 |

| | | |
|------|---|-----|
| D.2 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 25 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 163 |
| D.3 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 35 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 164 |
| D.4 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 40 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 164 |
| D.5 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 45 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 165 |
| D.6 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 50 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 165 |
| D.7 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 55 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 166 |
| D.8 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 60 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 166 |
| D.9 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 65 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 167 |
| D.10 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 75 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 167 |
| D.11 | TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 80 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. | 168 |

Introduction

L'avènement des sources lasers femtosecondes au début des années 80 marque le développement en 1984 par un groupe de Bell Labs d'un interrupteur semiconducteur ultra-rapide pouvant générer dans une ligne à transmission des impulsions dont la largeur est de l'ordre de la picoseconde et par conséquent une large bande de fréquences dans le domaine térahertz (10^{12} Hz) [1]. L'impulsion laser génère des porteurs dans le semiconducteur qui relaxent très rapidement à cause des défauts introduits lors de la croissance ou de façon artificielle par bombardement ionique de la surface. La génération de porteurs par le faisceau laser porte le semiconducteur dans un état où sa conductivité électrique augmente substantiellement. En 1988, Fattinger et Grischkowski ont modifié la géométrie de cet interrupteur afin d'obtenir des antennes térahertz émettant dans l'espace libre [2]. D'un certain point de vue, ce dispositif permet de convertir une impulsion laser dans le visible en une impulsion large bande dans la gamme du térahertz. Il faut attendre autour de 1996 pour voir la première antenne térahertz à base d'un supraconducteur à haute température critique (SHTC), $YBa_2Cu_3O_7$ [3]. À noter que dans le cas des antennes photoconductrices à base de semiconducteur, des études sur des interrupteurs à base de SHTC ont été menées avant le développement d'antennes térahertz [4, 5].

La mesure de l'impulsion électromagnétique émise par l'antenne térahertz se fait à l'aide d'un montage de spectroscopie dans le domaine temporel. Des miroirs paraboliques permettent de diriger l'impulsion électromagnétique de l'émetteur vers un détecteur. La configuration du détecteur, une antenne semiconductrice ou un cristal non-linéaire, permet de résoudre temporellement l'amplitude du champ électrique émis. Cependant, à cause du parcours optique et de la large bande de fréquences de l'impulsion électromagnétique, son champ électrique émis a de fortes chances de subir des transformations temporelles et spectrales [6, 7]. Les caractéristiques intrinsèques de l'antenne térahertz sont mal évaluées si ces transformations, souvent d'origine extrinsèque, ne sont pas prises en compte. Le modèle décrivant le spectre des impulsions térahertz détectées dépend de

la configuration géométrique et de l'alignement des composants du montage. Ces transformations du champ électrique sont des obstacles à l'étude des propriétés intrinsèques des matériaux constituant les antennes térahertz.

Outre les difficultés de bien caractériser le banc de mesures par spectroscopie dans le domaine temporel, la modélisation du spectre d'émission d'une antenne térahertz supraconductrice comporte une difficulté supplémentaire, soit la description de l'état hors-équilibre du supraconducteur. Lorsque l'impulsion laser excite des porteurs dans le supraconducteur, un scénario simple consiste à supposer que les porteurs initialement excités brisent des paires de Cooper et que celles-ci se recombinent en un temps τ_r qui exprime le retour à l'équilibre. En 1996, Hangyo et *al.* ont souligné le besoin de développer une théorie pour décrire la physique hors-équilibre d'une antenne supraconductrice à base de YBCO [3]. À ce moment, quelques modèles phénoménologiques existaient pour décrire qualitativement la physique hors-équilibre des supraconducteurs. Nous pensons principalement au modèle de Rothwarf et Taylor (RT) [8] et au modèle à deux températures [9]. Nous reviendrons sur la description de ces deux modèles au chapitre 1 lors de la présentation de la théorie.

La supraconductivité hors-équilibre a été d'abord étudiée sur les supraconducteurs conventionnels bien avant la découverte des SHTC. En 1962, Ginsberg [10] soulignait l'aspect dynamique à l'équilibre d'un supraconducteur à température finie et pointait une limite du modèle décrivant la supraconductivité conventionnelle par Bardeen, Cooper et Schrieffer en 1957 (la théorie BCS). Le modèle BCS néglige la reformation des paires. De façon similaire à l'impulsion laser que nous utilisons pour les antennes, Ginsberg tient compte du fait que les phonons brisent des paires de Cooper en quasiparticules et que celles-ci se reforment éventuellement en un temps τ_r . À noter que l'ajout des processus de reformation des paires au modèle BCS par Kaplan et *al.* a été fait en 1976 [11]. Des mesures de τ_r ont été obtenues à partir d'expériences d'injection de courant au travers de jonctions tunnels [8, 10]. Rothwarf et Taylor [8] (RT) ont utilisé un modèle phénoménologique pour décrire ce type d'expériences sur les supraconducteurs hors-équilibre. Le modèle RT est toujours d'actualité pour décrire des expériences de supraconducteurs hors-équilibre même dans les SHTC [12]. D'ailleurs, c'est le modèle préconisé par Tonouchi et *al.* pour extraire τ_r à partir des antennes supraconductrices [13]. Ces derniers ont souligné que le modèle RT ne semblait pas adéquat pour décrire la physique hors-équilibre puisque les comportements observés de τ_r avec la température et la puissance étaient opposés aux prédictions théoriques de leur modèle.

Par ailleurs, des groupes ont soulevé que τ_r extrait de l'analyse spectrale de l'impulsion électromagnétique émise était physiquement trop court par rapport aux valeurs mesurées par la technique pompe-visible et sonde-visible [13, 14]. La technique pompe-sonde consiste à utiliser une impulsion laser dans le visible pour exciter le matériau et à sonder la relaxation des porteurs à l'aide d'une autre impulsion permettant de mesurer la transmittance ou la réflectance. La sonde peut être dans le visible ou dans la gamme du térahertz. Pour leur part, Lin et *al.* ont ajouté une correction provenant de l'inductance cinétique de la couche supraconductrice pour relier les τ_r extraits des deux techniques [14]. Lors de l'émission, le champ électromagnétique émis serait modifié par la partie inductive de l'antenne. Nous vérifierons si l'utilisation d'un terme inductif (ou autre) permet de relier les deux techniques.

Depuis la découverte des SHTC, la technique de prédilection utilisée pour étudier l'état hors-équilibre est la technique pompe-sonde. Les caractéristiques des faisceaux pompe et sonde peuvent influencer la dynamique des excitations étudiées ou bien, l'excitation sondée peut dépendre de l'énergie des photons du faisceau sonde. À cet effet, les travaux de Averitt et *al.* mettent en évidence une dépendance du temps de relaxation avec l'énergie des photons de la sonde [15]. L'amplitude et le comportement en température du temps de relaxation dépend aussi de cette énergie. Cette observation indique que la mesure de τ_r **pourrait** ne pas être la valeur intrinsèque de l'état hors-équilibre. Dès lors, nous pourrions penser que la technique pompe-sonde et l'analyse spectrale des antennes térahertz supraconductrices ne permettent pas de mesurer directement la même quantité physique. Toutefois, les travaux de Jaekel, Roskos et Kurz suggèrent que nous pouvons relier les mesures obtenues à l'aide des deux techniques [16]. Cependant, ils n'ont pas comparé quantitativement les temps de relaxation obtenus avec chaque technique.

D'un point de vue pratique, l'intérêt d'étudier la SHTC dans l'état hors-équilibre est le développement par exemple d'interrupteurs [17] ou de détecteurs plus rapides, plus sensibles [18] et à large bande de détection [4]. Une mesure quantitative de τ_r est essentielle à une meilleure compréhension de la physique de ces dispositifs. À cause des problèmes liés aux divers composants des montages expérimentaux qui affectent la mesure de τ_r , nous proposons dans ce travail de thèse de vérifier la cohérence des temps extraits des deux techniques de caractérisation. Cette approche permettra de préciser la valeur de τ_r obtenue pour YBCO ainsi que le modèle utilisé pour lisser le spectre de l'impulsion émise par l'antenne térahertz supraconductrice. De plus, puisque la comparaison des mesures extraites des antennes et de la technique pompe-sonde ne semble pas avoir été

réalisée avec d'autres matériaux, nous vérifierons aussi la cohérence du GaAs implanté aux protons multi-énergies (GaAs : H+),

Pour accomplir cette tâche, nous devons développer le modèle permettant de décrire le spectre d'impulsion térahertz obtenu à l'aide d'un montage de spectroscopie dans le domaine temporel. Nous utilisons une paire d'antennes à base de GaAs : H+ [19] pour calibrer notre montage. Considérant la difficulté supplémentaire de modéliser le spectre de l'impulsion émise par une antenne térahertz supraconductrice dans son état hors-équilibre, nous avons validé d'abord ce modèle sur une antenne d'émission de GaAs : H+. Cette antenne témoin permettra de nous guider lors de l'interprétation des résultats et de faciliter la comparaison des τ_r extraits des deux techniques. Les mêmes échantillons ont été utilisés lors de la mesure pompe-sonde. Nous préconisons la technique pompe-visible et sonde-térahertz pour effectuer la mesure, car la sonde térahertz devrait être sensible aux excitations à des énergies comparables à la valeur du gap supraconducteur. Par ailleurs, nous devons identifier un modèle permettant de reproduire les résultats. Différentes configurations de couches minces de YBCO et un échantillon de GaAs : H+ permettent de vérifier si τ_r est modifié par des paramètres extrinsèques.

La structure de cette thèse est constituée de cinq chapitres. Au chapitre 1, nous traitons de la théorie permettant de suivre et comprendre l'interprétation des résultats. En particulier, nous présentons les modèles utilisés pour le lissage des mesures du banc de spectroscopie dans le domaine temporel et des mesures pompe-visible et sonde-térahertz que nous validons lors de la présentation des résultats. Au chapitre 2, nous faisons état des aspects expérimentaux. Nous commençons par une présentation brève de la fabrication des différents échantillons et de la fabrication des antennes. Le montage de spectroscopie dans le domaine temporel est ensuite décrit, suivi à la section suivante de la description du montage de spectroscopie pompe-sonde. À la fin des sections principales du chapitre, nous expliquons la méthode de traitement des données et d'extraction des temps de relaxation pour chacune des techniques spectroscopiques. Au chapitre 3, nous mettons l'accent sur les résultats qui permettent de choisir un modèle pour la technique de spectroscopie térahertz. Le modèle choisi permettra d'extraire le temps de relaxation τ_r à partir des caractéristiques spectrales des antennes. Au chapitre 4, nous discuterons de la comparaison de ces valeurs de τ_r avec celles extraites des mesures obtenues à partir de la technique pompe-sonde appliquée **aux mêmes** échantillons. À la fin de ce chapitre, nous serons en mesure de répondre à la question posée dans cette thèse à propos du lien entre les mesures extraites des deux techniques spectroscopiques. En conclusion, au chapitre 5,

nous récapitulons les points importants de cette thèse et donnons des exemples de projets comme ouverture à ce travail.

Chapitre 1

Théorie

Nous avons mentionné dans l'introduction que nous voulions relier les temps de relaxation caractéristiques extraits de l'analyse spectrale des impulsions émises des antennes térahertz avec ceux obtenus en pompe-visible et sonde-térahertz. Ces temps de relaxation sont reliés aux mécanismes de collision et de recombinaison des porteurs. Le temps de retour à l'équilibre des porteurs, après l'excitation optique, dépend du temps de thermalisation et puis du temps de recombinaison des porteurs hors-équilibre, et du temps de refroidissement de l'échantillon. Le formalisme développé pour l'analyse des mesures obtenues de ces deux techniques sera adapté aussi bien au supraconducteur $YBa_2Cu_3O_7$ qu'au GaAs bombardé aux protons (GaAs :H+). Le GaAs :H+ agira comme détecteur pour l'antenne térahertz supraconductrice et comme émetteur pour calibrer le montage. En plus, la description de la physique de l'évolution des porteurs excités dans le GaAs :H+ permettra d'introduire les notions souvent plus complexes d'un supraconducteur.

Ce chapitre est divisé en six sections. La section 1 décrit l'effet d'un faisceau optique dans le visible sur les populations de porteurs du matériau considéré. Nous décrivons les équations d'évolution des porteurs dans le GaAs :H+ et le $YBa_2Cu_3O_7$. À la section 2, nous décrivons le principe de fonctionnement des antennes térahertz pour les deux matériaux. De plus, nous expliquons le principe de détection du champ électromagnétique émis par l'antenne. La structure de la section 3 est similaire à la section 2, mais appliquée à la technique pompe-visible et sonde-térahertz. La présentation du modèle à deux températures (2T) à la section 4 permet d'introduire une autre approche pour décrire la physique d'un supraconducteur hors-équilibre. Le modèle 2T est utile pour extraire de l'information dans le supraconducteur pour des processus de relaxation lents (long temps de relaxation). Cette section est un prélude à la section suivante qui traite

des modèles de lissage. Tout le formalisme que nous décrivons dans ce chapitre est essentiellement basé sur l'existence d'un seul temps de relaxation rapide τ_r . En réalité, à la section 5 après la présentation du modèle de lissage des données des antennes térahertz, nous mentionnons que nous devons utiliser deux fonctions exponentielles pour extraire le temps de relaxation court τ_r et le temps de relaxation long τ_{r2} pour des mesures pompe-sonde. À la dernière section, nous allons un peu plus en profondeur pour la description des antennes térahertz. Nous mentionnons entre autres la contribution possible d'effets d'accumulation de chaleur lors du moyennage nécessaire des données. Le responsable de tels effets est la présence de mécanismes lents de refroidissement des porteurs ou de recombinaison.

1.1 Perturbation par un faisceau pompe

1.1.1 GaAs

À la température ambiante et à l'équilibre, le GaAs non implanté que nous avons utilisé est un semiconducteur à gap direct avec une faible conductivité. La résistance entre les électrodes distantes de $120 \mu m$ de l'antenne d'émission est plus grande que $10 M\Omega$. Son gap d'énergie est de $1.42 eV$ comme l'illustre la figure 1.1. À cause du bombardement de la surface par des protons dans notre cas, des défauts profonds (centres de recombinaison non-radiative) sont présents entre les bandes de valence et de conduction. Ceux-ci permettent la capture ultra-rapide de porteurs qui pourraient éventuellement être dans la bande de conduction. À l'équilibre, nous pouvons considérer que tous les porteurs N_v sont liés et situés dans la bande de valence.

En focalisant sur le GaAs un faisceau laser dont le profil temporel $L(t)$ est gaussien et dont l'énergie des photons est supérieure au gap, N_c électrons peuvent être excités dans la bande de conduction comme le montre la figure 1.2. N_c dépend du coefficient d'absorption du GaAs à $300 K$ et de la longueur d'onde des photons de la pompe d'excitation. N_c représente la densité de porteurs libres. Les défauts profonds permettent une capture ultra-rapide des porteurs ou une relaxation en un temps τ_r qui est en général de l'ordre de la picoseconde. Pour le GaAs sans défauts profonds, les mécanismes de relaxation sont des recombinaisons inter-bandes et τ_r est alors de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes.

L'équation d'évolution de la densité des photoporteurs dans le GaAs s'écrit comme

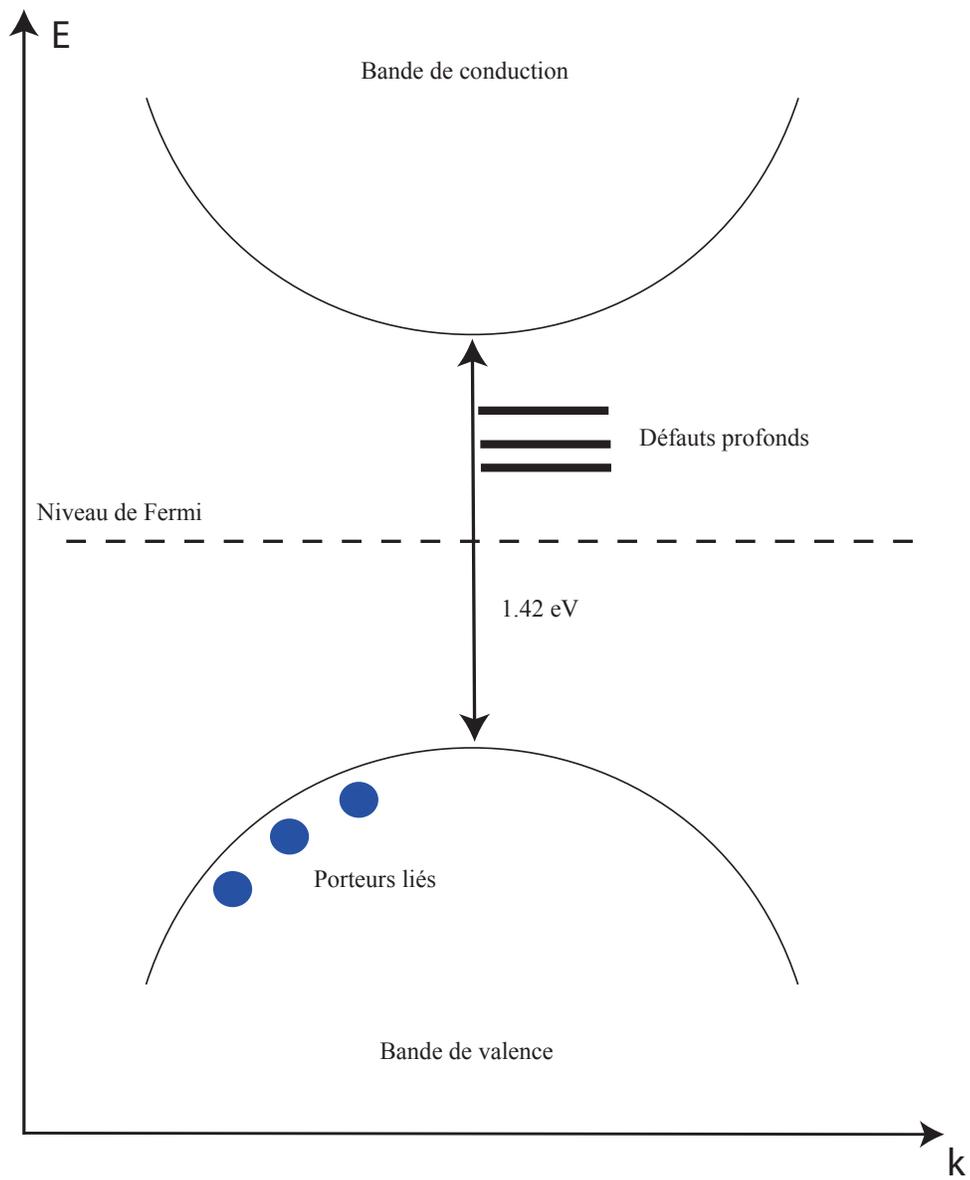


FIGURE 1.1 – Structure de bande du GaAs implanté aux protons H^+ à température ambiante et à l'équilibre.

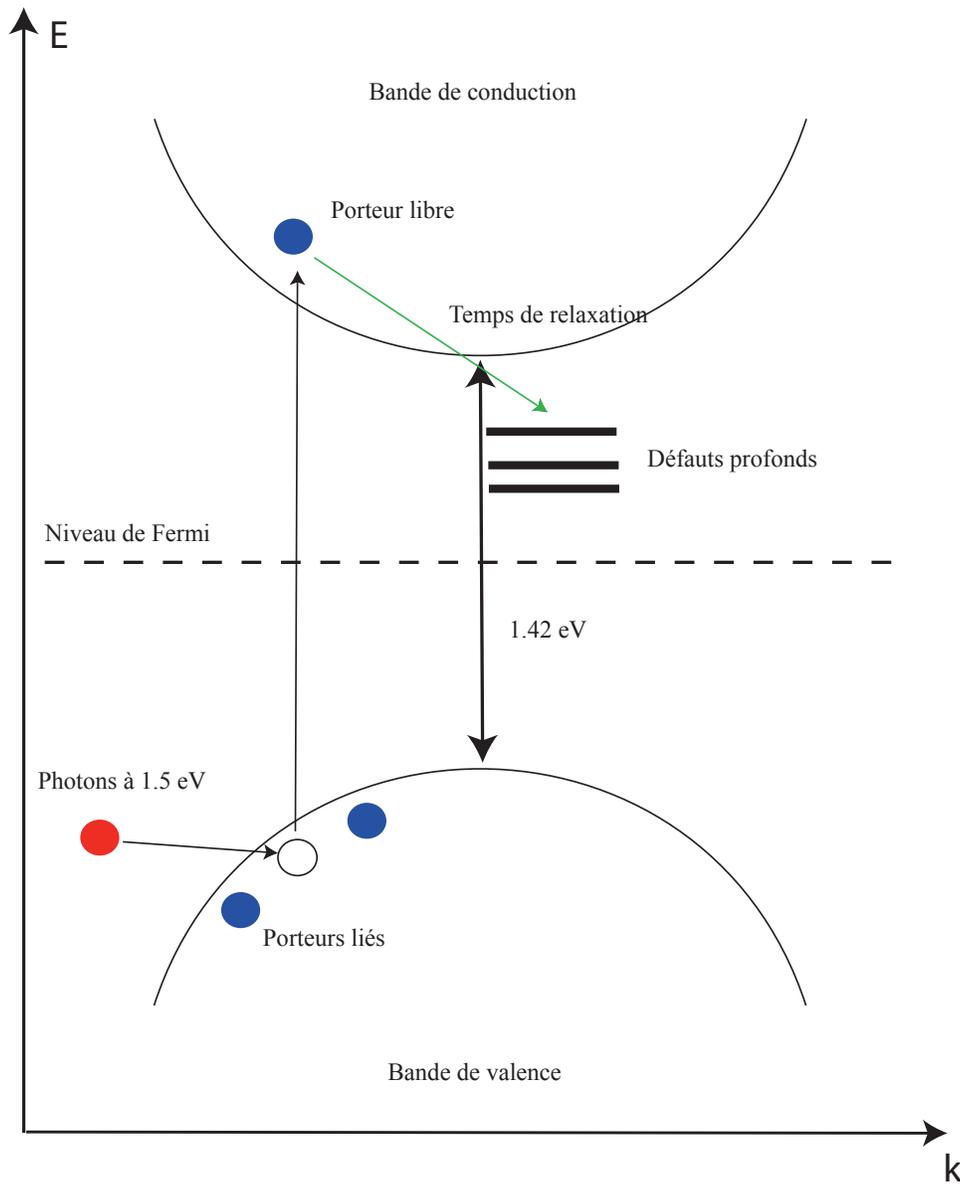


FIGURE 1.2 – Structure de bande du GaAs implanté aux protons H^+ à température ambiante et après perturbation.

suit

$$\frac{dN_c}{dt} = L(t) - \frac{N_c}{\tau_r} \quad (1.1)$$

Si $L(t)$ a une largeur à mi-hauteur de 100 fs et crée N_o porteurs dans la bande de conduction, nous obtenons pour un temps $t \gg 100$ fs une solution simple de $N_c(t)$

$$N_c(t) = N_o e^{-t/\tau_r} \quad (1.2)$$

où nous ne tenons pas compte des porteurs dans la bande de valence, car la mobilité¹ des trous est 23 fois plus faible que les électrons dans la bande de conduction à la température ambiante. L'équation d'évolution des photoporteurs pour $t < 100$ fs est plutôt compliquée, car elle comporte plusieurs contributions qui rendent sa résolution complexe. Nous n'explorerons donc pas ce régime. Toutefois en première approximation, nous pouvons l'approximer adéquatement par une simple dépendance exponentielle. Si $N_c(t)$ correspond à la densité de photoporteurs en bas de la bande de conduction, alors il faut tenir compte de la relaxation des états de hautes énergies vers les états en bas de bande (voir Grischowsky et Katzenellenbogen [20]). Après l'excitation laser et la création de N_o photoporteurs de haute énergie, $N_c(t)$ augmentera avec un temps caractéristique τ_c , soit :

$$N_c(t) = N_o (e^{-\frac{t}{\tau_r}} - e^{-\frac{t}{\tau_c}}) \quad (1.3)$$

En effet, les électrons ne sont généralement pas en bas de la bande de conduction et prennent un temps τ_c à s'y rendre par divers processus comme des collisions inélastiques électron-électron ou électron-phonon. De plus, puisque τ_c est de l'ordre de 200 fs, nous ne pouvons pas négliger l'impact du profil de l'impulsion laser pour des temps de cet ordre. Les porteurs excités à haute énergie relaxent durant la période d'excitation par une impulsion de largeur à mi-hauteur de 100 fs. Une approche simple consiste à décrire l'évolution des porteurs hors-équilibre $N_{he}(t)$ comme le produit de convolution de $N_c(t)$ avec le profil temporel de l'impulsion laser $L(t)$ [21]

$$N_{he}(t) = \int_0^t N_c(t-t')L(t')dt' = N_c(t) \otimes L(t) \quad (1.4)$$

Où $N_c(t)$ correspond à la densité de porteurs au bas de la bande de conduction suite

¹Nous verrons à l'équation 1.31 que la mobilité des porteurs libres créés intervient dans les caractéristiques de l'antenne térahertz.

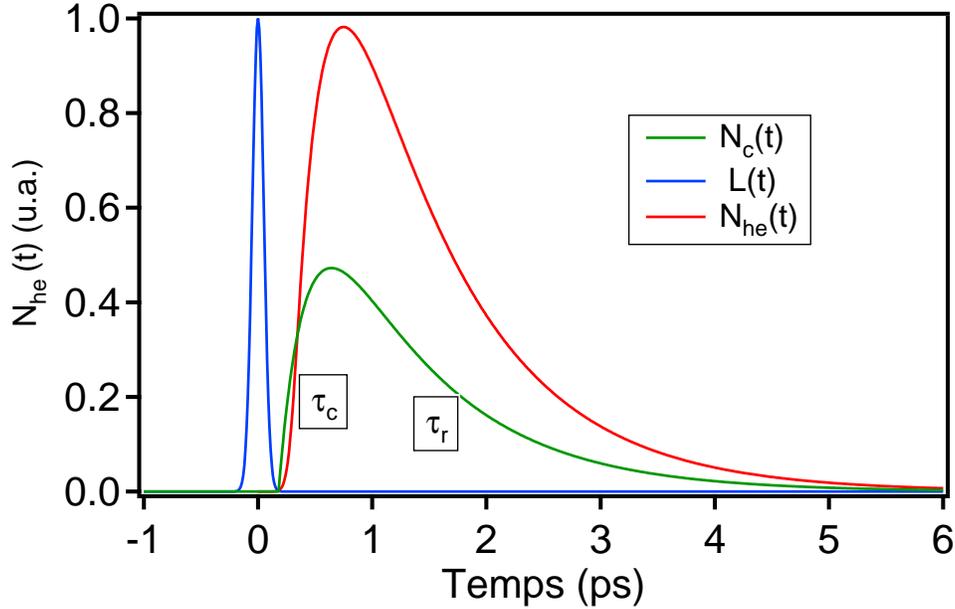


FIGURE 1.3 – Allure de la densité de porteurs hors-équilibre $N_{he}(t)$ pour τ_r et τ_c respectivement égaux à 1 ps et 0.250 ps lors de l’excitation d’un faisceau laser $L(t)$ d’une largeur à mi-hauteur de 100 fs. La densité de porteurs $N_c(t)$ créée en un temps t donnée après l’absorption de N_o photons est représenté pour fin indicatif.

à une excitation optique. $N_{he}(t)$ entrera dans le calcul du champ térahertz E_{THz} émis d’une antenne à base de GaAs implanté aux protons à la section 1.2. La figure 1.3 donne l’allure de $N_{he}(t)$ pour τ_r et τ_c respectivement égaux à 1 ps et 0.250 ps. La largeur à mi-hauteur de $L(t)$ est de 100 fs.

1.1.2 Supraconducteur

La description physique simple de la transition électronique due à l’absorption d’un photon du faisceau laser pompe que nous avons décrite pour le semiconducteur n’est pas aussi évidente pour YBCO qui est un métal avec une structure de bande complexe [22]. Selon Fugol et *al.*, deux transitions électroniques sont possibles dans YBCO et leur importance dépend de l’oxygénation de YBCO [23]. Dans ce qui suit, nous décrivons l’équation d’évolution des porteurs après la perturbation et nous mentionnons dans quelle approximation se situe le système que nous étudions. Cette partie est largement inspirée de la thèse de doctorat de N. Gedik [24]. Définissons d’abord les diverses densités de porteurs de charge et de phonons du système :

N : la densité totale de porteurs de charge du système,

N_{so} : la densité de paires à l'équilibre thermique,

N_{no} : la densité de quasiparticules à l'équilibre thermique,

ΔN_s : la densité de paires **brisées**,

ΔN_n : la densité de quasiparticules en surplus (hors-équilibre),

N_ω : la densité de phonons totale du système dont l'énergie est plus grande que le gap supraconducteur $\Delta(T)$,

$N_{\omega T}$: la densité de phonons à l'équilibre thermique dont l'énergie est plus grande que le gap supraconducteur $\Delta(T)$,

$N_{\omega he}$: la densité de phonons en surplus (hors-équilibre) dont l'énergie est plus grande que le gap supraconducteur $\Delta(T)$.

Lors d'une perturbation par un faisceau pompe, la densité de porteurs de charge N du système doit être conservée de sorte que :

$$N = 2N_{so} - 2\Delta N_s + N_{no} + \Delta N_n \quad (1.5)$$

Le terme deux provient du fait qu'une paire brisée produit deux quasiparticules. La différentiation de l'équation 1.5 permet d'obtenir la relation entre la variation de la densité de paires brisées (ΔN_s) et les quasiparticules en surplus (ΔN_n) :

$$\frac{2d\Delta N_s}{dt} = \frac{d\Delta N_n}{dt} \quad (1.6)$$

L'équation 1.6 signifie que lorsque la densité de paires brisées augmente, la densité de quasiparticules en surplus augmente à un taux deux fois plus élevé. Dans les supraconducteurs, la dynamique de relaxation et de recombinaison des porteurs est régie par des équations d'évolution des populations de porteurs selon l'approche phénoménologique de Rothwarf-Taylor (RT) [8]. Pour les quasiparticules N , l'équation d'évolution prend la forme suivante :

$$\frac{dN}{dt} = G_n(t) - \beta N^2 + 2\gamma N_\omega \quad (1.7)$$

Le premier terme du membre de droite de l'équation 1.7 correspond au taux de génération ($G_n(t)$) provoqué par l'absorption laser, le 2^e terme correspond au taux de recombinaison bi-moléculaire (β). Bi-moléculaire signifie que deux quasiparticules interagissent pour

former une paire. Finalement, le 3^e terme correspond au taux de génération de quasiparticules suite à l'absorption de phonons ayant une énergie plus grande que le gap supraconducteur qui a pour effet de briser des paires de Cooper. Ce dernier terme provoque un effet d'entonnoir près de la température critique (*Phonon bottleneck*) [25, 26]. En considérant la possibilité que la densité de phonons interviennent dans la relaxation nécessite l'introduction de l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dN_\omega}{dt} = \beta/2N^2 - \gamma N_\omega - (N_\omega - N_{\omega T})\gamma_{fuite} \quad (1.8)$$

Où γ_{fuite} est le taux de fuite des phonons vers le substrat qui peut être vue comme un bain thermique. Le premier terme vient du fait que dans la théorie BCS, la recombinaison de deux particules produit un seul phonon, c'est pourquoi le taux de formation est deux fois plus faible. Quant au deuxième terme, c'est un phonon qui est absorbé par une paire et qui forme deux quasiparticules. Et puis, le troisième terme est la possibilité que les phonons soient évacués vers le substrat ou le bain thermique.

En utilisant les relations suivantes qui décrivent la densité de porteur N et de phonons N_ω du système ;

$$N = N_{no} + \Delta N_n \quad (1.9)$$

$$N_\omega = N_{\omega T} + N_{\omega he} \quad (1.10)$$

nous pouvons récrire les équations 1.7 et 1.8 comme

$$\frac{d\Delta N_n}{dt} = G_n(t) - \beta\Delta N_n^2 - 2\beta N_{no}\Delta N_n - \beta N_{no}^2 + 2\gamma(N_{\omega T} + N_{\omega he}) \quad (1.11)$$

et

$$\frac{dN_\omega}{dt} = \beta/2(N_{no} + \Delta N_n)^2 - \gamma(N_{\omega T} + N_{\omega he}) - (N_{\omega he} - N_{\omega T})\gamma_{fuite} \quad (1.12)$$

À l'équilibre thermique, nous pouvons déduire de l'équation 1.12 que

$$\beta/2N_{no}^2 = \gamma N_{\omega T} \quad (1.13)$$

En utilisant cette dernière relation pour récrire les équations 1.11 et 1.12, nous obtenons les équations de RT plus détaillées décrites dans la thèse de Gedik :

$$\frac{d\Delta N_n}{dt} = G_n(t) - \beta\Delta N_n^2 - 2\beta N_{no}\Delta N_n + 2\gamma N_{\omega he} \quad (1.14)$$

et

$$\frac{dN_\omega}{dt} = \beta/2(N_{no}^2 + 2N_{no}\Delta N_n) - \gamma N_{\omega he} - (N_{\omega he} - N_{\omega T})\gamma_{fuite} \quad (1.15)$$

Si γ est comparable à β , alors la solution à ces équations couplées n'est pas triviale. En effet, la densité de phonons hors-équilibre dépend de la température. Ce sont essentiellement les phonons optiques qui peuvent briser des paires à basse température, tandis que la contribution des phonons acoustiques est de plus en plus marquée au fur et à mesure que la température s'approche de la température critique (T_c) et que le gap supraconducteur diminue d'où l'effet d'entonnoir. De plus, les phonons optiques peuvent relaxer en phonons acoustiques de plus basses énergies à cause de l'anharmonicité du réseau ou encore disparaître dans le réservoir thermique via la conduction de chaleur dans le plan de la couche et à travers l'interface couche-substrat. Heureusement, on peut retrouver des conditions expérimentales pour lesquelles les équations d'évolution des phonons et des quasiparticules sont découplées. Ceci se produit si

1. le taux de génération de quasiparticules par absorption de phonons est faible, soit des conditions de faible perturbation et à suffisamment basse température (T est bien inférieure à T_c), ou alors
2. lorsque le taux d'évacuation des phonons vers le substrat est plus grand que le taux de génération de quasiparticules par absorption de phonons de la couche.

Si l'une de ces conditions est remplie, alors la résolution de l'approche phénoménologique de RT (éq. 1.14) est beaucoup plus simple. Il existe deux cas limites pour lesquels la solution analytique est alors possible.

Cas 1 : RT sans influence des phonons hors-équilibre et pour $T \rightarrow 0$ (ou soit $N_{no} \rightarrow 0$). Dans ce cas, l'équation de RT s'écrit :

$$\frac{d\Delta N_n(t)}{dt} \simeq G_n(t) - \beta\Delta N_n^2(t) \quad (1.16)$$

Le terme de génération définit la condition initiale ($\Delta N_n(0)$) qui correspond à la densité de quasiparticules créées après l'excitation optique et la relaxation des quasiparticules

chaudes (photoporteurs de très haute énergie). Ainsi la solution pour $t > 200$ fs s'écrit :

$$\Delta N_n(t) = \frac{\Delta N_n(0)}{\Delta N_n(0)\beta t + 1} \quad (1.17)$$

avec

$$\Delta N_n(0) \approx N_{photons} * \frac{E_{photon}}{\Delta(T)} \quad (1.18)$$

où $N_{photons}$ est le nombre de photons absorbés, E_{photon} est l'énergie des photons (1.5 eV) et $\Delta(T)$ est l'énergie du gap supraconducteur. Un photon brise donc plusieurs paires. L'équation 1.18 signifie que pour une perturbation fixe, le nombre de quasiparticules en surplus doit augmenter avec la température, car l'énergie du gap diminue. Dans cette équation, nous supposons que tous les photons ont une efficacité de 100 % pour briser des paires. Dans un cas plus général, nous pourrions ajouter une constante qui tiendrait en compte qu'une partie de l'énergie des photons absorbés est distribuée vers des processus de relaxation qui ne brisent pas de paires.

Cas 2 : RT sans influence des phonons hors-équilibre, à une température finie et dans des conditions d'une faible perturbation ($\Delta N_n(t) < N_{no}$). Dans ce cas, l'équation de RT s'écrit :

$$\frac{d\Delta N_n(t)}{dt} \simeq G_n(t) - 2\beta N_{no}\Delta N_n(t) \quad (1.19)$$

Après l'excitation optique et la relaxation ultra-rapide des quasiparticules chaudes ($t > 200$ fs), l'équation 1.19 s'écrit :

$$\frac{d\Delta N_n(t)}{dt} = -\frac{\Delta N_n(t)}{\tau_r} \quad (1.20)$$

où le temps de relaxation τ_r est donné par

$$\tau_r = \frac{1}{2\beta N_{no}} \quad (1.21)$$

En tenant compte d'un temps de montée τ_c de la densité de quasiparticules en surplus, la solution de l'équation 1.20 est :

$$\Delta N_n(t) = \Delta N_n(0) (e^{-t/\tau_r} - e^{-t/\tau_c}) \quad (1.22)$$

où $\Delta N_n(0)$ est défini à l'équation 1.18. À noter que cette forme est identique à celle du GaAs : H+ (éq. 1.3).

Cas 3 : Tel que mentionné plus haut, il n'existe pas de solution analytique aux équations couplées de RT dans le cas où il faut tenir compte de la densité des phonons hors-équilibre. Toutefois, dans la limite où le taux d'évacuation des phonons vers le substrat (γ_{fuite}) est faible devant le taux de génération de quasiparticules dans la couche supraconductrice, il est raisonnable de concevoir que la dynamique de recombinaison des quasiparticules en surplus suivra celle des phonons hors-équilibre à cause du couplage γ aux équations 1.14 et 1.15. Ainsi :

$$\Delta N_n(t) \propto \Delta N_{phonon}(t) \quad (1.23)$$

et

$$\frac{d\Delta N_{phonon}(t)}{dt} = -\frac{\Delta N_n(t)}{\tau_{es}} \quad (1.24)$$

τ_{es} est le temps de transfert des phonons hors-équilibre vers le substrat. La solution sera alors donnée par l'équation suivante :

$$\Delta N_n(t) = C\Delta N_n(0)e^{-t/\tau_{es}} \quad (1.25)$$

où C est une constante.

Dans cette thèse, nous allons présenter des mesures de traces THz émises par des antennes supraconductrices excitées à l'aide d'impulsions laser dans le visible (à 760 nm). Nous tentons de relier l'amplitude des différentes composantes en fréquence de ces impulsions térahertz à la dynamique de relaxation des quasiparticules en surplus par la recombinaison des paires supraconductrices dans la couche. Dans les conditions expérimentales explorées (puissances d'excitation comprises entre 2 mW et 80 mW, températures du substrat comprises entre 20 K et 100 K), il est fort possible que l'importance relative des différents termes de l'équation de RT (éq. 1.14) soit dépendante de ces conditions.

Typiquement, on s'attend à ce que la recombinaison bi-moléculaire soit dominante à forte densité de quasiparticules en surplus (forte puissance d'excitation ou court temps après l'excitation). La recombinaison avec des quasiparticules du bain thermique pourrait être dominante à plus forte température et faible puissance d'excitation. Finalement, la dynamique de recombinaison des quasiparticules pourrait être régie par les phonons hors-équilibre à très long temps lorsque cette densité de phonons hors-équilibre se sera construite ou à forte puissance d'excitation (dans des conditions où le taux d'absorption de phonons est plus grand que le taux de recombinaison bi-moléculaire). Considérant

que l'analyse des caractéristiques spectrales de l'antenne fait déjà appel à plusieurs paramètres ajustables, nous avons considéré uniquement les conditions de faible perturbation, de température finie et d'absence de contribution des phonons hors-équilibre pour décrire l'ensemble des données expérimentales ayant été traitées. Dans ces conditions, rappelons que la densité de quasiparticules en surplus est décrite par l'équation 1.22. Il faudra garder à l'esprit qu'à faible température et que dans des conditions de forte perturbation on s'attend à une solution d'un autre type puisque les phonons ayant une énergie plus importante que le gap supraconducteur pourraient participer dans la relaxation des quasiparticules en surplus.

1.2 Antennes térahertz

1.2.1 Principe de fonctionnement

La résolution des équations de Maxwell en champ lointain montre que le champ térahertz émis par une source conductrice $E_{THz}(t)$ est proportionnel à la dérivée première de la densité de courant $J(t)$ [27]

$$E_{THz}(t) = A \frac{dJ(t)}{dt} \quad (1.26)$$

Où A est un coefficient de proportionnalité. Notons que la géométrie de l'antenne affecte la distribution spatiale de $E_{THz}(t)$.

Habituellement dans des conditions où il n'y a pas de perturbation laser, $J(t)$ peut être décrite de deux façons. Soit avec la conductivité σ ;

$$J(t) = \sigma E_a(t) \quad (1.27)$$

où $E_a(t)$ est le champ électrique local dépendant de la perturbation, ou soit avec la vitesse $v(t)$ de N porteurs par unité de volume :

$$J(t) = eNv(t) \quad (1.28)$$

La particularité du fonctionnement des antennes térahertz semiconductrices est liée au fait que l'effet de la perturbation laser engendre une dépendance temporelle de σ ou de N . Nous devons désormais écrire $\sigma(t)$ ou $N(t)$. Dans ce qui suit, nous voyons comment les

conditions initiales des antennes et la perturbation laser affectent $J(t)$ dans la description du champ térahertz $E_{THz}(t)$ émis par des antennes à base de GaAs et de YBCO.

GaAs

Avant l'arrivée de l'impulsion laser, un champ électrique continu E_a est appliqué entre les électrodes de l'antenne. La densité de courant $J(t)$ est alors :

$$J(t) = \sigma(t)E_a \quad (1.29)$$

À l'équilibre, σ est donnée par

$$\sigma = eN\mu \quad (1.30)$$

où μ représente la mobilité. La conductivité $\sigma(t)$ s'écrit selon les équations 1.4 et 1.30

$$\sigma(t) = eN_{he}(t)\mu \quad (1.31)$$

Nous ferons ici l'hypothèse que μ et le champ électrique appliqué ne changent pas en fonction du temps ². Le contenu en fréquence du champ électrique émis par l'antenne de GaAs bombardée aux protons dépend de la variation de la densité des porteurs dans la bande de conduction et par conséquent de la densité de défauts profonds. La figure 1.4 montre l'allure de $E_{THz}(t)$ qui est la dérivée de $N_{he}(t)$ à la figure 1.3. L'allure de la partie positive de $E_{THz}(t)$ est surtout reliée à τ_c tandis que la partie négative est plutôt reliée à τ_r . L'impulsion térahertz s'étend sur une durée d'environ 2.5 ps.

Supraconducteur

Différents groupes de recherche ont étudié les caractéristiques de la radiation térahertz émise par une antenne supraconductrice excitée à l'aide d'impulsions laser ultrabrèves dans le visible. Tonouchi et Saijo [28] et Saijo et *al.* [29] ont par exemple montré que la distribution spatiale du rayonnement dépendait dans une certaine mesure de la géométrie de l'antenne. La géométrie log-périodique ³ dans les références peut également influen-

²Ce qui signifie que la structure de bande et la diffusion des porteurs de charge à proximité de l'énergie de Fermi ne sont pas modifiées par la grande densité de photoporteurs. À noter que cette approche est plus adéquate lors de la capture des électrons (τ_r) que pendant la thermalisation des électrons chauds (τ_c) où d'autres effets sont possibles.

³Une antenne log-périodique est une antenne dont l'impédance et le diagramme de rayonnement sont répétitifs selon une loi logarithmique en fonction de la fréquence, selon la définition sur Wikipédia.

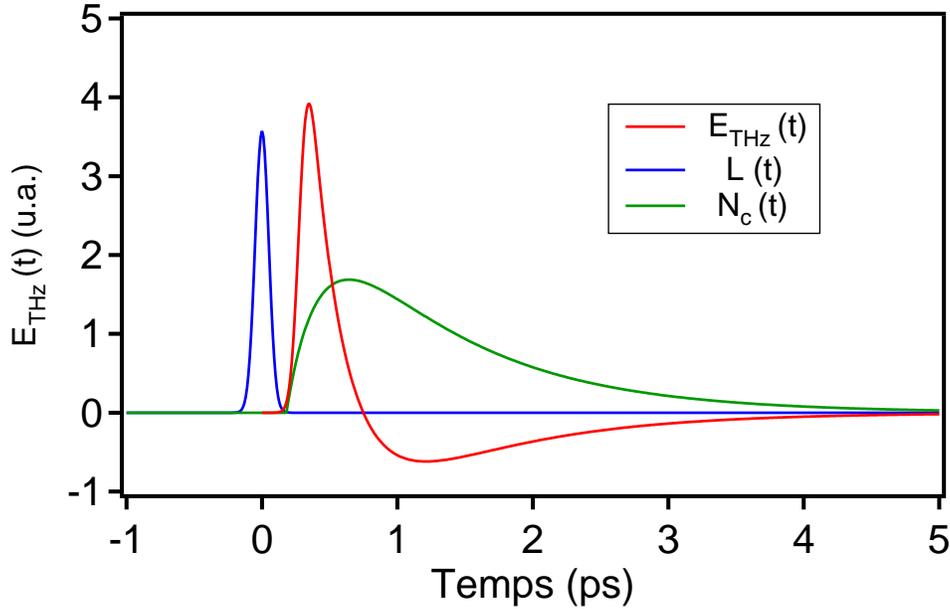


FIGURE 1.4 – Allure de $E_{THz}(t)$ pour τ_r et τ_c respectivement donnés par 1 ps et 0.250 ps. La largeur à mi-hauteur de $L(t)$ est de 100 fs. $N_c(t)$ est présentée à titre de point de repère.

cer le contenu en fréquence des impulsions térahertz émises. La nature du substrat et la présence d'une lentille de collection (à adaptation d'indice) jouent aussi un rôle important sur l'intensité de la radiation pouvant être collectée. Par ailleurs, Tani et *al.* ont montré qu'une antenne dipolaire pouvait émettre un large spectre s'étendant typiquement entre 0.1 et 2 THz [30], sans présence de résonance marquée minimisant ainsi les effets géométriques. L'allure de leurs spectres dépend de la nature et de la composition exacte de la couche supraconductrice. Ce type de mesures suggère que le spectre dépend directement de la dynamique des porteurs de charge. Donc, la qualité et la composition de la couche supraconductrice sur laquelle l'antenne est fabriquée pourrait aussi affecter le spectre d'émission.

Une meilleure compréhension des paramètres qui affectent la dynamique des porteurs en excès dans la couche supraconductrice permettrait ultimement d'optimiser les caractéristiques des antennes (l'amplitude d'émission et la largeur spectrale). Dans cette thèse, l'emphasis a été mise sur ce type d'études. Ainsi, des antennes à géométrie dipolaire ont été fabriquées puis caractérisées sur un banc de spectroscopie térahertz dans le domaine temporel. Malgré le fait que le fonctionnement de ces antennes soit basé sur un

principe relativement simple, soit la perturbation et le retour à l'équilibre des distributions de quasiparticules et de paires de Cooper, il semble que la communauté scientifique ne s'entend pas parfaitement sur la description physique des mécanismes à l'origine de l'émission de la radiation térahertz émise par impulsion. En effet, la plupart des articles portant sur ce sujet font référence à deux approches différentes pour traiter la physique de ces antennes. Ces deux approches sont décrites dans l'article de Jaekel et *al.* [16], puis dans l'article de Hangyo et *al.* [3]. La différence fondamentale entre ces approches touche principalement l'imposition ou non d'une valeur constante de la densité de courant locale traversant le pont supraconducteur soit le cas $\mathbf{J} = \text{cte}$ ou le cas $\mathbf{J} \neq \text{cte}$. Cette densité de courant est celle imposée par la largeur du pont supraconducteur et par l'amplitude du courant continu de la source qui alimente le dispositif.

En régime stationnaire, le modèle à deux fluides permet d'exprimer la densité de courant continu J_{cc} en une densité de courant normale J_n et en une densité de courant supraconducteur (ou de paires) J_s :

$$\vec{J}_{cc} = \vec{J}_n + \vec{J}_s \quad (1.32)$$

Avant la perturbation par le faisceau pompe au temps $t = 0$, le canal supraconducteur court-circuite complètement la partie normale, c'est-à-dire que la densité de courant des quasiparticules doit être nulle $J_n = 0$ ou la vitesse moyenne de celles-ci $\langle v_n \rangle (t = 0) = 0$. Après la perturbation du faisceau laser, une certaine densité de paires sera brisée ($\Delta N_s(t)$) et une certaine densité de quasiparticules sera créée ($\Delta N_n(t)$). De façon générale et sans approximation, nous pouvons écrire que la densité de courant du système $\mathbf{J}(t)$ après la perturbation peut se décrire comme le modèle à deux fluides dépendant du temps (eq. 1.65) :

$$\vec{J}(t) = \vec{J}_n(t) + \vec{J}_s(t) \quad (1.33)$$

Cas : $\vec{J} = \text{cte}$. La possibilité qu'un courant de quasiparticules $\vec{J}_n(t)$ soit maintenant présent provient d'une particularité de la supraconductivité : les paires non-brisées ($N_s - \Delta N_s$) vont s'opposer au changement engendré par la perturbation en générant un champ électrique $\vec{E}(t)$ qui permettra d'accélérer les paires pour maintenir la densité de courant supraconductrice J_s constante. Tout le courant est maintenu dans le canal supraconducteur et très peu de courant normal est présent. Si la perturbation est faible, alors la densité de courant totale dans le micro-pont $\mathbf{J}(t)$ peut être approximée par une constante ($\mathbf{J}(t) \approx J_s$). La différentiation de l'équation 1.33 permet de déterminer de façon

simple le champ électrique dans le supraconducteur :

$$\frac{d\vec{J}(t)}{dt} = \frac{d\vec{J}_n(t)}{dt} + \frac{d\vec{J}_s(t)}{dt} \approx 0 \quad (1.34)$$

Puisque l'équation du mouvement des quasiparticules est donnée par

$$m^* \frac{d\vec{v}_{n,\vec{k}}}{dt} = -e\vec{E}(t) - m^* \frac{\vec{v}_{n,\vec{k}}(t)}{\tau_{n,\vec{k}}} \quad (1.35)$$

où e est la charge élémentaire, $\tau_{n,\vec{k}}$ le temps entre deux collisions, m^* la masse effective des électrons et $\vec{v}_{n,\vec{k}}(t)$ la vitesse des quasiparticules qui dépend du vecteur \vec{k} , et que l'équation du mouvement des paires supraconductrices est donnée par :

$$2m^* \frac{d\vec{v}_s}{dt} = -2e\vec{E}(t) \quad (1.36)$$

alors les dérivées de l'équation 1.34 sont données en utilisant les équations du mouvement des quasiparticules et des paires par

$$\frac{d\vec{J}_n(t)}{dt} = -e \frac{d\Delta N_n(t)}{dt} \langle \vec{v}_{n,\vec{k}}(t) \rangle + N_n(t) \frac{e^2}{m^*} \vec{E}(t) + N_n(t) e \frac{\langle \vec{v}_{n,\vec{k}}(t) \rangle}{\tau_n} \quad (1.37)$$

et

$$\frac{d\vec{J}_s(t)}{dt} = 2e \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} \vec{v}_s(t) + 2N_s(t) \frac{e^2}{m^*} \vec{E}(t) \quad (1.38)$$

où $\langle \vec{v}_{n,\vec{k}} \rangle$ est la vitesse des quasiparticules moyennée sur l'espace des \vec{k} et est reliée à la vitesse de dérive. De plus, le temps τ_n doit être indépendant de \vec{k} . À noter que nous avons utilisé la définition de la densité de courant \vec{J}_n suivante :

$$\vec{J}_n = -e N_n \langle \vec{v}_{n,\vec{k}} \rangle \quad (1.39)$$

Maintenant, à partir des équations 1.34, 1.37 et 1.38, nous pouvons exprimer le champ électrique $\vec{E}(t)$ local dans le supraconducteur :

$$\vec{E}(t) \approx \frac{m^*}{e(2N_s(t) + N_n(t))} \left(-2 \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} \vec{v}_s(t) + \frac{d\Delta N_n(t)}{dt} \langle \vec{v}_{n,\vec{k}}(t) \rangle - N_n(t) \frac{\langle \vec{v}_{n,\vec{k}}(t) \rangle}{\tau_n} \right) \quad (1.40)$$

Dans le cas simple où la densité de paires est beaucoup plus grande que la densité de

quasiparticules et que la vitesse de dérive de ces dernières est plus faible que la vitesse des paires, nous pouvons négliger la contribution des quasiparticules à la dernière équation. Ainsi, nous obtenons un champ électrique émis qui dépend seulement de la variation de l'inductance cinétique des paires ($L_s(t)$) :

$$\vec{E}(t) \approx \frac{m^*}{2eN_s(t)} \left(2 \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} \frac{\vec{J}_s}{2eN_s(t)} \right) \quad (1.41)$$

$$\vec{E}(t) \approx \frac{\vec{J}_s}{2} \frac{dL_s(t)}{dt} \quad (1.42)$$

où l'inductance cinétique des paires supraconductrices est donnée par $L_s = \frac{m^*}{e^2 N_s}$ et supposant que $N \sim 2N_s$. Rappelons que la réponse des paires de Cooper à un champ électrique alternatif d'un point de vue électronique est de s'opposer à tout changement de courant. Les paires agissent électriquement comme une inductance (voir éq. 1.66). Les équations 1.41 et 1.42 décrivent l'approche utilisée par Jaekel et *al.* [16] pour expliquer le fonctionnement des antennes supraconductrices. Cette approche est basée sur le modèle de Hegmann et Preston pour décrire l'origine de la **photoréponse** très rapide (apparition d'une différence de potentiel) d'une durée de quelques centaines de picosecondes aux extrémités d'un micro-pont de YBCO [4].

Ultimement, près de la température critique, l'équation 1.42 ne devrait pas être valide puisque la densité de quasiparticule sera élevée et τ_n beaucoup plus petit. Une façon simple de tenir compte de l'effet des quasiparticules est de supposer que $N_n(t)$ au dénominateur est substantiel dans le premier terme de l'équation 1.40

$$\vec{E}(t) \approx \frac{m^*}{e(2N_s(t) + N_n(t))} \left(-2 \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} \vec{v}_s(t) \right) \quad (1.43)$$

Cette renormalisation du champ électrique provenant de l'accélération des paires suppose que la vitesse de dérive des quasiparticules ($\langle \vec{v}_{n,\vec{k}}(t) \rangle$) doit être beaucoup plus petite que la vitesse des paires $\vec{v}_s(t)$ et que nous devons observer la variation de paires brisées sur un temps comparable à τ_n . Puisque le nombre de porteurs est une constante N (éq. 1.5) dans le temps et en température, et si ΔN_s et $\Delta N_n \ll N_s$ et N_n , alors l'équation 1.43 se réécrit :

$$\vec{E}(t) \approx \frac{m^* \vec{J}_s}{2e^2 N N_s(t)} \left(2 \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} \right) \quad (1.44)$$

Peu importe l'approximation utilisée pour décrire le champ électrique créé par l'inductance cinétique, le champ électrique térahertz $E_{THz}(t)$ émis sera proportionnel au champ électrique local $E(t)$ créé pendant l'accélération des paires :

$$\vec{E}_{THz} \propto \vec{E}(t) \quad (1.45)$$

Qui devient selon les équations 1.6 et 1.22 (sans la notation vectorielle) :

$$E_{THz} \propto A^*(T) \frac{d(\Delta N_n(0) (e^{-t/\tau_r} - e^{-t/\tau_c}))}{dt} \quad (1.46)$$

où $A^*(T)$ est le comportement en température du préfacteur du champ térahertz selon la limite considérée. Nous explicitons ce terme plus loin dans ce chapitre. L'équation 1.46 est la forme que nous utiliserons pour modéliser le spectre de l'antenne supraconductrice (sec. 1.5).

Cas : $\vec{J} \neq \text{cte}$. Après la description de l'émission térahertz provenant de l'accélération des paires dans le **cas $\mathbf{J} = \text{cte}$** , il est difficile de justifier l'approche décrite par Hangyo et **al.** puisqu'ils utilisent $\mathbf{J} \neq \text{cte}$ [3]. Ils mentionnent que la densité de courant suprafluide locale diminue abruptement lorsque le pont supraconducteur de l'antenne est éclairé par une impulsion laser ultra-brève et que la vitesse des paires n'a pas le temps de s'ajuster au changement rapide de la densité superfluide pour maintenir un courant local constant. La vitesse des paires est considérée constante durant la période où l'antenne émet la majeure partie de son rayonnement. Il est évident que v_s doit changer à plus long temps, car il y aura forcément apparition d'un champ électrique local accélérant les paires non-brisées dans une région normale autour de la région éclairée qui finira par se répartir sur tout l'ensemble du pont supraconducteur. Dans ces conditions, l'amplitude du champ rayonné en champ lointain est directement proportionnelle à la variation de cette densité locale de courant. S'inspirant des antennes conductrices ; Hangyo et *al.* pose alors que [3] :

$$\vec{E}_{THz}(t) \propto \frac{d\vec{J}_s(t)}{dt} = 2e\vec{v}_s \frac{d\Delta N_s(t)}{dt} - 2eN_s(t) \frac{d\vec{v}_s}{dt} \quad (1.47)$$

Puisque $\vec{v}_s \approx \text{cte}$, le deuxième terme est supposé négligeable. Même en considérant que v_s puisse changer après un certain temps, il est difficile de concevoir comment un champ électrique dans le régime hors-équilibre peut apparaître si aucun champ électrique est présent localement dans le supraconducteur à l'équilibre ($v_s = \text{cte}$). Nous mentionnons cette approche puisqu'elle fait partie des modèles proposés dans la littérature et ne vou-

lons pas l'écartier puisque nous n'avons aucune preuve que ce modèle n'est pas valide. Dans l'article de Tonouchi et *al.* [31], ils prétendent que l'approche $J \neq \text{cte}$ est la bonne, car un **signe distingue** les antennes supraconductrices des antennes avec GaAs. En effet, il y a bien un signe ⁴ de différence entre le champ émis par une antenne de GaAs (éq. 1.26) et le champ d'une antenne supraconductrice selon l'approche $J \neq \text{cte}$ (éq. 1.47). À défaut de ne pas avoir vérifié le signe du champ électrique émis, nous pourrions regarder le comportement en température pour possiblement distinguer les deux approches.

Dépendance en température. Afin de simplifier l'analyse de la dépendance en température de l'amplitude du champ électrique térahertz émis à l'équation 1.46), nous supposons que τ_r et τ_c ne sont pas dépendants de la température ⁵. Donc, en utilisant l'équation 1.18 qui exprime le comportement de la perturbation de la pompe avec la température qui va comme l'inverse de l'énergie du gap $\Delta(T)$, nous obtenons les dépendances en température de $A(T) = A^*(T)\Delta N_n(0)$ pour les deux cas considérés :

- 1a. $A(T) \sim \frac{1}{N_s^2(T)\Delta(T)} \sim \frac{1}{\Delta^5(T)}$ (cas $J = \text{cte}$, quasiparticules négligeables)
- 1b. $A(T) \sim \frac{1}{N_s\Delta(T)} \sim \frac{1}{\Delta^3(T)}$ (cas $J = \text{cte}$, quasiparticules non-négligeables)
- 2. $A(T) \sim -\frac{1}{\Delta^3(T)}$ (cas $J \neq \text{cte}$)

Pour le cas $J = \text{cte}$, la prise en compte de l'effet des quasiparticules sur le comportement en température n'est pas négligeable. Si les quasiparticules affectent l'émission térahertz, alors uniquement le signe du champ électromagnétique émis permet de distinguer les deux approches.

1.2.2 Détection du spectre

Une antenne térahertz à base de GaAs implanté aux protons est utilisée comme détecteur ultra-rapide pour mesurer $E_{THz}(t)$. Lors de la mesure, $E_{THz}(t)$ est convolué à la réponse du détecteur et génère un courant mesuré $I_m(t)$ ou trace térahertz :

$$I_m(t) = AE_{THz}(t) \otimes \sigma(t) \quad (1.48)$$

A est un coefficient de proportionnalité et $\sigma(t)$ (voir éq. 1.31) est la réponse du détecteur après l'excitation pour un faisceau pompe visible. La figure 1.5 montre un exemple de trace temporelle de $I_m(t)$. Nous avons effectué la convolution de $E_{THz}(t)$ de la figure 1.4 avec $\sigma(t)$ ou $N_{he}(t)$ à la figure 1.3. À cause de la convolution, $I_m(t)$ a une largeur d'environ

⁴L'amplitude du champ électrique doit être inversée entre les deux types d'antenne.

⁵Nous verrons comment en tenir compte dans l'analyse à la section 4.6.

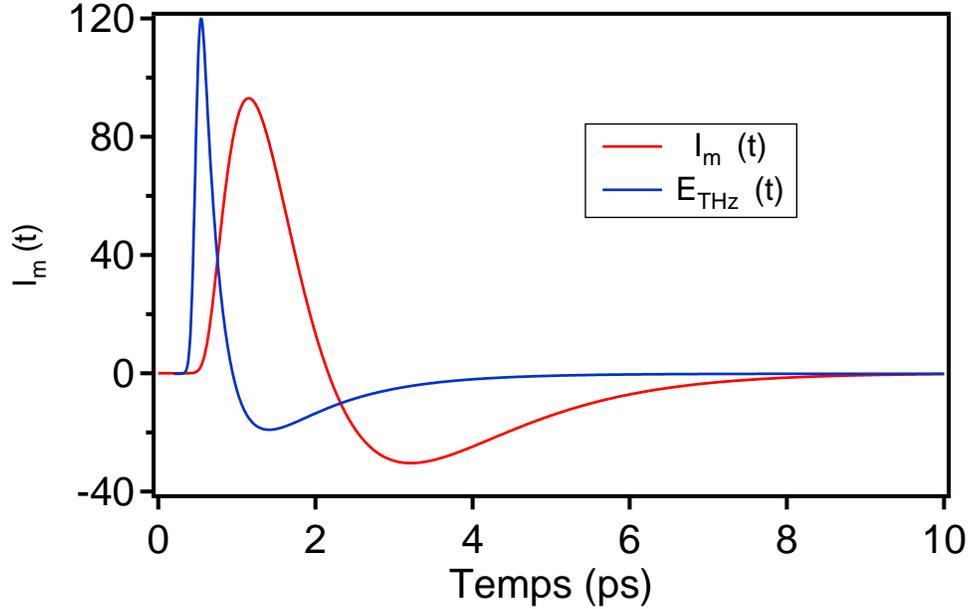


FIGURE 1.5 – Exemple simulé d’une trace térahertz ou du courant mesuré $I_m(t)$ pour une antenne d’émission et de détection à base de GaAs bombardée aux protons. La courbe en bleue illustre le champ électrique térahertz E_{THz} qui est beaucoup plus étroit.

5 ps comparativement à 2.5 ps pour le champ émis par l’antenne. La convolution a pour effet d’élargir l’impulsion, mais conserve l’allure qualitative générale de la trace.

1.3 Pompe-visible et sonde-térahertz

1.3.1 Principe de fonctionnement

La technique pompe-visible et sonde-térahertz en mode transmission consiste à mesurer la variation de l’amplitude de transmission d’un champ électrique $\Delta E_t(\omega, \tau_d)$ passant au travers d’un échantillon d’épaisseur \mathbf{d} avant et après une perturbation. Le champ électrique de la sonde transmis à l’équilibre $E_t(\omega)$ et après excitation par la pompe-visible $E_t(\omega, \tau_d)$ définissent $\Delta E_t(\omega, \tau_d)$

$$\Delta E_t(\omega, \tau_d) = E_t(\omega, \tau_d) - E_t(\omega) \quad (1.49)$$

où τ_d dans l’expression $E_t(\omega, \tau_d)$ représente la dépendance temporelle de l’amplitude de transmission à une fréquence ω donnée. Cette dépendance en τ_d est inhabituelle et

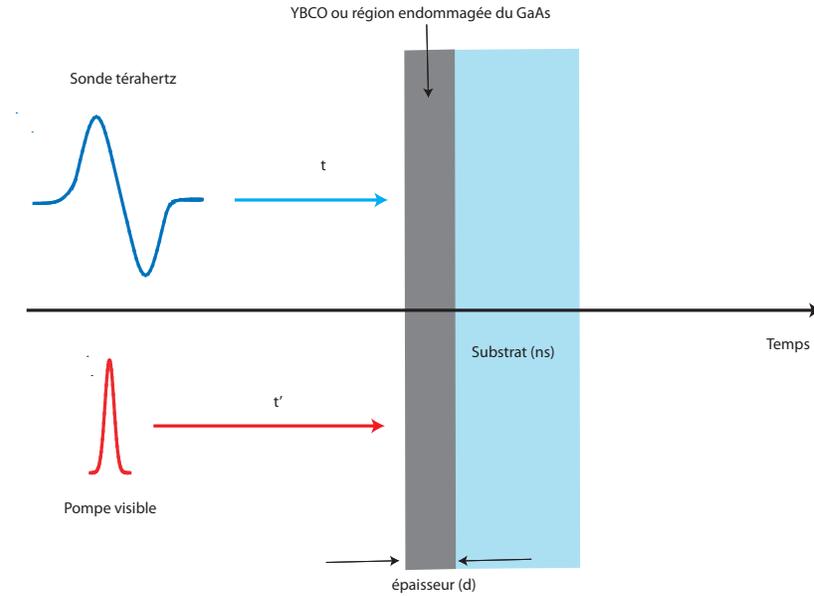


FIGURE 1.6 – Schéma permettant d'introduire la technique de mesure pompe-sonde en mode transmission d'un échantillon d'épaisseur d sur un substrat d'indice de réfraction n_s .

est reliée au retard entre la pompe (t') et la sonde (t). L'article de Nienhuys et Sundström décrit plus en détails ce formalisme et cite certains des auteurs qui utilisent la conductivité dépendante du retard τ_d ($\sigma(\omega, \tau_d)$) [32]. La figure 1.6 permet d'introduire la technique de mesure. À l'équilibre, uniquement la sonde térahertz avec un large contenu en fréquence est présente. L'amplitude de celle-ci après l'échantillon dépend de l'amplitude de transmission ($T(\omega)$) qui dépend de la conductivité $\sigma(\omega)$ de la couche qui sera illuminée et de l'indice de réfraction du substrat n_s . Après l'excitation de l'échantillon avec la pompe-visible, $T(\omega)$ aura une dépendance temporelle τ_d , c'est pourquoi nous écrivons $T(\omega, \tau_d)$. En réalité, la mesure de la sonde-térahertz s'effectue dans l'espace du temps, car nous mesurons des traces temporelles (en mode 2D) ⁶. Décrivons les différents termes de l'équation 1.49.

Le champ électrique transmis $E_t(\omega)$ est relié à l'amplitude du champ électrique incident $E_o(\omega)$ par l'amplitude de transmission $T(\omega)$:

$$E_t(\omega) = T(\omega)E_o(\omega) \quad (1.50)$$

⁶Voir la fin de la section 2.2.2 pour plus de détails.

E_o est l'amplitude du champ de la sonde-térahertz. Dans l'espace du temps, nous avons

$$E_t(t) = T(t) \otimes E_o(t) \quad (1.51)$$

Un fois l'échantillon traversé, le champ électrique est convolué à la réponse $R(t)$ du détecteur qui dépend du profil temporel de l'impulsion laser $L(t)$. Le champ électrique mesuré $E_m(t)$ s'écrit :

$$E_m(t) = E_t(t) \otimes R(t) \quad (1.52)$$

Dans notre cas, le détecteur est un cristal électro-optique de ZnTe. Nous pouvons considérer en première approximation que $R(t) \approx L(t)$ où $L(t)$ est décrit par une gaussienne de largeur à mi-hauteur l :

$$L(t) = Ie^{-\frac{t^2 4ln(2)}{l^2}} \quad (1.53)$$

où I représente l'amplitude du laser.

Lorsque l'échantillon est perturbé par un faisceau laser $L(t)$ dont le profil temporel est identique à celui du détecteur, le champ électrique transmis dans l'état hors-équilibre $E_t(\omega, \tau_d)$ s'écrit

$$E_t(\omega, \tau_d) = T(\omega, \tau_d)E_o(\omega) \quad (1.54)$$

où $T(\omega, \tau_d)$ est l'amplitude de transmission perturbée par le laser $L(t)$. Dans l'espace du temps, nous aurons

$$E_t(t, \tau_d) = T(t, \tau_d) \otimes E_o(t) \quad (1.55)$$

L'équation 1.55 signifie que la valeur de $E_t(t)$ au temps t dépend du moment t' après l'impulsion laser à laquelle la transmission de $E_o(t)$ a lieu ($\tau_d = t-t'$).

Le champ mesuré par le détecteur ($E_m(t, \tau_d)$) s'écrit :

$$E_m(t, \tau_d) = E_t(t, \tau_d) \otimes R(t) \quad (1.56)$$

Où $R(t)$ est la réponse temporelle du détecteur. En pratique, nous mesurons la différence du champ électrique ($\Delta E_m(t)$) entre l'échantillon perturbé et à l'équilibre pour un temps t donné

$$\Delta E_m(t, \tau_d) = E_m(t, \tau_d) - E_m(t) \quad (1.57)$$

Nous retrouvons la forme temporelle et expérimentale que nous avons présentée à l'équation 1.49 pour expliquer le principe de fonctionnement de la technique pompe-sonde.

Dans l'hypothèse où la perturbation ne change pas le retard de la sonde-téraherz $E_o(t)$ par rapport à la pompe, l'équation 1.57 se réécrit en fonction des amplitudes de transmission, soit :

$$\Delta E_m(t, \tau_d) = (T(t, \tau_d) - T(t)) \otimes E_o(t) \otimes R(t) \quad (1.58)$$

Donc, nous aurons besoin d'explicitier $T(t, \tau_d)$ et $T(t)$ afin de relier les mesures de τ_r extraites de la technique pompe-sonde avec celles des antennes. La forme temporelle de l'équation 1.58 n'est vraiment pas pratique, cependant, elle illustre la difficulté à laquelle nous faisons face pour décrire la technique. Au prochain chapitre, nous indiquerons dans quelles conditions nous pouvons exploiter l'équation 1.58 pour analyser nos résultats.

1.3.2 Amplitude de transmission

Le supraconducteur que nous utilisons est une couche mince d'épaisseur d . Lorsque d est plus petit que la longueur de pénétration λ_L ou l'épaisseur de peau δ (s'il est dans l'état normal) et la longueur d'onde de la sonde, alors l'amplitude de transmission s'écrit [21, 33]

$$T(\omega) = \left(\frac{4n_s}{n_s + 1} \right) \left(\frac{1}{n_s + 1 + \sigma(\omega)dZ_o} \right) \quad (1.59)$$

n_s est l'indice de réfraction du substrat, $\sigma(\omega)$ est la conductivité complexe de la couche mince et Z_o l'impédance du vide qui est de 377Ω . En ce qui a trait au GaAs, nous pouvons définir la région bombardée par les protons d'épaisseur \mathbf{d} comme ayant une conductivité nulle à l'équilibre, car les porteurs libres dans la bande de conduction sont négligeables.

Dans le cas d'une couche d'YBCO sur saphir, nous devons apporter une légère correction à l'équation 1.59, car nous devons tenir compte d'une couche tampon d'indice de réfraction n_{ct} . La couche tampon se situe entre la couche de YBCO et le substrat de saphir. Celle-ci modifie $T(\omega)$ selon

$$T(\omega) = \left(\frac{4n_s}{n_s + 1} \right) \left(\frac{2n_{ct}}{n_{ct} + n_s} \right) \left(\frac{1}{n_{ct} + 1 + \sigma(\omega)dZ_o} \right) \quad (1.60)$$

La transformée de Fourier (TF) de $T(\omega)$ nécessite de connaître la forme de $\sigma(\omega)$. À l'équilibre, $\sigma(\omega)$ est généralement décrite par le modèle à deux fluides pour un supraconducteur que nous présentons à la prochaine section 1.3.3. Quant à la description de l'amplitude de transmission perturbée $T(\omega, \tau_d)$, il suffit de remplacer $\sigma(\omega)$ par la conduc-

tivité hors-équilibre $\sigma(\omega, \tau_d)$ [32] dans $T(\omega)$ pour obtenir

$$T(\omega, \tau_d) = \left(\frac{4n_s}{n_s + 1} \right) \left(\frac{1}{n_s + 1 + \sigma(\omega, \tau_d)dZ_o} \right) \quad (1.61)$$

Afin d'effectuer la TF de cette dernière équation, nous devons définir une expression de $\sigma(\omega, \tau_d)$ pour le supraconducteur. De plus, nous avons mentionné que l'équation 1.61 est aussi valide pour le GaAs. Cependant, nous avons déjà défini $\sigma(\omega, \tau_d)$ à l'équation 1.31 et celle-ci n'avait pas de dépendance avec la fréquence. L'étude d'un matériau à diverses fréquences nécessite l'introduction d'une telle dépendance. À la prochaine section, nous introduisons $\sigma(\omega, \tau_d)$ pour le GaAs et YBCO.

1.3.3 Conductivité CA

Modèle de Drude

Au-dessus de sa température critique T_c , le YBCO est un métal. Un modèle simple pour décrire les charges libres à hautes fréquences dans ce matériau est le modèle de Drude. La conductivité de Drude s'écrit

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_o}{1 + i\omega\tau} \quad (1.62)$$

où σ_o est la conductivité en courant continu et τ le temps moyen entre deux collisions. La conductivité en courant continu est donnée par

$$\sigma_o = \frac{e^2 N_o \tau}{m^*} \quad (1.63)$$

où e est la charge électronique, N_o est la densité de porteurs libres et m^* est la masse effective des électrons. Lors d'une perturbation, N_o aurait une dépendance temporelle. En fait, dans un métal N_o va demeurer la même, mais l'effet produit par l'excitation optique sera **semblable** à celui d'augmenter la température : la distribution des porteurs au niveau de Fermi n'est pas la même. La description des électrons hors-équilibre dans un métal n'est pas triviale et l'approche généralement utilisée est le modèle à deux températures que nous discuterons à la section 1.4.

Par contre, dans le cas du GaAs, N_o est négligeable dans la bande de conduction à l'équilibre et devient non-nulle après l'excitation laser. La conductivité de Drude hors-

équilibre ($\sigma(\omega, \tau_d)$) pour le GaAs peut s'écrire comme :

$$\sigma(\omega, \tau_d) = \frac{eN_{he}(\tau_d)\mu(\tau_d)}{1 + i\omega\tau} = N_{he}(\tau_d)s(\omega, \tau_d) \quad (1.64)$$

où τ est le temps entre deux collisions et $s(\omega, \tau_d)$ la réponse d'un électron à un champ électrique externe qui peut dépendre du retard entre la pompe et la sonde τ_d . Pour des temps ultra-courts de l'ordre de 200 fs, la mobilité peut dépendre de τ_d , mais devient une constante en bas de bande ou pour des temps supérieurs. Le temps τ_c que nous avons préalablement introduit pour décrire la relaxation des photoporteurs en bas de bande est relié à τ . Nous pouvons extraire directement la relaxation des porteurs si $s(\omega, \tau_d)$ n'est pas une fonction de τ_d à l'équation 1.64, c'est-à-dire si τ et la mobilité μ n'évoluent pas en fonction du retard entre la pompe et la sonde. D'ailleurs, c'est l'hypothèse que nous avons faite à l'équation 1.31 en supposant que la mobilité n'est pas une fonction du temps. Cette façon inhabituelle d'écrire la conductivité hors-équilibre est un outil pour suivre la densité de porteurs dont l'amplitude change en fonction du temps. Cette description est valide seulement pour un retard entre la pompe et la sonde (τ_d) plus grand que le temps entre deux collisions (τ) [32].

Modèle à deux fluides

Le modèle à deux fluides est généralement utilisé pour décrire les propriétés de transport à hautes fréquences d'un supraconducteur à l'équilibre [21, 34–36]. Il est composé d'un fluide normal décrit par la conductivité de Drude $\sigma_n(\omega)$ et d'un fluide supraconducteur avec une conductivité $\sigma_s(\omega)$. La conductivité du modèle à deux fluides $\sigma_{2f}(\omega)$ est la somme de $\sigma_n(\omega)$ et $\sigma_s(\omega)$

$$\sigma_{2f}(\omega) = \sigma_n(\omega) + \sigma_s(\omega) \quad (1.65)$$

où σ_s est défini comme

$$\sigma_s = -\frac{e^2 N_s}{m^*} \left(\delta(\omega) + \frac{i}{\omega} \right) \quad (1.66)$$

Le terme $\delta(\omega)$ provient de la réponse du superfluide à une excitation continue. Puisque le contenu en basses fréquences ($f < 50$ GHz) de l'impulsion sonde est négligeable, nous supposons que $\delta(\omega)$ n'influence pas la transmission du paquet d'onde de la sonde.

En régime hors-équilibre, nous écrirons la conductivité à deux fluides comme $\sigma_{2f}(\omega, \tau_d)$.

Selon l'équation 1.65, $\sigma_{2f}(\omega, \tau_d)$ s'écrit

$$\sigma_{2f}(\omega, \tau_d) = \sigma_n(\omega, \tau_d) + \sigma_s(\omega, \tau_d) \quad (1.67)$$

et plus en détails :

$$\sigma_{2f}(\omega, \tau_d) = \frac{e^2 N_n(\tau_d) \tau}{m^*(1 + i\omega\tau)} - \frac{ie^2 N_s(\tau_d)}{\omega m^*} \quad (1.68)$$

1.4 Modèle à deux températures

Une autre approche que celle présentée à la section 1.1 est utilisée pour décrire l'évolution temporelle de la température du gaz d'électrons T_e et du bain de phonons T_p [9]. À noter que cette approche est aussi utilisée pour décrire les métaux hors-équilibre. Nous exploiterons ce formalisme pour décrire principalement le long temps de relaxation τ_{r2} observé avec la technique pompe-sonde. En effet, l'énergie absorbée par le supraconducteur sera ultimement transférée dans les phonons acoustiques et contribuera à augmenter la température de celui-ci. Tant que la température du supraconducteur ne sera pas revenue à l'équilibre, nous pourrons mesurer une différence dans l'amplitude de transmission (sec. 1.3).

Perrin et Vanneste ont utilisé les équations du bilan de la chaleur en tenant compte de la chaleur spécifique électronique C_e et phononique C_p . Ces équations sont couplées linéairement et permettent de décrire leurs expériences dans une couche mince supraconductrice hors-équilibre [9] :

$$C_e \frac{dT_e}{dt} = -\frac{C_e}{\tau_{e-p}} (T_e - T_p) + P(t) \quad (1.69)$$

et

$$C_p \frac{dT_p}{dt} = \frac{C_e}{\tau_{e-p}} (T_e - T_p) - \frac{C_p}{\tau_{es}} (T_p - T_o) \quad (1.70)$$

Où $P(t)$ représente la puissance de radiation absorbée en fonction du temps, τ_{e-p} et τ_{es} sont respectivement le temps d'interaction moyen entre les électrons et les phonons et le temps de fuite d'un phonon de la couche mince vers le substrat. Lorsque τ_{es} est plus grand que $\frac{C_p \tau_{e-p}}{C_e}$ et que $C_p > C_e$, une analyse non-triviale de Sergeev et Reizer prédit que la solution de $T_e(t)$ a une décroissance bi-exponentielle [17]. Pour un temps t inférieur et

de l'ordre de τ_{e-p} , la solution approximative est

$$T_e(t) = I_o \frac{e^{-\frac{t}{\tau_{e-p}}}}{C_e} \quad (1.71)$$

et pour un temps t très grand après τ_{e-p} , ils obtiennent

$$T_e(t) = I_o \frac{e^{-\frac{t}{\tau_{es}}}}{C_p} \quad (1.72)$$

I_o est proportionnel à la puissance absorbée du faisceau d'excitation par la couche mince. Retenons des équations 1.71 et 1.72 que pour un temps inférieur à τ_{e-p} , l'amplitude est déterminée par $1/C_e$, et par $1/C_p$ pour un temps supérieur à τ_{e-p} . Une comparaison qualitative du rapport des amplitudes pour ces deux régimes de temps pourrait nous donner des informations supplémentaires en pompe-sonde. Nous parlons d'une comparaison qualitative, car il faudrait relier le changement de température au changement de la conductivité. Dans la prochaine sous-section, nous verrons que τ_{es} est déterminé par l'interface entre la couche mince et le substrat.

Résistance thermique

Considérons une interface formée de deux matériaux différents. Lorsqu'une différence de température ΔT existe entre les deux matériaux, un flux de chaleur Q se propage du matériau le plus chaud vers celui le plus froid. L'interface entre les deux matériaux va alors agir de barrière thermique ou résistance thermique R_k à cause d'une densité de phonons différente de part et d'autre de l'interface. Kapitza a mis en évidence cet effet en 1941 [37]. La résistance thermique s'exprime comme suit :

$$R_k = \frac{\Delta T}{\dot{Q}} \quad (1.73)$$

\dot{Q} est le flux d'énergie thermique. Pour une couche mince métallique sur un substrat isolant, Hegmann et Preston [4] estime τ_{es} en fonction de la chaleur spécifique C de la couche mince et de l'épaisseur d de l'échantillon par

$$\tau_{es} = CR_k d \quad (1.74)$$

1.5 Modèles de lissage

1.5.1 Spectroscopie dans le domaine temporel

Le lissage de multiples convolutions temporelles afin d'analyser les traces térahertz $E_{THz}(t)$ et d'en extraire un temps de relaxation τ_r est une opération complexe. Une façon de contourner cette difficulté est de passer dans l'espace des fréquences. Cette démarche permet la soustraction des effets d'absorption de l'eau et de possibles réflexions sur $E_{THz}(t)$, car ces effets sont facilement identifiables dans l'espace des fréquences. Ainsi, nous voulons transformer dans l'espace des fréquences le courant mesuré $I_m(t)$ provenant de la détection de $E_{THz}(t)$ à l'équation 1.48. Afin d'éviter des confusions, nous introduisons les termes $\Delta N_E(t)$ et $\Delta N_D(t)$ dans la définition de $I_m(t)$ qui sont respectivement les porteurs créés par la pompe d'excitation à l'émetteur et au détecteur. Le formalisme que nous présentons est valide aussi bien pour les antennes térahertz à base de GaAs que celles à base d'YBCO. Dans le cas d'YBCO, la modélisation présentée pourrait être valide seulement à basse excitation.

À partir de la définition du courant mesuré $I_m(t)$ proportionnel au champ térahertz à l'équation 1.48 et en utilisant les définitions 1.26 et 1.31, $I_m(t)$ se réécrit de façon générale en fonction de $\Delta N_E(t)$ et $\Delta N_D(t)$ comme

$$I_m(t) = A \frac{d[\Delta N_E(t) \otimes L(t)]}{dt} \otimes \Delta N_D(t) \otimes L(t) \quad (1.75)$$

où A est une constante qui dépend du type d'antenne. Nous rappelons que $L(t)$ est le profil temporel de l'impulsion laser. Nous utilisons dans la transformée de Fourier (TF) de l'équation 1.75 l'identité pour la TF d'une dérivée

$$TF \left(\frac{dF(t)}{dt} \right) = i\omega TF(F(t)) \quad (1.76)$$

où $F(t)$ est une fonction quelconque, qui nous permet d'obtenir $I_m(\omega)$

$$I_m(\omega) = iA\omega \Delta N_E(\omega) \Delta N_D(\omega) L^2(\omega) \quad (1.77)$$

Puisque la forme retenue de $\Delta N_E(t)$ et $\Delta N_D(t)$ contient une exponentielle décroissante qui tient compte de la montée en un temps τ_c et une autre exponentielle pour tenir compte de la descente en un temps τ_r (voir l'équation 1.3 et la figure 1.3 pour le semiconducteur

et l'équation 1.22 pour le supraconducteur), alors de façon explicite, nous écrivons :

$$I_m(\omega) = iA\omega \left(\frac{1}{1 + i\omega\tau_{rE}} - \frac{1}{1 + i\omega\tau_{cE}} \right) \left(\frac{1}{1 + i\omega\tau_{rD}} - \frac{1}{1 + i\omega\tau_{cD}} \right) e^{-\frac{t^2\omega^2}{8\ln(2)}} \quad (1.78)$$

Les indices E et D indiquent les temps de relaxation τ_r et de montée τ_c propres à l'émetteur et au détecteur. Le lissage des données s'effectue en prenant la norme de $I_m(\omega)$:

$$|I_m(\omega)| = \sqrt{Re [I_m(\omega)]^2 + Im [I_m(\omega)]^2} \quad (1.79)$$

Étant donnée que l'équation 1.78 possède 6 variables, dont 5 influencent l'allure du spectre, une procédure appliquée pour contraindre le lissage est présentée dans le prochain chapitre. Elle permet de diminuer au maximum le nombre de paramètres libres.

Finalement, un dernier élément est ajouté pour modéliser le spectre des antennes. Nous devons ajouter un facteur multiplicatif ω à l'équation 1.78 pour tenir compte du spectre observé : c'est un effet de filtrage des basses fréquences. Avant de discuter de l'origine physique de ce terme, voyons comment ce terme en ω affecte la trace térahertz mesurée. Selon l'identité à l'équation 1.76, nous notons que l'ajout de ce facteur multiplicatif est l'équivalent de mesurer la dérivée de $I_m(t)$ ($I'_m(t)$). La figure 1.7 montre l'effet de ce terme sur $I_m(t)$ dans l'espace du temps. À cause de l'effet de filtrage, la durée de l'impulsion passe d'environ 5 ps à 3 ps. De plus, un deuxième maximum autour de 4 ps apparaît, moins intense, mais présent. S. Keiding rapporte dans sa thèse que les dimensions finies des électrodes de l'antenne de détection mènent à l'équivalent d'une différentiation de $I_m(t)$ [38]. En effet, S. Keiding a montré que le point focal du champ électrique de l'impulsion térahertz au détecteur dépend de la fréquence : plus la fréquence est élevée et plus le point focal est petit. Dans le cas où la distance entre les électrodes du détecteur est plus petite que le point focal, le champ électrique mesuré est plus faible. Un effet de filtrage apparaît alors durant la détection de l'impulsion térahertz d'où la nécessité d'ajouter un terme en ω dans l'espace des fréquences. Dans l'espace du temps, l'équivalent est une différentiation.

1.5.2 Pompe-sonde

À la section 1.3, nous avons décrit la technique pompe-sonde. Dans cette sous-section, nous verrons comment extraire le temps de relaxation τ_r à partir des données. De façon générale, pour la couche mince de YBCO et la région endommagée du GaAs tous les deux

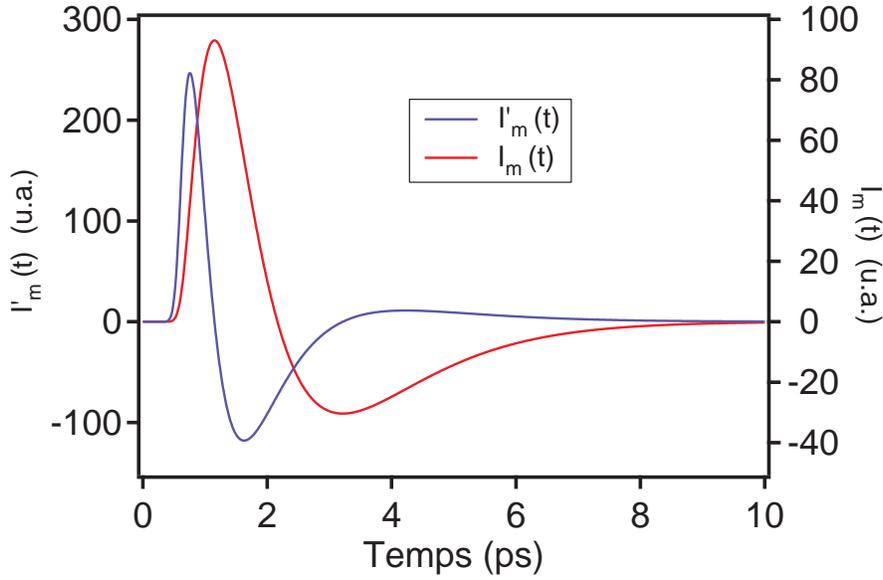


FIGURE 1.7 – Effet d'un filtrage basse fréquence $I_m(\omega)$ dans l'espace du temps. C'est l'équivalent d'effectuer une dérivée de $I_m(t)$.

d'épaisseur \mathbf{d} , nous pouvons décrire la variation de transmission du champ électrique de la sonde $\Delta E_m(\omega, \tau_d)$ dans l'espace des fréquences par la relation suivante ⁷ :

$$\Delta E_m(\omega, \tau_d) = E_m(\omega, \tau_d) - E_m(\omega) \quad (1.80)$$

$$\Delta E_m(\omega, \tau_d) = A(\omega) \left(\frac{1}{n_s + 1 + \sigma(\omega, \tau_d) d Z_o} - \frac{1}{n_s + 1 + \sigma(\omega) d Z_o} \right) \quad (1.81)$$

où $A(\omega)$ est le facteur de proportionnalité qui dépend de l'indice du substrat n_s , de l'amplitude de la sonde avant la transmission $E_o(\omega)$ et de la réponse $R(\omega)$ du détecteur. À l'équilibre ou à faible perturbation, l'amplitude de transmission de YBCO et celle du GaAs :H+ sont très différentes. Dans le cas de YBCO, nous pourrions faire l'approximation que $(n_s + 1) \ll (\sigma(\omega) d Z_o)$ ou $(\sigma(\omega, \tau_d) d Z_o)$, tandis que ce sera l'inverse pour le GaAs.

Nous utilisons la description de la conductivité à deux fluides perturbée $\sigma_{2f}(\omega, \tau_d)$ de l'équation 1.68 pour décrire $\Delta E_m(\omega, \tau_d)$

$$\Delta E_m(\omega, \tau_d) \approx A'(\omega) \left(\frac{1}{\sigma_{2f}(\omega, \tau_d)} - \frac{1}{\sigma_{2f}(\omega)} \right) \quad (1.82)$$

⁷Nous rappelons le résultat de l'équation 1.59.

Nous avons absorbé dZ_o dans l'amplitude $A'(\omega)$. Si la perturbation est faible et que la conductivité de la partie supraconductrice domine (**limite basse température**⁸), nous pouvons réécrire $\Delta E_m(\omega, \tau_d)$ à partir des définitions aux équations 1.6, 1.22 et 1.68

$$\Delta E_m(\omega, \tau_d) \approx A'(\omega) \left(\frac{\omega m^* \Delta N_s(\tau_d)}{-ie^2 N_s^2} \right) \quad (1.83)$$

$$\Delta E_m(\omega, \tau_d) \approx A'(\omega) \left(\frac{\omega m^* \Delta N_n(0) (e^{-\tau_d/\tau_r} - e^{-\tau_d/\tau_c})}{-ie^2 N_s^2} \right) \quad (1.84)$$

Et puisque nous mesurons la grandeur de $\Delta E_m(\omega, \tau_d)$, il faut prendre la norme de l'équation 1.84

$$|\Delta E_m(\omega, \tau_d)| \approx A'(\omega) \left(\frac{\omega m^* \Delta N_n(0) (e^{-\tau_d/\tau_r} - e^{-\tau_d/\tau_c})}{e^2 N_s^2} \right) \quad (1.85)$$

La technique pompe-sonde, nous permet de mesurer ce terme pour une fréquence donnée. Il suffit d'utiliser le mode 2D⁹ pour extraire l'amplitude de transmission en fonction du retard τ_d pour une fréquence ω . Nous expliquerons au chapitre expérimental comment y arriver. Le mode 2D permet de vérifier si τ_r dépend de l'énergie des photons de la sonde ou de la fréquence ω . Si les cinétiques ne dépendent pas de ω , le mode 1D peut être utilisé. Le mode 1D permet un plus grand moyennage des données pour un même temps d'acquisition, ce qui est un avantage pratique intéressant par rapport au mode 2D. Le mode 1D consiste à mesurer le changement de l'amplitude de transmission directement dans l'espace du temps, c'est-à-dire la TF de l'équation 1.84

$$\Delta E_m(t, \tau_d) \approx A''(t) \left(\frac{m^* \Delta N_n(0) (e^{-\tau_d/\tau_r} - e^{-\tau_d/\tau_c})}{e^2 N_s^2} \right) \quad (1.86)$$

Nous avons absorbé $-\omega/i$ avant la TF dans le coefficient $A''(t)$ pour faciliter la discussion. À l'équation 1.86, le préfacteur $A''(t)$ n'est pas une fonction de la perturbation laser (ne contient aucun terme en τ_d). Dans ce cas, la mesure 1D permettra d'extraire τ_r en utilisant une exponentielle décroissante comme fonction de lissage. Si $\Delta E_m(t, \tau_d)$ n'est pas nulle après au moins 3 fois τ_r , alors deux possibilités peuvent être envisagées :

⁸La limite haute température permet d'observer que le pompe-sonde sera proportionnel à $e^{-\tau_d/\tau_r}$ même si la partie normale domine.

⁹Voir la fin de la section 2.2.2 pour plus de détails.

1. Des porteurs encore libres possèdent un temps de relaxation τ_{r2} beaucoup plus long que τ_r ou
2. la température du matériau a augmenté et par conséquent, la conductivité à l'équilibre n'est plus la même.

Dans ce cas, nous parlons d'un long temps ou d'un plateau. Nous utiliserons une fonction de type exponentielle décroissante en première approximation avec un temps de relaxation τ_{r2} sans connaître l'origine de celui-ci. Une analyse du comportement de τ_{r2} et de l'amplitude de l'exponentielle pourra nous donner des indices sur l'origine du long temps observé. L'utilisation d'une fonction bi-exponentielle pour décrire la plage de temps en mode 1D ou 2D est essentielle pour ne pas induire d'erreur sur l'évaluation de τ_r .

Une analyse similaire à YBCO pour déterminer $\Delta E_m(t, \tau_d)$ du GaAs :H+, mais en utilisant $(n_s + 1) \gg (\sigma(\omega) d Z_o)$ ou $(\sigma(\omega, \tau_d) d Z_o)$, nous amène à trouver une solution semblable : un lissage avec une exponentielle décroissante en mode 1D ou 2D permet d'obtenir directement τ_r .

La fonction que nous utiliserons pour lisser et extraire τ_r et τ_{r2} est une fonction bi-exponentielle F_{2E} :

$$F_{2E} = \text{Erfc} \left(\frac{-t}{\tau_l} \right) (A_1 e^{-\frac{t}{\tau_r}} + A_2 e^{-\frac{t}{\tau_{r2}}}) \quad (1.87)$$

La fonction erreur complémentaire $\text{Erfc}(-t/\tau_l)$ permet d'estimer le temps de montée τ_c de la densité de porteurs à partir de τ_l . N'oublions pas que la montée contient la convolution avec le laser $L(t)$ (voir éq. 1.4).

1.6 Effet de la répétition de la mesure

Lors de la présentation des mesures du courant généré à l'antenne de détection par le champ électrique térahertz décrit à l'équation 1.48, nous n'avons pas soulevé le fait qu'il faut en pratique moyenner le signal sur des milliers d'impulsions. En effet, le courant détecté est si faible que nous devons utiliser un amplificateur synchrone pour le mesurer. Après excitation par une impulsion laser dans le visible, le matériau d'une couche mince doit retourner à son équilibre thermique en un temps τ_{es} qui caractérise le transfert d'énergie vers le substrat. À noter que τ_{es} pourrait être associé au long temps de relaxation mesuré (τ_{r2}) en pompe-sonde (voir chapitre 4). Si une autre impulsion perturbe la couche avant que la chaleur soit complètement évacuée de la couche mince (avant τ_{es}),

les caractéristiques mesurées seront propres au temps sur lequel nous moyennons. Il sera important d'éviter l'échauffement de l'échantillon lors d'une mesure ; nous essaierons autant que possible de s'éloigner d'un tel régime, mais nous mettrons en évidence de tels effets qui suggèrent sa présence au chapitre 3 en présentant les résultats sur les antennes térahertz.

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté le formalisme pour décrire les antennes térahertz insérées dans un spectromètre dans le domaine temporel, ainsi que le formalisme de la technique pompe-visible et sonde-térahertz. Dans l'approximation d'une faible perturbation, nous avons montré que nous pouvons extraire le temps de relaxation τ_r à partir des deux techniques. De plus, l'autre condition est que τ_r ne doit pas être une fonction de ω lors de l'interaction avec la sonde térahertz. Il est primordial de minimiser la puissance de la pompe d'excitation lors de la mesure de τ_r pour les deux techniques si nous voulons que les deux mesures concordent. Des effets d'accumulation à cause de la présence de porteurs excités avec un temps de relaxation plus lent τ_{r2} ou de l'augmentation de la température du matériau pendant le moyennage pourraient nuire à l'évaluation adéquate de τ_r . Nous verrons au chapitre expérimental qui suit que toutes les précautions ont été prises pour s'assurer de bien contrôler ces particularités.

Chapitre 2

Méthode expérimentale

Ce chapitre présente la configuration des deux expériences centrales de cette thèse, i.e. la génération d'impulsion térahertz par des antennes de $YBa_2Cu_3O_7$ (YBCO) et la mesure directe de l'évolution des porteurs par la technique pompe-visible et sonde-térahertz sur les mêmes échantillons. Dans la section sur les antennes, nous décrivons les étapes de préparation des antennes supraconductrices à base de YBCO et des antennes semiconductrices à base de GaAs bombardé aux protons qui est le matériau utilisé dans ce travail pour notre détecteur calibré. Avant de caractériser une antenne supraconductrice, la qualité structurale des couches minces de YBCO doit être vérifiée. Pour ce faire, nous utilisons les rayons-X, la susceptibilité CA, la résistivité en courant continu (CC) et évaluons la densité de courant critique J_c . Nous présentons ensuite le principe du montage de spectroscopie dans le domaine temporel. C'est à partir de celui-ci que les antennes sont caractérisées. À cause de la particularité de détection du montage, nous avons mis en place une technique pour évaluer l'évolution de la température locale de l'antenne. Toujours dans cette section, nous décrivons cette technique qui consiste à suivre la résistivité de l'antenne dans le temps lors de l'éclairage de celle-ci avec le faisceau laser. Cette section se termine par la présentation des corrections des données et de la méthode de lissage qui permet d'extraire les temps de relaxation.

À la deuxième section qui traite de la technique pompe-visible et sonde-térahertz, nous présentons les différents échantillons étudiés. Des couches minces de YBCO de différentes épaisseurs et sur différents substrats y sont décrites. Ces différents échantillons de YBCO permettront de vérifier si les caractéristiques temporelles demeurent les mêmes, et en particulier le temps de relaxation τ_r des porteurs excités vers l'équilibre. De plus, un échantillon semiconducteur à base de GaAs implanté aux protons est décrit. Cet

échantillon permet de calibrer le montage des antennes et sert d'échantillon témoin lors de la comparaison des temps de relaxation obtenus avec les deux techniques. Par la suite, le schéma du montage pompe-sonde est présenté. Ce montage est très semblable au montage des antennes. Finalement, nous décrivons la méthode d'extraction des temps caractéristiques à partir des données.

2.1 Antennes térahertz

2.1.1 Préparation des échantillons

Supraconducteurs

Les premières antennes térahertz supraconductrices à base d'une couche mince de $YBa_2Cu_3O_7$ (YBCO) ont été fabriquées sur des substrats de MgO [3]. MgO est un substrat intéressant à cause de son faible indice de réfraction ($n_s = 3.1$) et d'une faible absorption térahertz [39]. Toutefois, la maille cristalline de YBCO a un désaccord approchant 5 % avec la maille de MgO. De plus, la surface de MgO se dégrade avec l'humidité ambiante [40]. Nos études préliminaires nous ont amené à envisager la croissance de YBCO sur des substrats de $LaAlO_3$ (LAO) et de saphir Al_2O_3 qui permettent une meilleure reproductibilité lors de la croissance des couches minces. Pour la fabrication de l'antenne supraconductrice avec YBCO, l'axe C est favorisé suivant la normale à la surface du substrat (fig. 2.1). Cette orientation de l'axe C permet d'obtenir une densité de courant critique plus élevée que les autres orientations possibles.

Nous énumérons brièvement les différentes étapes de fabrication, de la croissance de la couche mince de YBCO jusqu'à la définition de la géométrie de l'antenne avec la technique de photolithographie. Plus de détails sur la technique d'ablation laser et la fabrication sont donnés dans le mémoire de maîtrise de S. Savard [41]. D'abord, rappelons la technique d'ablation laser telle qu'illustrée à la figure 2.2. Un laser *Excimer* à 248 nm émet des impulsions d'une durée de 20 ns, et à un taux de répétition pouvant être varié de 1 à 50 Hz. Le faisceau est focalisé sur une cible polycristalline de YBCO située dans une chambre à atmosphère d'oxygène contrôlée d'un diamètre de 46 cm. La pulvérisation de la cible éjecte des atomes vers le substrat de LAO ou de saphir. Pour que le supraconducteur croisse de façon épitaxiale et selon l'axe C, la pression d'oxygène dans la chambre et la température doivent être contrôlées. Notez que l'élément chauffant et le substrat ne sont pas en contact mécanique ; celui-ci est chauffé par rayonnement. Cette particularité de

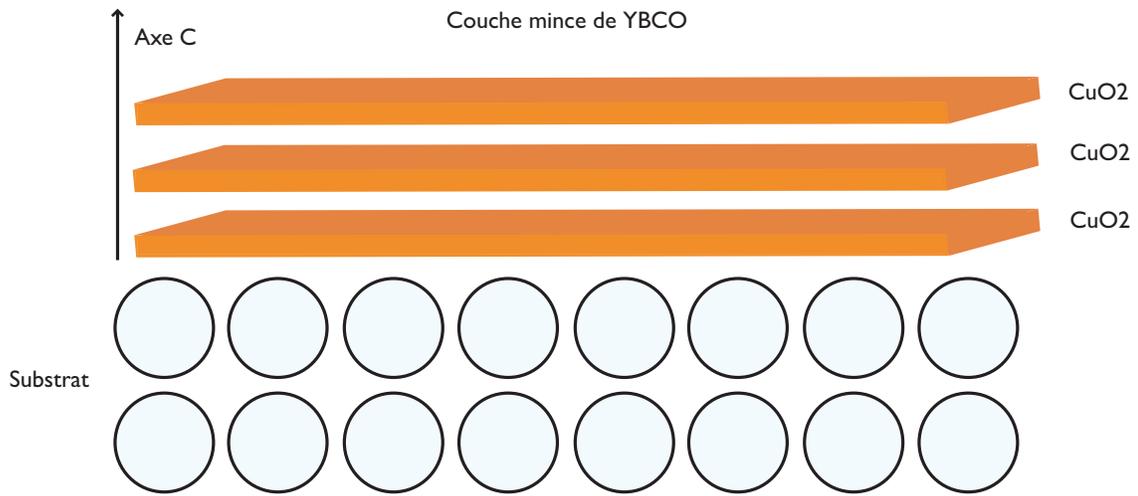


FIGURE 2.1 – Les plans de cuivre-oxygène confèrent une plus grande densité de courant critique pour le fonctionnement de l’antenne.

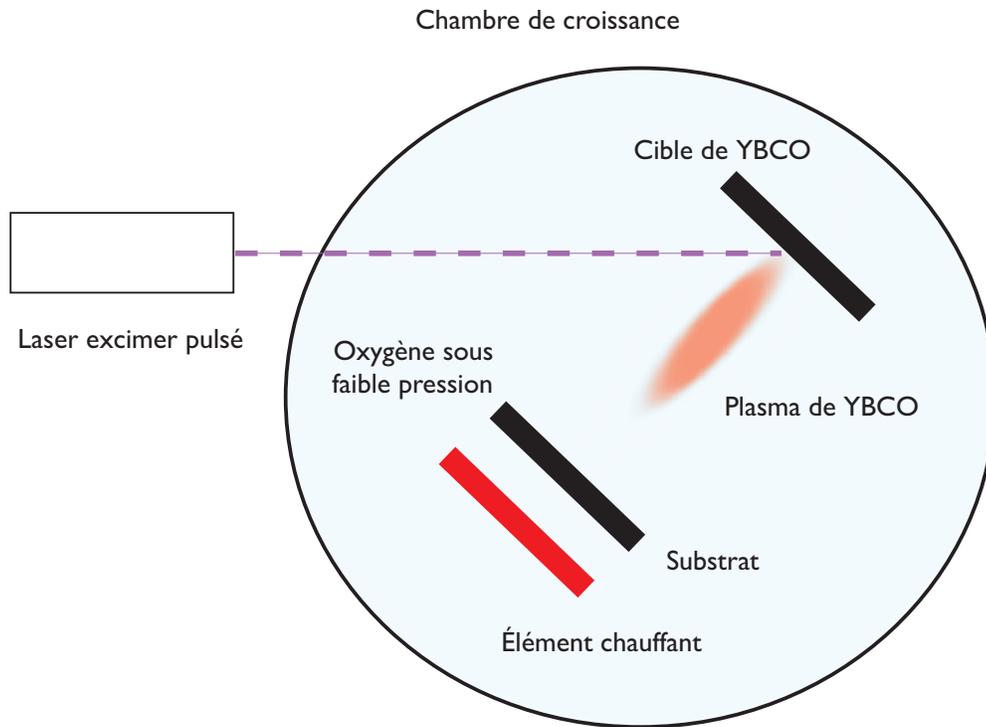


FIGURE 2.2 – Principe de fonctionnement de la technique de croissance d’ablation laser.

notre montage constitue un avantage, car elle permet l'obtention d'interfaces plus propres et exemptes de contaminations.

Les étapes de fabrication typiques pour obtenir les antennes sont les suivantes ;

1. Croissance : la température de l'élément chauffant est maintenue à $960\text{ }^{\circ}\text{C}$ pour les deux substrats. Nous utilisons le LAO (100) et le saphir *R-cut* pour favoriser la croissance selon l'axe C. Puisque le substrat et l'élément chauffant ne sont pas en contact direct, la température de croissance sur le substrat est autour de $850\text{ }^{\circ}\text{C}$. La pression d'oxygène est de 200 mTorr et le taux de répétition du laser est de 3 Hz. L'épaisseur des couches de YBCO est maintenue dans un intervalle de 30 à 100 nm, car, pour cette thèse, nous nous concentrerons sur les résultats de deux couches : une de 38 nm et l'autre de 60 nm. De plus, le substrat de saphir nécessite le dépôt d'une couche tampon avant la croissance de YBCO, car le substrat interagit chimiquement avec la couche mince supraconductrice. L'oxyde de cérium CeO_2 est déposé à une température de $900\text{ }^{\circ}\text{C}$ et à une pression de 300 mTorr d' O_2 . Le taux de répétition est de 10 Hz et l'épaisseur d'environ 60 nm.
2. Dépôt des contacts : Le dépôt de contacts Cr-Au est fait à partir d'un évaporateur à faisceau d'électrons. Chaque contact est formé de 5 nm de Cr suivi de 200 nm d'Au déposés sur la couche d'YBCO. Un masque mécanique avec des trous circulaires de $300\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre détermine la position des contacts.
3. Photolithographie : De la résine positive de type Shipley 1813 définit la région à graver avec une solution d'acide phosphorique H_3PO_4 . À noter que les contacts Cr-Au sont utilisés aussi pour aligner le masque lors du développement de la résine. L'échantillon est ensuite nettoyé avec du méthanol et de l'acétone.
4. Soudure des fils : Des fils d'or de $30\text{ }\mu\text{m}$ (1 millième de pouce) sont soudés par ultrason (Wire-bonding) sur les contacts Cr-Au.

Le résultat final après les étapes de fabrication d'une antenne de géométrie de type dipolaire est présenté à la figure 2.3. Les contacts Cr-Au sont situés sur les électrodes de l'antenne qui ont une largeur de $200\text{ }\mu\text{m}$ et une longueur de 2 mm. Les électrodes sont reliées par un micro-pont de $30\text{ }\mu\text{m}$ de large et de $400\text{ }\mu\text{m}$ de long. Le micro-pont est la région qui sera éclairée par le faisceau laser d'un diamètre d'environ $50\text{ }\mu\text{m}$. Le courant continu injecté par les contacts Cr-Au et circulant dans le micro-pont sera éventuellement perturbé par le faisceau laser (voir sec. 2.1.3).

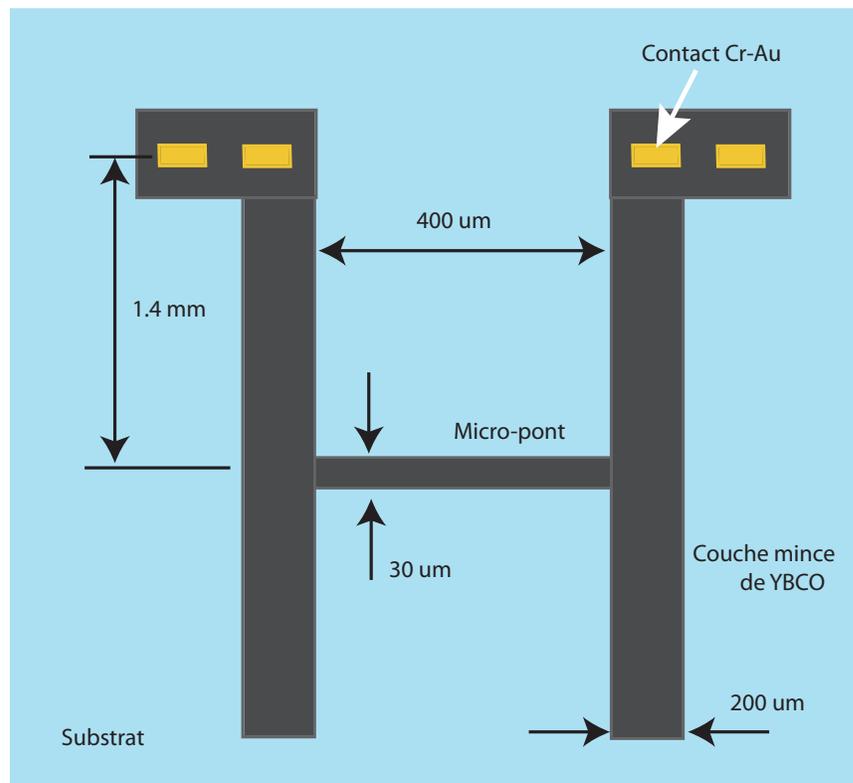


FIGURE 2.3 – Antenne térahertz supraconductrice de type dipolaire conçue à Sherbrooke. Le micro-pont est la région éclairée par un faisceau laser. Les deux contacts Cr-Au sur chaque électrode permet d'utiliser la technique à quatre pointes et ainsi mesurer la différence de potentiel aux bornes du micro-pont.

Semiconducteurs

Dans ce travail, les antennes térahertz semiconductrices de détection et d'émission utilisées pour la calibration du montage (sec. 2.1.3) sont à base de GaAs implanté aux protons H+ multi-énergies (GaAs : H+). Les antennes d'émission et de détection ont été fabriquées à partir du même échantillon ¹ à l'Université de Sherbrooke. Les étapes importantes de la fabrication de ces antennes sont les suivantes ² :

1. Implantation de H+ multi-énergies à partir d'un accélérateur d'ions : une dose de $3.5 * 10^{15} \text{ ions/cm}^2$ à 150 keV, une dose de $1 * 10^{15} \text{ ions/cm}^2$ à 100 keV et une dose de $5 * 10^{15} \text{ ions/cm}^2$ à 50 keV. La profondeur des défauts est estimée à $1 \mu\text{m}$ à partir du logiciel SRIM [19].
2. Recuit thermique de 20 minutes à 480-500 °C suivi d'une descente lente en température.
3. La technique de photolithographie est utilisée pour définir la géométrie de type dipolaire des électrodes métalliques sur le substrat de GaAs implanté. La distance entre les électrodes de l'antenne d'émission est d'environ $120 \mu\text{m}$ et $35 \mu\text{m}$ pour l'antenne de détection.
4. Un évaporateur est utilisé pour déposer successivement les couches suivantes : 10.3 nm de Ni, 15.1 nm de Ge et 70.1 nm d'Au.
5. Dans un four RTA (*Rapid Thermal Annealing*), les différentes couches vont former un alliage. La température est portée très rapidement à 410 °C pendant 30 s. L'alliage permet d'obtenir des contacts de type ohmique avec la région implantée.
6. Des fils d'Au de $30 \mu\text{m}$ de diamètre sont soudés sur les électrodes de l'antenne.

À cause des nombreuses étapes lors de la fabrication de l'antenne, il arrive que les antennes ne soient pas fonctionnelles. En temps normal pour les antennes les plus performantes pour la détection, la résistance entre les électrodes est infinie dans l'obscurité et approche quelques $M\Omega$ sous une lampe.

2.1.2 Caractérisation structurale

Les supraconducteurs à haute température critique sont fortement anisotropes. De plus, ils ont tendance à former des microstructures dont les jonctions ont des propriétés

¹Le numéro d'identification de l'échantillon est C367CA.

²Pour plus de détails, se référer au mémoire de maîtrise de Y.Salissou [42].

particulières différentes du matériau de base. L'augmentation de la qualité structurale pour l'obtention de propriétés intrinsèques est la clé du succès dans ces matériaux complexes [43]. Il faut systématiquement passer par différentes techniques de caractérisation pour s'assurer de l'ordre structural. Les techniques utilisées pour l'optimisation et le suivi des propriétés physiques sont la diffraction des rayons X, la susceptibilité magnétique CA, la résistivité CC et les courbes V-I pour la détermination du courant critique.

Rayons-X

Un diffractomètre Phillips avec une cible de cuivre est utilisé. La raie K_{α} = 1.54 Å est sélectionnée par un monochromateur. En configuration $\Theta - 2\Theta$ (dite des poudres), la diffraction des rayons X sur la couche mince d'YBCO permet de vérifier l'orientation dominante perpendiculaire à la surface du substrat. Puisque YBCO est orthorhombique et que nous favorisons la croissance selon l'axe C, seulement les pics de la famille de plans (001) doivent être présents sur le spectre de diffraction ainsi que ceux du substrat et éventuellement de la couche tampon.

Susceptibilité CA

La susceptibilité CA de la couche mince de YBCO est mesurée à l'aide du *Physical Properties Measurement System* (PPMS) de *Quantum Design*. Un échantillon d'environ 1 mm² est inséré dans le magnétomètre. Les parties imaginaire et réelle de la susceptibilité magnétique CA sont mesurées en fonction de la température. L'échantillon est refroidi en dessous de la température critique T_c avant qu'un champ magnétique oscillant de 0.02 Oe à 10 kHz ne soit appliqué. La largeur du pic observé dans la partie imaginaire de la susceptibilité qui représente les pertes dans le supraconducteur permet d'évaluer l'uniformité de la phase supraconductrice sur tout le volume de la couche mince et permet de déterminer une T_c moyenne.

Résistivité CC et courant critique

Comme la susceptibilité magnétique, la résistivité CC permet de déterminer la température de transition. Cette dernière est aussi mesurée avec le PPMS pour s'assurer de la calibration de la température de l'antenne une fois dans le cryostat (sec. 2.1.3). Un faible courant constant d'environ 1 μA circule dans un micro-pont de 30 μm et la chute de potentiel à ses bornes est mesurée avec une technique quatre pointes présentée à la

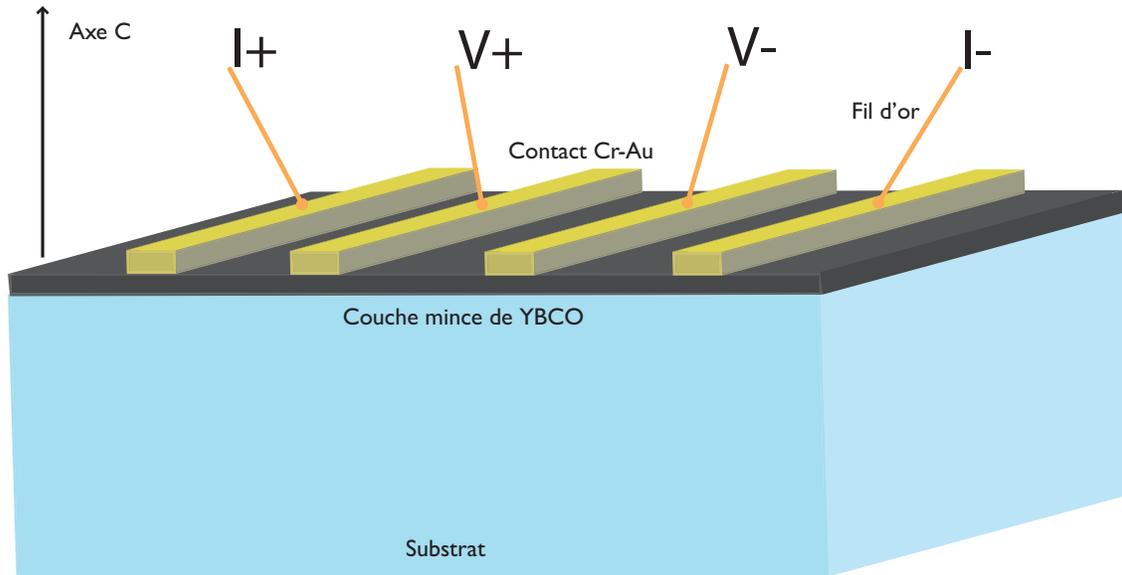


FIGURE 2.4 – Schéma de la technique à quatre points. La technique permet de soustraire les résistances de contacts lors de mesures électriques.

figure 2.4. Le courant est injecté par les contacts Cr-Au aux extrémités de l'échantillon et est maintenu constant en fonction de la température. Un nanovoltmètre branché sur les contacts près du centre mesure la chute de potentiel. Cette technique permet de se soustraire des résistances de contacts. Aussi, la configuration quatre points permet la mesure de la densité de courant critique. Deux raisons motivent la mesure de la densité de courant critique J_c de la couche mince du supraconducteur. La première raison est la vérification de la qualité de la couche mince. Les jonctions de grain de la couche peuvent affecter le transport du courant. Pour YBCO, une densité de courant critique (J_c) de 10^6 A/cm² est ciblée à 77 K (selon la T_c) et de 10^7 A/cm² à 4 K. La deuxième raison est de relier le comportement de l'antenne à la densité de courant critique puisque l'émission de l'antenne dépend de la grandeur de la densité de courant y circulant.

Pour cette mesure de J_c , à une température fixe, un courant continu est graduellement augmenté entre 0 et 100 mA dans un micro-pont de YBCO de 30 μ m. La différence de potentiel est mesurée avec un nanovoltmètre. En dessous de T_c , la chute de potentiel est nulle pour un courant continu jusqu'à J_c . Au-delà de J_c , la différence de potentiel augmente rapidement avec J. Pour définir J_c , nous utilisons comme critère une chute de potentiel de 1 μ V.

2.1.3 Technique de spectroscopie dans le domaine temporel

Le spectromètre à transformée de Fourier dans le domaine térahertz est un appareil développé depuis une quinzaine d'années. C'est le développement de l'interrupteur de Auston qui a initié sa conception [1]. Dans ce travail, nous utilisons cette technique de spectroscopie pour caractériser le spectre d'émission des antennes térahertz supraconductrices. Cette sous-section est divisée en quatre parties. En première partie, le schéma du montage de spectroscopie est décrit. Par la suite, à la deuxième partie, le montage permettant le fonctionnement et le contrôle de l'antenne supraconductrice est présenté. Ce dernier fait partie intégrante du montage de spectroscopie. À la troisième partie, la méthode de calibration du détecteur est expliquée. Cette étape est nécessaire pour extraire le spectre de l'antenne d'émission en diminuant au maximum le nombre de paramètres libres pour le lissage des données. Finalement, à la dernière partie, nous présentons la méthode pour vérifier si les composants du montage de spectroscopie influencent le spectre térahertz.

Schéma du montage

Le schéma du montage de la spectroscopie dans le domaine temporel est illustré à la figure 2.5. Il est constitué d'un émetteur et d'un détecteur de radiation térahertz pulsée basés sur le principe du commutateur ultra-rapide de Auston. Des impulsions lasers issues d'une même source actionnent ces dispositifs. La source, un laser Ti :Saphir, émet des photons de 1.65 eV (750 nm) à un taux de répétition de 80 MHz. La largeur de ces impulsions est d'environ 100 femtosecondes. À la sortie du laser, le faisceau est séparé en deux branches à l'aide d'une lame séparatrice : l'une pour exciter l'antenne d'émission et l'autre pour exciter l'antenne de détection. L'impulsion au détecteur est nécessaire pour créer une porte d'intégration qui permet de résoudre temporellement le champ électrique térahertz. Donc, une ligne à retard permet l'ajustement du retard t_d entre l'arrivée des impulsions térahertz ($E_{THz}(t)$) et l'arrivée des impulsions laser $L(t)$ au détecteur. La convolution du signal térahertz avec la conductivité hors-équilibre au détecteur génère un courant $I_m(t_d)$ qui est récolté par un amplificateur de courant (éq. 1.75). En variant t_d , nous pouvons mesurer complètement l'impulsion térahertz provenant de l'émetteur, c'est l'équivalent de déplacer la porte d'intégration. Le spectre de l'antenne est obtenu en effectuant la TF de la trace temporelle ($I_m(t)$). D'une part, le faisceau laser est focalisé sur le détecteur à l'aide d'un objectif de microscope et, d'autre part, sur l'antenne émettrice

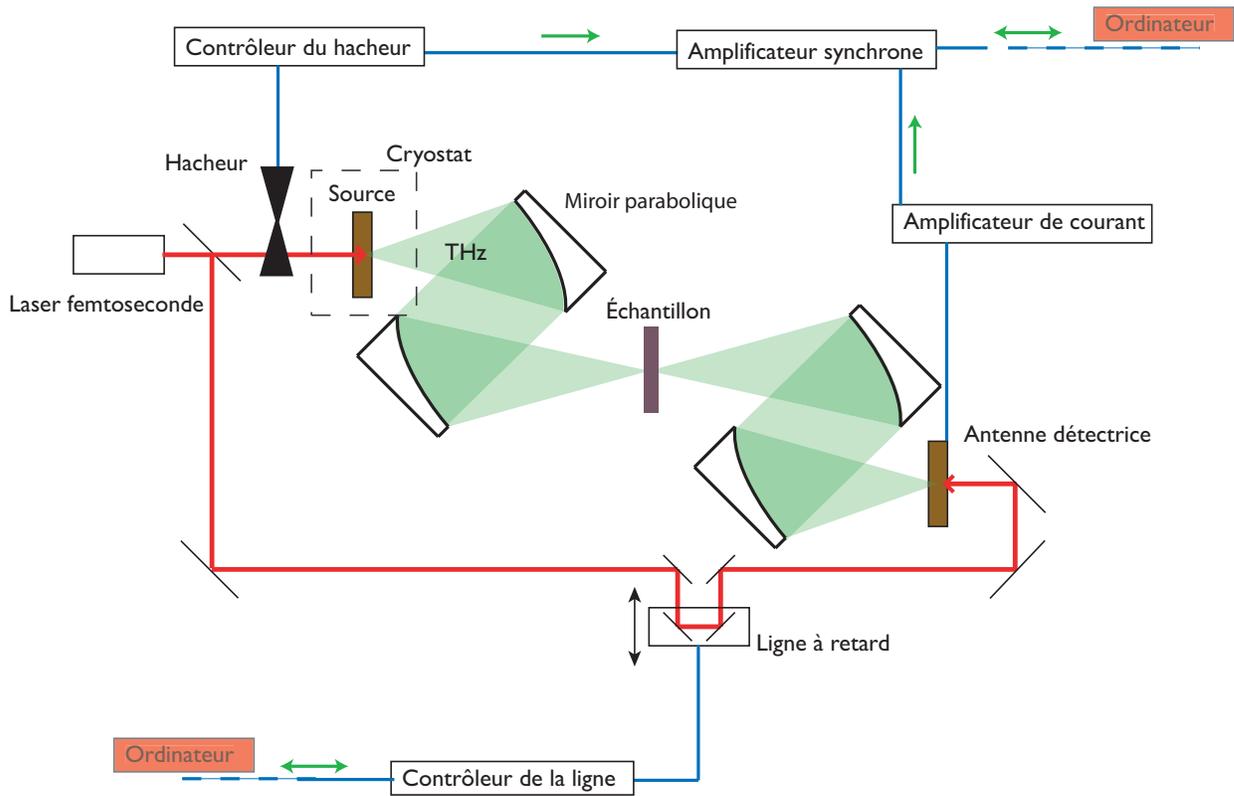


FIGURE 2.5 – Schéma du montage de spectroscopie dans le domaine temporel. L'antenne d'émission supraconductrice est désignée par le terme Source.

à l'aide d'une lentille de grand diamètre ³. Un étendeur de faisceau doit être utilisé pour l'antenne supraconductrice, car la lentille de focalisation doit être à l'extérieur du cryostat (environ 3 cm) et la taille du point focal sur l'antenne doit demeurer plus petite que 50 μm . Le cône d'émission de l'antenne est large, mais une lentille de silicium placée sur le revers du substrat permet de récolter un maximum du rayonnement émis. L'antenne avec la lentille de Si est placée près du foyer d'un miroir parabolique d'une distance focale de 12 cm. À la sortie du miroir parabolique, le faisceau térahertz est considéré parallèle à l'axe optique. Au miroir parabolique suivant, le faisceau est focalisé et un autre miroir parabolique récolte le faisceau térahertz. À partir du point focal, la suite du parcours jusqu'au détecteur est symétrique à l'émetteur. Finalement, l'impulsion térahertz est focalisée sur l'antenne de détection de GaAs bombardée aux protons multi-énergies. Elle aussi a une lentille de Si de 4 mm de diamètre pour améliorer l'efficacité de collection des rayons térahertz sur un détecteur de petite taille. À noter que pour la caractérisation des propriétés térahertz d'un matériau, il suffit de l'insérer dans le parcours du faisceau térahertz généralement au point focal entre les deux miroirs paraboliques.

Mentionnons qu'il n'y a pas de détecteur suffisamment rapide et sensible pour mesurer dans l'infrarouge lointain **une** impulsion électrique d'environ une picoseconde et d'une puissance aussi faible qu'un picojoule. En effet, le facteur de conversion d'énergie entre le faisceau laser d'excitation et l'impulsion térahertz est d'environ 1000 : 1 selon nos observations dans le cas d'antennes photoconductrices pour une impulsion laser de 5 nJ et d'un champ électrique appliqué de 5 kV/cm. La convolution du champ électrique térahertz avec les porteurs créés par l'impulsion laser au détecteur (fig. 2.5) génère un courant (I_m) de l'ordre de la dizaine de nanoampères, soit 0.2 femtoampère par impulsion. À titre de référence, un femtoampère correspond environ à 6000 électrons par seconde. De si petits courants nécessitent d'abord un amplificateur de courant, mais aussi une technique pour filtrer le bruit environnant.

Une détection synchrone est utilisée pour filtrer ce bruit. La technique consiste à hacher mécaniquement le faisceau laser juste avant la source d'émission térahertz à une fréquence de 3.2 kHz. Cette fréquence sert de référence pour l'amplificateur synchrone qui reçoit le signal de l'amplificateur de courant. Le signal que nous mesurons pour un retard t_d est le résultat de la somme ou moyenne de la convolution du signal térahertz et de la réponse du détecteur intégrée sur la période d'éclairage déterminée par le hacheur. Ceci permet une amplification majeure du signal. En revanche, l'intégration du signal

³Pour des raisons de clarté, nous n'avons pas indiqué ces détails sur le schéma.

pourrait être affectée par des effets d'accumulation de chaleur si le taux de répétition et la puissance du laser sont trop élevés résultant en une augmentation de la température moyenne de l'antenne. À partir de maintenant, nous désignons par $I_M(t)$ le courant moyen relié au champ térahertz détecté (sec. 1.6). La convolution du champ électrique de l'impulsion térahertz avec la réponse du détecteur est réalisé grâce au déplacement de la ligne à retard qui a une précision de déplacement de $1 \mu m$, ce qui équivaut à un retard de 6 fs. Afin de caractériser le spectre en fréquence de la source d'émission, il est nécessaire de connaître la réponse du détecteur. Nous reviendrons sur cet aspect à la partie traitant de la calibration du détecteur.

Antennes supraconductrices

Les figures 2.6 et 2.8 permettent d'expliquer plus facilement le principe de fonctionnement de l'antenne et le contrôle de la température. Pour être fonctionnelle, l'antenne térahertz supraconductrice doit être refroidie en dessous de sa température critique T_c . Une fois l'antenne refroidie, un courant continu pouvant aller jusqu'à 100 mA est appliqué par une source externe au cryostat. Puisque la résistance des contacts Cr-Au n'est pas négligeable (1 à 2 Ω), l'échantillon peut chauffer de quelques degrés selon le courant appliqué. Lorsque le faisceau laser femtoseconde passe par la fenêtre de quartz et perturbe le courant de l'antenne sur le micro-pont, celle-ci émet une impulsion térahertz qui passe par la fenêtre de Teflon de 6 mm d'épaisseur. L'énergie du faisceau laser est d'environ 30 mW. Son apport en énergie n'est pas négligeable ; la température de l'échantillon pourrait augmenter de 10 K par rapport au support de cuivre. Cependant, la sensibilité du thermomètre permet au contrôleur de température de concert avec l'élément chauffant d'ajuster finement la température de l'antenne pour la maintenir à la température désirée.

L'antenne térahertz supraconductrice est fixée dans une chambre sous vide illustrée à la figure 2.6. Un système de pompage permet d'établir un vide primaire de 10^{-3} Torr. À basse température, le vide atteint 10^{-4} Torr. À la figure 2.7, nous présentons un agrandissement du doigt froid et du porte-échantillon amovible de la figure 2.6. La pièce de cuivre fixe est incluse comme partie intégrante du doigt froid du cryostat. Cette pièce est préalablement fixée mécaniquement avec des vis sur la pièce du cryostat en acier inoxydable. Une pâte thermique assure un bon échange thermique entre les deux pièces. À l'intérieur de la pièce de cuivre, une résistance de 25 Ω collée avec de la pâte thermique agit comme élément chauffant. Son alimentation est reliée au contrôleur de température.

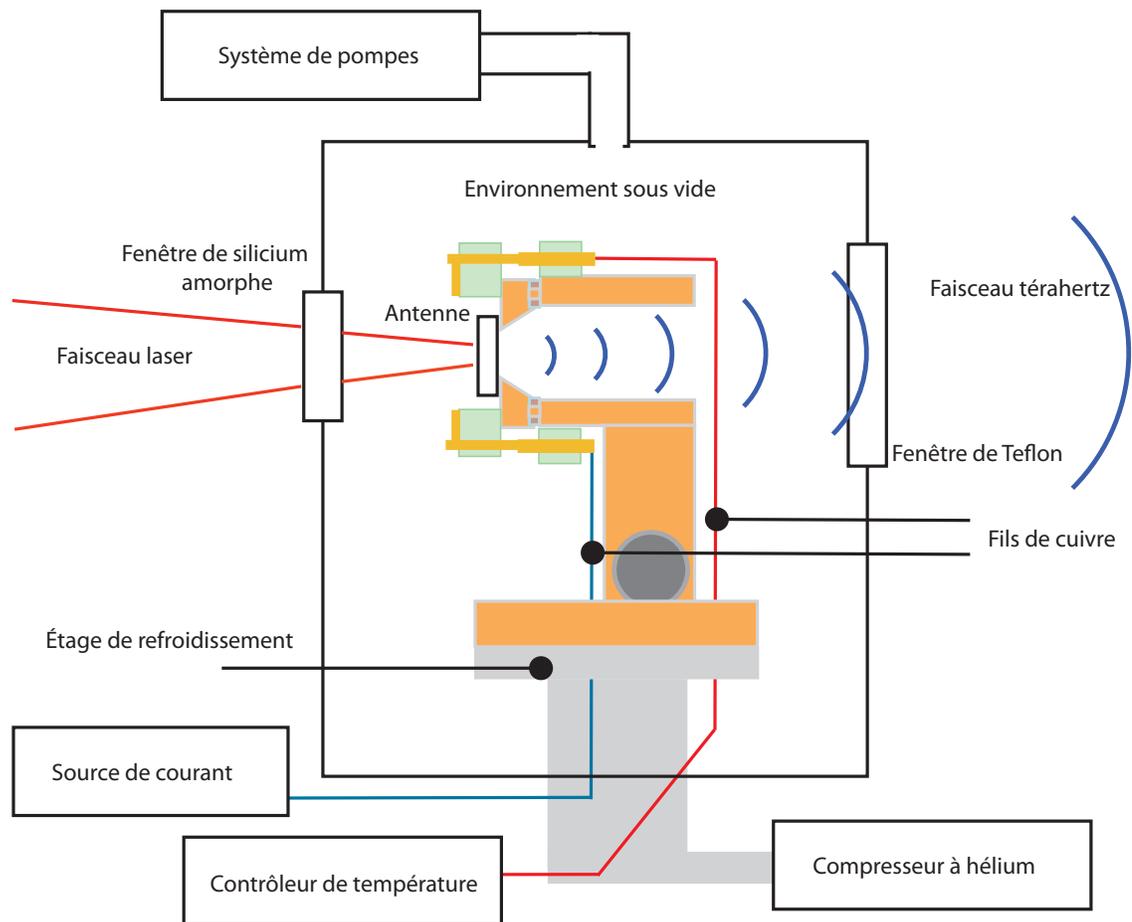


FIGURE 2.6 – Schéma du montage du cryostat contenant l'antenne térahertz supraconductrice.

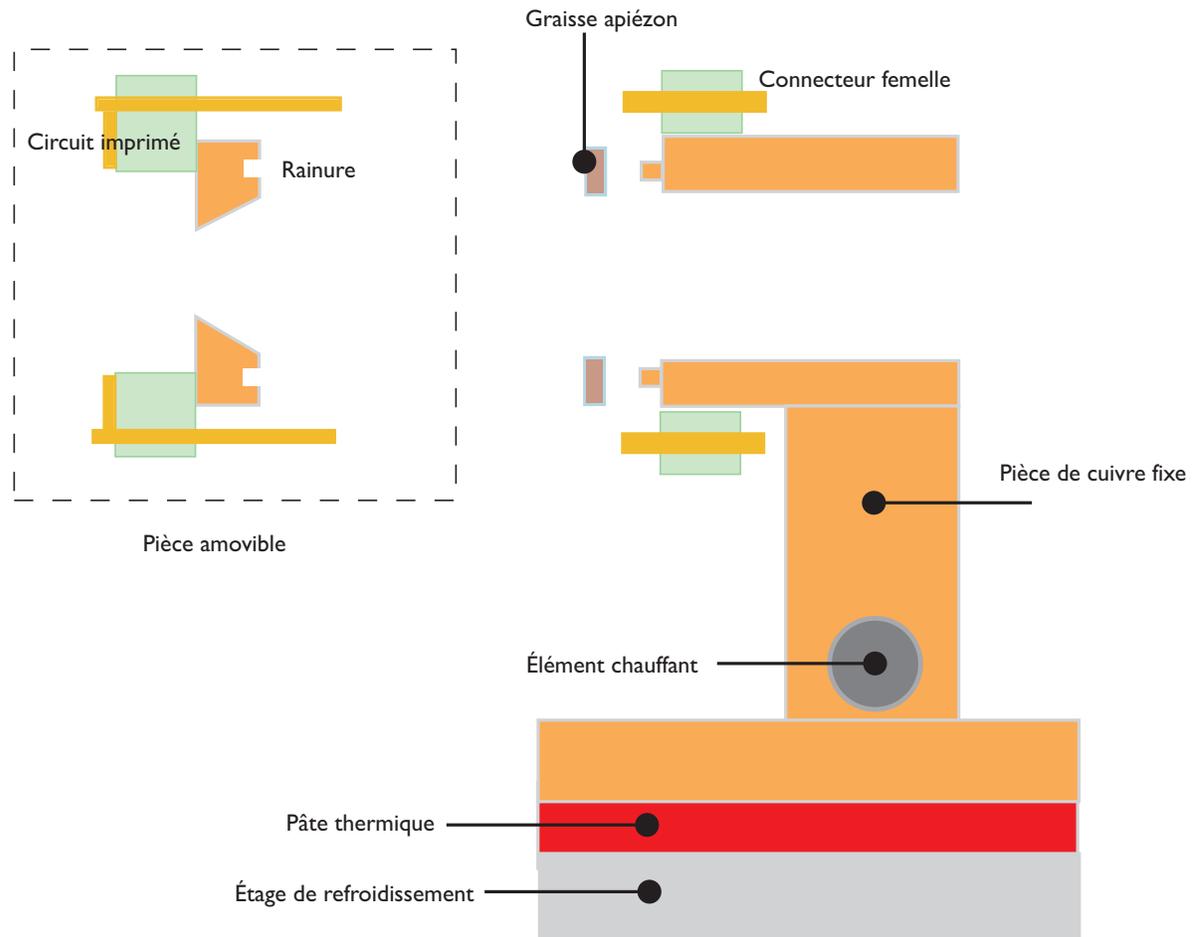


FIGURE 2.7 – Doigt froid du cryostat et porte-échantillon amovible.

À noter que la température de l'échantillon ne peut être abaissée en dessous de 20 K avec ce système cryogénique, ce qui limite notre étude à basse température.

Mentionnons que la mise au point de la position des antennes térahertz est critique et que l'ajustement doit être fait à quelques micromètres près. Une rainure circulaire dans la pièce amovible permet d'aligner celle-ci sur la pièce fixe avec la précision souhaitée. Cette conception facilite grandement l'étape de remplacement des dispositifs qui ne nécessite pas de réaligement excessif du montage. Par ailleurs, mentionnons que le lien électrique entre la partie fixe et amovible se fait via l'insertion des connecteurs mâles dans les connecteurs femelles. De plus, le lien thermique entre les deux pièces est renforcé en ajoutant de la graisse *Apiézon N* dans la rainure.

La figure 2.8 montre un nouvel agrandissement du montage pour lequel l'emphase est mise sur le porte-échantillon. La pièce la plus importante après l'antenne dont le substrat

est fixé avec de la graisse *Apiezon N* est la lentille de silicium de type hémisphérique de la compagnie *Tydex*. L'utilisation d'une lentille augmente d'un facteur 5 le champ électrique mesuré, ce qui représente une augmentation de la puissance de détection d'un facteur 25. La lentille utilisée dans ce travail est de 2 ou 4 mm de diamètre. La lentille est fixée sur le revers du substrat à l'aide d'une graisse à vide qui est à base de silicone. La couche de graisse entre le substrat et la lentille doit être la plus mince possible pour éviter la présence de réflexions dans la trace temporelle. Les réflexions de l'impulsion térahertz peuvent nuire à l'évaluation du spectre térahertz. Une fois fixée, la lentille doit être alignée. Étant donné que les substrats de LAO et de Al_2O_3 sont transparents, la lentille est centrée mécaniquement avec une petite tige sur le micro-pont (fig. 2.3). Cette opération est effectuée sous un binoculaire. L'autre pièce importante du montage à la figure 2.8 est le thermomètre de type Cernox de la compagnie *Lakeshore*. Ce dernier a préalablement été calibré avec le PPMS⁴ à une précision en dessous de 0.1 K autour du T_c de YBCO. Une fois ce thermomètre fixé au substrat avec de la graisse *Apiezon N*, ses petites dimensions d'environ 1 mm carré de surface par 300 μm d'épaisseur et sa proximité de l'antenne permettent suffisamment de sensibilité pour détecter l'effet de chauffage dû au faisceau laser. Éventuellement, le contrôleur de température pourra compenser pour ce chauffage supplémentaire. Les fils d'or des contacts Cr-Au de l'antenne et du thermomètre sont soudés avec de l'indium avec un fer à souder sur les contacts en cuivre du circuit imprimé.

Calibration

Le courant induit $I_m(t)$ au détecteur n'est pas directement relié au champ térahertz. $I_m(t)$ est la convolution du champ térahertz et de la réponse du détecteur (éq. 1.48). La réponse du détecteur dépend des mécanismes de relaxation des photoporteurs qui affectent la conductivité hors-équilibre $\sigma(t)$ (éq. 1.31). La dynamique des porteurs est modifiée par le procédé de fabrication utilisé pour nos antennes. Une procédure a été développée dans le cadre de cette thèse pour modéliser le spectre d'une trace térahertz ($I_m(\omega)$) dite de référence.

Afin de calibrer notre antenne de détection semiconductrice, nous avons utilisé le montage de spectroscopie dans le domaine temporel avec une antenne d'émission semiconductrice ayant la même $\sigma(t)$. En effet, les deux antennes ont été fabriquées sur le

⁴Acronyme pour *Physical Properties Measurement System* de la compagnie *Quantum Design*.

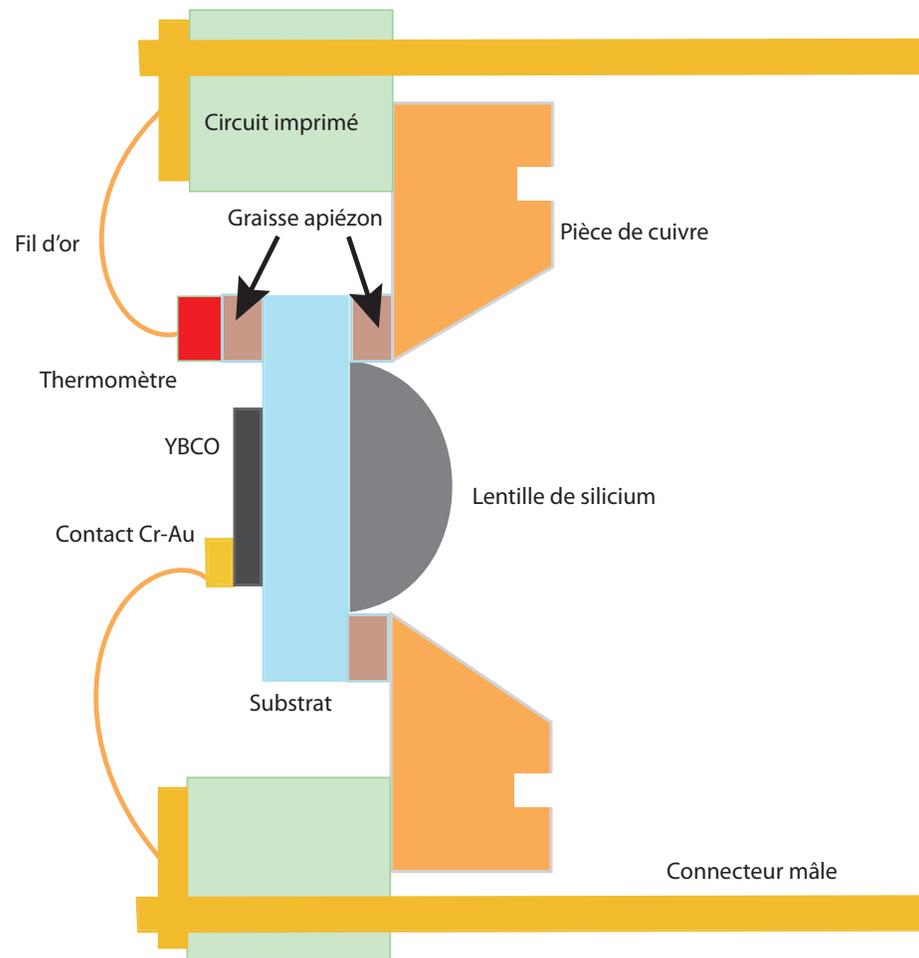


FIGURE 2.8 – Schéma du montage de l'antenne térahertz supraconductrice fixée sur un porte-échantillon. Le porte-échantillon est la pièce amovible qui se fixe sur le doigt froid.

même substrat de GaAs. Les étapes de fabrication sont les mêmes pour les deux antennes puisqu'elles ont été fabriquées en même temps. La longueur entre les électrodes est de $120 \mu\text{m}$ pour l'émetteur et de $30 \mu\text{m}$ pour le détecteur.

L'utilisation d'antennes dont le matériau qui les compose a la même histoire de fabrication permet de faire l'hypothèse que $\sigma(t)$ est la même pour les deux. Cette hypothèse permet de réduire de moitié les paramètres libres du modèle de lissage du spectre à l'équation 1.78. De surcroît, les propriétés dynamiques des porteurs dans le GaAs implanté aux protons dépendent de la puissance d'excitation laser. Mais, en dessous d'une puissance seuil, elles semblent constantes. On s'assure donc de minimiser la densité de puissance du faisceau laser sur les deux antennes jusqu'à ce que le spectre ne dépende plus de la puissance. Cette étape est nécessaire, car la mesure exacte de la densité d'énergie par unité de surface sur les antennes est difficile à évaluer. L'analyse du spectre mesuré pour différentes puissances d'excitation laser à l'émetteur et au détecteur permet de contourner ce problème.

Spectroscopie

La relation présentée à l'équation 1.75 ne tient pas compte d'une influence possible des composantes optiques du montage. Une dépendance importante de celles-ci pourrait influencer le spectre de l'impulsion térahertz. Pour s'en assurer, nous avons mesuré le spectre d'absorption des substrats des antennes (Al_2O_3 et LaAlO_3 pour l'antenne supraconductrice et d'une gaufre de GaAs non-bombardée pour l'antenne semiconductrice), d'une gaufre de silicium qui remplacera les lentilles de silicium et de la fenêtre de Teflon du cryostat.

La technique spectroscopique consiste à mesurer la trace térahertz $I_M(t)$ sans échantillon pour obtenir un spectre de référence $I_M(\omega)$. Par la suite, l'échantillon à étudier est inséré entre l'émetteur et le détecteur tel qu'illustré à la figure 2.5 et $I_M(t)$ est à nouveau mesurée. Dans le cadre de ce travail, nous comparons seulement l'amplitude du spectre avec et sans échantillon. Une déviation appréciable par rapport à l'amplitude du spectre de référence indiquera que nous devons inclure l'influence du ou des composantes dans le modèle du spectromètre.

À la figure 2.9, un exemple de trace térahertz avec échantillon est présenté. L'impulsion principale est suivie d'impulsions provenant de réflexions aux interfaces entre l'échantillon et l'air. Ces réflexions ne sont pas présentes dans la trace de référence. Pour ne pas créer d'artéfacts, seulement la première impulsion (la principale) doit être prise

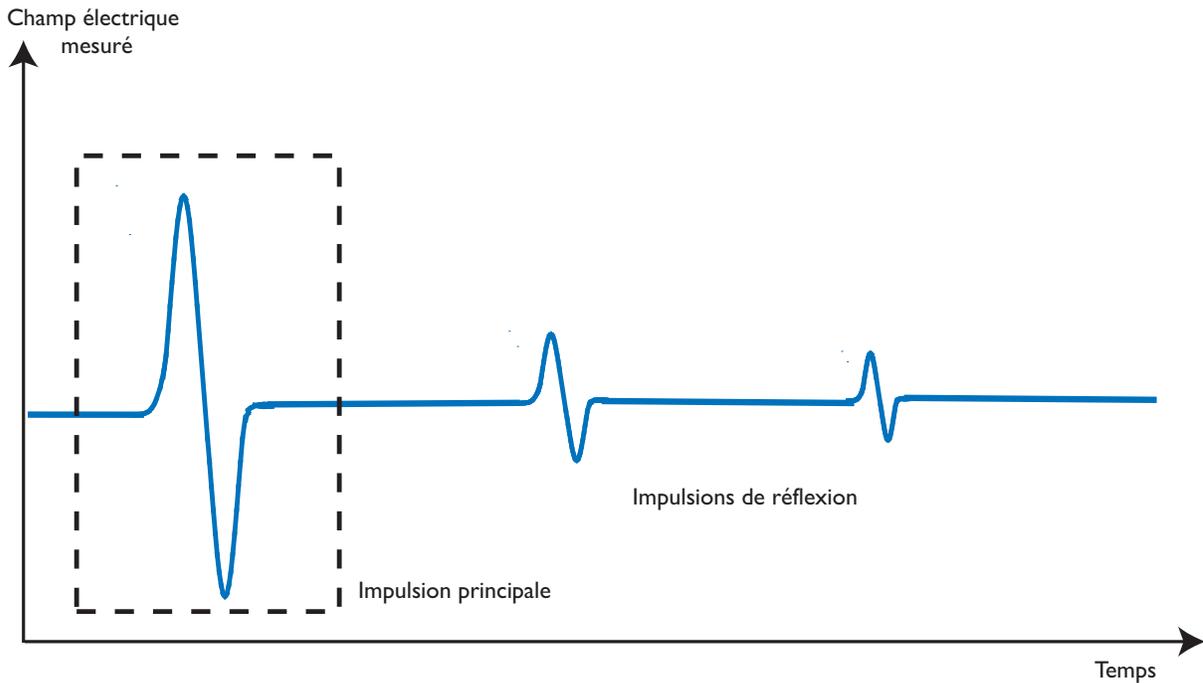


FIGURE 2.9 – Exemple d’une trace térahertz avec un échantillon. Les impulsions à grand temps proviennent des réflexions sur les faces de l’échantillon. Seule l’impulsion principale doit être considérée pour la TF.

en compte lors de l’analyse par transformée de Fourier.

2.1.4 Résistivité

Un des avantages d’utiliser un laser femtoseconde à haut taux de répétition, 80 MHz dans notre cas, est que la mesure est plus rapide. Plus il y a d’événements, plus la moyenne est fiable. Toutefois, chaque impulsion contient une énergie importante. La puissance moyenne des 80 millions d’impulsions de 100 fs est environ 30 mW. L’énergie moyenne par impulsion est de 0.38 nJ. Chaque impulsion apporte une quantité d’énergie à l’antenne qui se disperse après un laps de temps sous forme de chaleur. Le temps nécessaire à la diffusion de la chaleur par rapport à l’intervalle de temps entre deux impulsions⁵ est le paramètre à surveiller pour des lasers à haut taux de répétition. La chaleur doit être évacuée de la région active avant l’arrivée de l’impulsion suivante, car les propriétés de relaxation seront différentes après l’absorption de cette seconde impulsion. Par conséquent, des effets d’accumulation influenceront les propriétés observées en moyenne et pourront masquer les

⁵À un taux de répétition de 80 MHz, le temps entre deux impulsions est de 12.5 ns.

propriétés intrinsèques. Deux approches permettent de diminuer ce problème. La première consiste à diminuer au maximum l'intensité de chaque impulsion. Quant à la seconde, elle consiste à réduire la fréquence du laser. Les outils que nous avons ne permettent pas de réduire la fréquence du laser, il faut alors réduire la puissance du faisceau.

Dans cette sous-section, la résistivité en courant continu (CC) est utilisée pour vérifier s'il y a des problèmes de thermalisation entre le thermomètre et le substrat. Ensuite, un des aspects originaux de la thèse, soit la mesure de la résistivité synchronisée **avec la fréquence du hacheur** en présence d'impulsions laser est expliquée. La mesure permet d'évaluer l'influence d'effets d'accumulation de chaleur sur les propriétés de l'antenne.

Thermométrie

Une première façon de vérifier s'il y a des problèmes de thermométrie entre le thermomètre et l'antenne est de mesurer la résistance en CC de l'antenne supraconductrice dans le cryostat et de la comparer avec sa valeur obtenue avec un autre appareil de mesure, comme par exemple le PPMS ⁶. Une autre façon qui tient compte davantage de l'apport périodique en énergie du faisceau laser est d'évaluer l'effet de chauffage créé par le laser en se plaçant à la température où la variation de la résistance en CC est maximale, c'est-à-dire à la transition supraconductrice. Le contrôleur de température peut s'ajuster en partie à une variation de température en quelques millisecondes, mais le hacheur provoque des variations d'intensité laser sur une période beaucoup plus courte. Nous pouvons observer un tel effet en mesurant la réponse temporelle de la résistance de l'antenne.

Réponse temporelle

Le schéma du montage pour la mesure de la résistance en fonction du temps est illustré à la figure 2.10. La technique à quatre pointes est utilisée pour mesurer la différence de potentiel aux bornes du micro-pont de l'antenne. Une source de courant continu est branchée sur les contacts Cr-Au externes. Un oscilloscope synchronisé avec la fréquence du hacheur mesure la différence de potentiel. À cause de la présence du hacheur, l'antenne est éclairée pendant une demi-période. Dans l'autre demi-période, l'échantillon peut évacuer davantage la chaleur accumulée des impulsions lasers. Si l'antenne n'a pas le temps de revenir à son équilibre thermique avant la prochaine demi-période d'éclairage, alors la température

⁶*Physical Properties Measurement System de Quantum Design.*

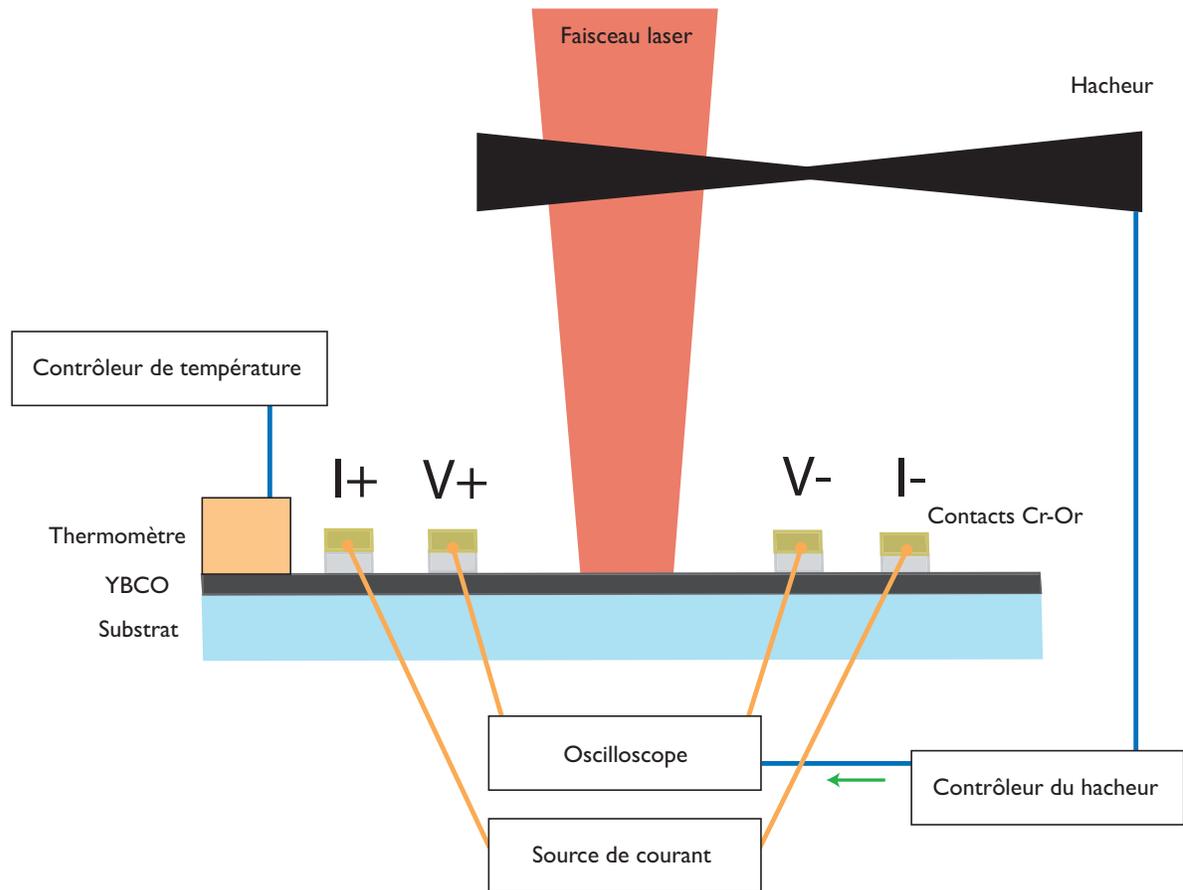


FIGURE 2.10 – Schéma du montage de la résistivité temporelle d'une antenne.

de l'antenne va augmenter. Grâce au thermomètre très sensible et au contrôleur de température, la température moyenne sera ramenée à la température d'équilibre avec des temps de réponse de l'ordre de la seconde. Toutefois, pendant l'éclairage, la température locale peut augmenter sans être nécessairement perçue par le thermomètre et les propriétés de l'antenne peuvent ainsi évoluer. Nous utiliserons donc cette technique pour vérifier les effets locaux des quelques 12 500 impulsions durant la période d'éclairage si la fréquence du hacheur est à 3.2 kHz.

2.1.5 Traitements des données

Une fois la trace térahertz mesurée $I_M(t)$, celle-ci doit être corrigée avant de la transformer numériquement avec la méthode de Fourier ($I_M(\omega)$). La transformation numérique est faite à l'aide du logiciel IGOR Pro. Par la suite, toujours avec IGOR Pro, la trans-

formée de Fourier de la trace $I_M(\omega)$ est lissée en utilisant le modèle de l'équation 1.78.

Nous présentons en premier lieu les corrections qui doivent être apportées avec la TF de $I_M(t)$. Ensuite, nous expliquons la méthode lors du lissage de $I_M(\omega)$ afin d'obtenir un temps de relaxation cohérent avec la réalité. Les nombreux degrés de liberté de l'équation 1.78 pourraient donner un lissage acceptable sans que les valeurs mesurées concordent avec celles rapportées dans la littérature.

Corrections

À la figure 2.11 les trois étapes nécessaires à la correction de $I_M(t)$ afin d'extraire les propriétés intrinsèques sont présentées. La courbe en bleu à l'étape 1 est un exemple de mesure de signal térahertz. La trace térahertz mesurée $I_M(t)$ contient une impulsion principale et deux autres impulsions moins intenses provenant de réflexions. Les réflexions peuvent provenir d'une lentille mal collée ou tout simplement de la réflexion normale à l'interface entre la lentille et l'air (ou le vide). En plus, nous avons ajouté une composante continue dans l'arrière-plan. Nous avons observé la présence de cette dernière dans nos expériences sans comprendre précisément la nature de cette composante. Une hypothèse serait que l'antenne puisse émettre un rayonnement non-cohérent comme par exemple des effets thermiques.

La première étape de correction consiste à soustraire cette composante continue en arrière-plan (*background*) à zéro. Ensuite, il faut éliminer les données à partir de la première réflexion. L'ajout des réflexions dans la transformée de Fourier (TF) modifie l'amplitude du spectre. Les réflexions produisent des raies d'absorption à des multiples entiers de la longueur du milieu comme s'il y avait un filtre sélectif. Enfin, la troisième étape consiste à prolonger par des valeurs nulles (*zero padding*) la trace térahertz afin d'obtenir une meilleure résolution lors de la TF.

Méthode de lissage

Dans la partie précédente, nous avons corrigé la trace térahertz pour garder uniquement l'impulsion principale. Cependant, cette trace est déformée à cause de la présence d'eau dans notre montage qui absorbe considérablement le champ électrique dans le régime térahertz. De plus, nous avons mentionné que le modèle à l'équation 1.78 est rarement adéquat dans la réalité. Les dimensions finies des électrodes de l'antenne de détection affectent la forme du champ électrique en filtrant les basses fréquences. Nous

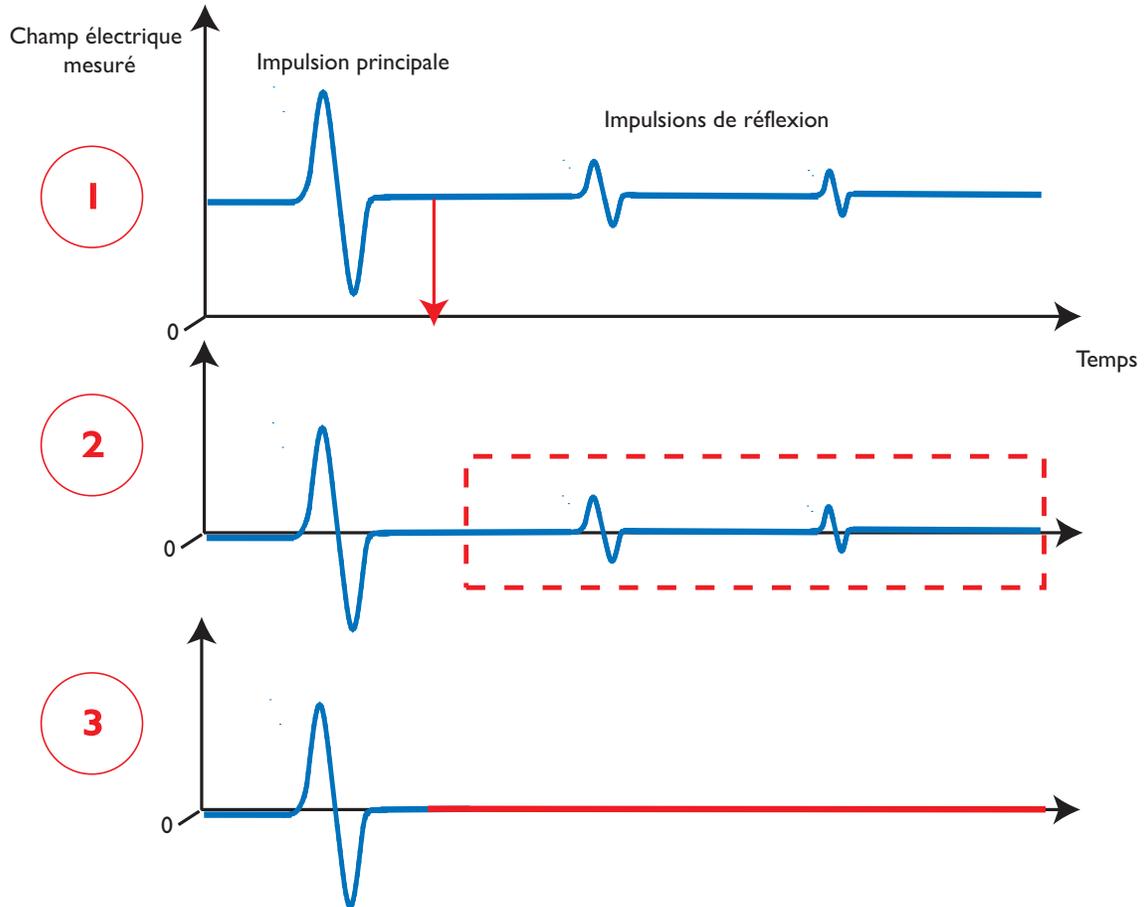


FIGURE 2.11 – Les trois étapes de corrections de la trace térahertz ($I_M(t)$). (1) Soustraction de la composante continue. (2) Rejet des impulsions des réflexions. (3) Ajout de points nuls (padding) pour augmenter la résolution de la TF.

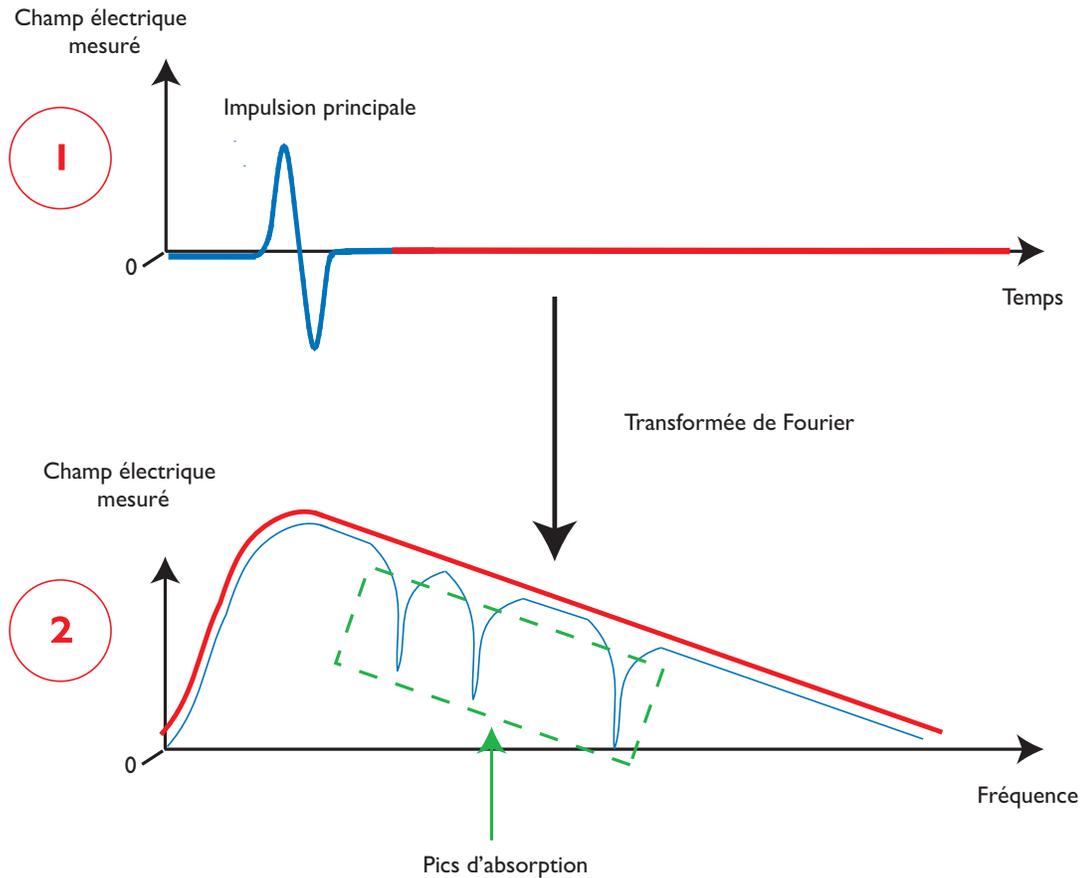


FIGURE 2.12 – (2) Enveloppe du spectre en fréquence à lisser après (1) la TF des données corrigées dans l’espace du temps.

devrons en tenir compte en multipliant l’équation 1.78 par ω .

À partir de la trace térahertz corrigée, nous effectuons une transformée de Fourier numérique qui permet d’obtenir le spectre en fréquence représenté par la courbe bleue à la figure 2.12. Des pics d’absorption reliés à la présence de vapeur d’eau dans le montage sont illustrés. La courbe en rouge illustre les données qui doivent être lissées. C’est une façon de se soustraire de l’influence de l’eau. Le modèle de $I_M(\omega)$ à l’équation 1.78 contient plusieurs variables. En calibrant le détecteur, nous pouvons fixer la moitié des paramètres libres de $I_M(\omega)$. Par conséquent, seulement deux paramètres demeurent libres pour lisser $I_M(\omega)$: le temps de relaxation τ_{rE} et le temps de montée de l’antenne d’émission supraconductrice τ_{cE} . Lors du lissage des spectres en fonction de la puissance ou de la température, seulement τ_{rE} est laissé libre. τ_{cE} est fixé à basse température et à basse intensité laser.

2.2 Pompe-visible et sonde-térahertz

La technique pompe-sonde est sans aucun doute un outil formidable pour suivre les processus de relaxation dans un matériau. Nous utilisons cette technique pour valider le modèle des antennes térahertz et pour mesurer les temps de relaxation de l'antenne supraconductrice. Toutefois, nous avons vu dans la théorie que l'extraction du temps de relaxation peut dépendre de plusieurs paramètres expérimentaux comme l'intensité du faisceau laser ou l'énergie de la pompe. À partir des limites que nous avons définies dans la théorie, le temps de relaxation extrait pour un même échantillon supraconducteur avec l'antenne supraconductrice devrait se rapprocher de celui extrait avec la technique pompe-sonde. C'est l'exercice auquel nous sommes confrontés afin de vérifier si le modèle utilisé pour décrire le spectromètre dans le domaine temporel et le modèle de l'antenne supraconductrice est complet et adéquat.

Dans cette section, nous décrivons d'abord les échantillons utilisés pour la caractérisation pompe-sonde. Par la suite, nous présentons le montage utilisé à Simon-Fraser University (SFU) dans le laboratoire du Pr. Steve Dodge. Jessie Petersen, étudiant au doctorat, et moi-même avons adapté le montage pour les mesures particulières à réaliser dans le cadre de ce projet. En trois semaines, les travaux de calibration, d'optimisation et les mesures ont été réalisés. À la suite de la description du montage, la procédure de calibration de la puissance est présentée. En fin de section, la méthode nécessaire au lissage des données pour l'extraction des temps de relaxation est expliquée.

2.2.1 Description des échantillons

Dans les sous-sections qui suivent, nous présentons le support à échantillon pour le micro-cryostat *Oxford* de la pompe-sonde, et les échantillons de même épaisseur sur substrats différents et de différentes épaisseurs sur des substrats identiques.

Semiconducteur

La caractérisation pompe-sonde de notre détecteur de GaAs bombardé aux protons se fait directement sur l'antenne une fois sa fabrication terminée (voir sec. 2.1.1). Nous avons souligné que les propriétés des antennes semiconductrices dépendaient des conditions de fabrication. Si la mesure du temps de relaxation avec la technique pompe-sonde est faite avant la fin de la fabrication, celle-ci pourrait évoluer avec les dernières étapes menant

à la définition des antennes (sec. 2.1.1). Nous contournons ce problème en mesurant les propriétés une fois l'antenne terminée. La présence des électrodes métalliques n'est pas un obstacle pour l'évaluation des caractéristiques pour deux raisons : la surface sondée où il n'y a pas d'électrodes métalliques est environ 300 fois plus grande que la surface couverte par les électrodes, et la sonde incidente sur les électrodes métalliques est davantage réfléchie que sur les autres régions. De plus, nous utilisons le signal transmis pour effectuer la mesure du temps de relaxation.

Supraconducteur

Les échantillons supraconducteurs sont fabriqués à partir de la technique d'ablation laser (voir sec : 2.1.1). Contrairement aux échantillons semiconducteurs, nous devons mesurer le temps de relaxation avant la définition de l'antenne d'émission par photolithographie, car nous voulons le même échantillon pour comparer le temps de relaxation obtenu avec les deux techniques. De plus, la technique pompe-visible et sonde-térahertz exige l'utilisation d'une grande surface. En effet, par exemple à 300 GHz la longueur d'onde est de 1 mm, il faut alors que la zone excitée ait cette dimension. La largeur du pont de l'antenne supraconductrice fait $30 \mu\text{m}$ et ne répond pas à cette exigence.

Dans ce qui suit, nous décrivons les caractéristiques des différents échantillons que nous avons préparés pour vérifier si les caractéristiques temporelles d'une couche mince de YBCO dépendraient de paramètres extrinsèques.

Différents substrats

Nous avons mentionné dans le chapitre théorique que l'indice de réfraction du substrat peut affecter l'amplitude de transmission (éq. 1.59). De plus, certains auteurs ont soulevé l'importance du substrat dans la thermalisation de la chaleur provenant du faisceau d'excitation [4, 18, 44]. La résistance thermique (R_k) entre la couche mince et le substrat serait en cause. À noter que la résistance thermique pourrait influencer indirectement le temps de relaxation par l'intermédiaire du temps de relaxation long τ_{r2} . Pour vérifier ces possibles effets, nous avons préparé deux échantillons d'une épaisseur de 60 nm déposés sur des substrats différents. La surface de la couche mince fait environ 8,5 mm par 8,5 mm. Les substrats de LAO et de Al_2O_3 avec une couche tampon d'oxyde de cérium CeO_2 de 0.5 mm d'épaisseur ont été retenus à cause de leur indice de réfraction différent et de la qualité équivalente des couches obtenues lors de la croissance.

La croissance de couches minces de qualité sur des substrats différents avec des épaisseurs équivalentes demande un effort considérable puisque les conditions de croissance ne sont pas les mêmes. Si le substrat influence la dissipation de la chaleur de la couche mince, alors les temps de relaxation longs τ_{r2} pourraient être différents.

Différentes épaisseurs

En plus de l'influence possible du substrat sur la résistance thermique, l'épaisseur de la couche mince peut influencer le temps de relaxation thermique [4,33,44] si l'absorption n'est pas uniforme. De façon générale, l'énergie absorbée du faisceau pompe augmente avec l'épaisseur, mais au-delà d'une certaine épaisseur, il n'y a plus de changements dans l'absorption. À partir de cette épaisseur, la chaleur doit diffuser pour se rendre à l'interface avant d'être transférée dans le substrat. Afin de vérifier dans quelle limite les échantillons se trouvent, nous avons fabriqué deux couches minces de YBCO de 38 nm et 65 nm sur un substrat de saphir (Al_2O_3)⁷. De plus, nous pourrions déterminer si le temps de relaxation court τ_r est fonction de l'épaisseur (effet extrinsèque) et que le rapport de leur variation de transmission varie comme le rapport de leur épaisseur (voir l'amplitude A' à l'équation 1.82). Ainsi, nous pourrions renforcer l'approximation de faible perturbation.

2.2.2 Montage

Au premier abord, le montage de la technique pompe-sonde semble beaucoup plus complexe que celui du spectromètre (figure 2.13). En fait, c'est un montage de spectroscopie dans le domaine temporel similaire au montage précédent (section 2.1.3) auquel nous ajoutons un laser d'excitation (la pompe) sur l'échantillon caractérisé (voir fig. 2.5). La puissance moyenne du faisceau pompe est la même, sauf que le taux de répétition est à 1 kHz au lieu de 80 MHz. Un taux de répétition inférieur constitue un avantage pour éviter les problèmes potentiels d'effets d'accumulation de chaleur. Dans ce montage, le faisceau pompe est focalisé grossièrement sur une tache dont l'aire fait 44 mm^2 afin de limiter la densité d'énergie par impulsion. D'autre part, nous pourrions sonder la réponse dynamique du système avec un faisceau sonde THz dont la tache de focalisation sur l'échantillon est plus petite que la moitié de la tache du faisceau pompe.

⁷L'épaisseur de peau dans l'état normal pour YBCO près de sa température critique est autour de 400 nm [45].

Des cristaux de ZnTe d'une épaisseur de 2 mm et 1 mm sont respectivement utilisés pour l'émetteur et le détecteur du montage. Des impulsions térahertz sont générées par redressement optique de l'impulsion visible d'excitation. Le principe de détection est basé sur l'effet électro-optique ; le champ térahertz modifie l'indice de réfraction du cristal et affecte la polarisation du faisceau laser sonde qui traverse ce cristal. Un cube polarisant sépare les composantes orthogonales du champ et les deux faisceaux sortant sont dirigés vers deux photodiodes. Une mesure du photocourant différentiel permet de relier ce signal à l'amplitude du champ térahertz auquel est soumis le cristal électro-optique.

L'échantillon est placé dans un micro-cryostat *Oxford*. Ce dernier est excité à l'aide d'un faisceau laser visible incident avec un angle de quelques degrés par rapport à la normale à la surface (fig. 2.13)⁸. L'évolution des porteurs excités par le faisceau pompe est sondée à l'aide d'un faisceau térahertz focalisé sur une tache d'environ 20 mm^2 .

Une détection synchrone permet d'améliorer le rapport signal/bruit de la mesure. Le hacheur mécanique est normalement placé dans la branche optique de la pompe. Cette approche permet de mesurer directement la différence de transmission de la sonde térahertz à travers l'échantillon induite par le faisceau pompe. Afin de bloquer le faisceau visible de la pompe d'excitation qui n'est pas entièrement absorbée par l'échantillon, nous avons ajouté un filtre entre le cryostat et le miroir parabolique. Le filtre est un sac de plastique noir, du polyéthylène .

Le simple fait d'ajouter un faisceau pompe complexifie le montage, la mesure ainsi que l'analyse. Tout d'abord, il faut ajouter une ligne à retard pour contrôler le temps d'arrivée des impulsions d'excitation sur l'échantillon. Ce dispositif permet d'ajuster le retard entre les temps d'arrivée de la pompe (noté T2) et de la sonde (noté T1) sur l'échantillon comme le montre la figure 2.14. Le fait que la largeur de l'impulsion sonde soit environ 20 fois celle de l'impulsion laser visible complique la mesure et l'analyse. Ainsi, le champ électrique de la sonde térahertz dépend de la convolution de celle-ci avec l'amplitude de transmission et de la réponse du détecteur, mais dépend aussi d'une convolution supplémentaire avec la pompe en régime hors-équilibre (éq. 1.58). La deuxième ligne à retard installée dans la branche de détection du montage permet d'échantillonner la trace complète du champ électrique sonde.

Deux types de mesures sont possibles. Le premier type est nommé **balayage 1D** et le deuxième type est nommé **balayage 2D**. Le **balayage 1D** consiste à mesurer le champ

⁸L'angle entre la branche optique supplémentaire et la normale de l'échantillon n'est pas réaliste sur la figure. L'angle est d'environ 1-2 degrés, ce qui réduit la résolution temporelle du montage.

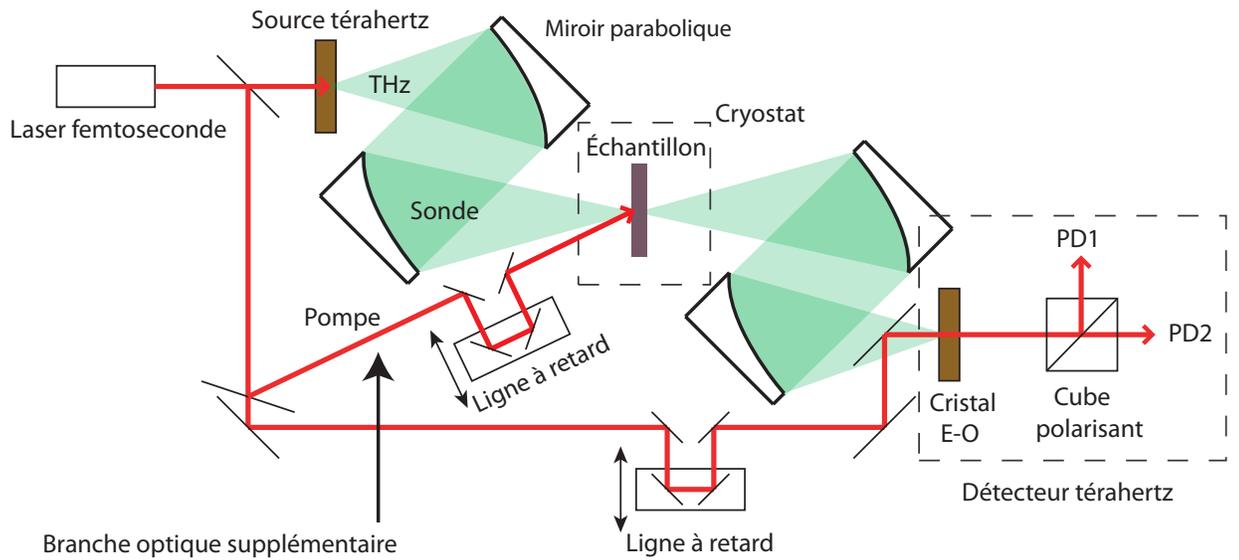


FIGURE 2.13 – Montage de spectroscopie avec une pompe visible et une sonde térahertz.

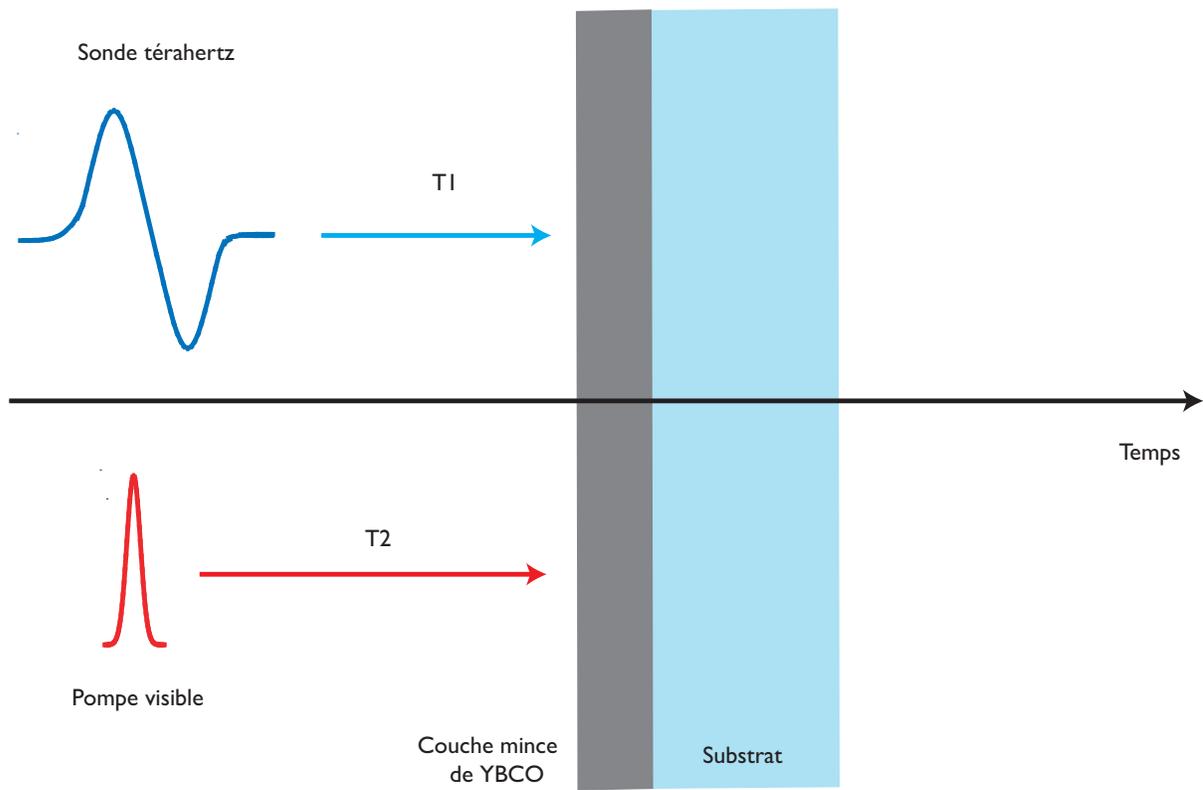


FIGURE 2.14 – Illustration du temps d’arrivée de la pompe et de la sonde sur l’échantillon. $T2-T1$ représente le retard entre la pompe et la sonde sur l’échantillon.

électrique de la sonde térahertz pour une position fixe de la ligne à retard de la branche de détection en fonction du retard T2-T1 de l'impulsion d'excitation visible sur l'échantillon. Habituellement, la ligne à retard est ajustée de façon à mesurer la dynamique du signal térahertz transmis à travers l'échantillon à la position où le champ électrique de la sonde térahertz est maximal. Le **balayage 1D** permet de suivre l'évolution dans le temps de la conductivité de l'échantillon après excitation par l'impulsion laser visible. Une condition à l'utilisation de ce mode est l'indépendance du temps de relaxation des porteurs τ_r par rapport à la fréquence de la sonde ⁹.

Le deuxième type de mesures, le **balayage 2D**, correspond à une série de mesures en **balayage 1D** obtenues pour différentes fenêtres de détection de l'impulsion térahertz. Autrement dit, on enregistre une série de balayages 1D prises pour différentes positions de la ligne à retard de la branche de détection. Cette méthode est l'équivalent de mesurer l'impulsion sonde en entier pour différentes fenêtres de temps après l'excitation du faisceau pompe. En effectuant la transformée de Fourier de l'impulsion sonde, nous retrouvons la variation de l'amplitude de transmission pour une fréquence ω donnée (équ. 1.85) et pouvons suivre son évolution temporelle après l'excitation du faisceau pompe.

Nous avons principalement utilisé le mode de **balayage 1D**, car il permet d'enregistrer plus rapidement des cinétiques avec des options de moyennage des signaux plus pratiques. Dans le cas où la dispersion de l'impulsion térahertz dépend peu du retard T2-T1, l'analyse de la conductivité résolue en temps peut s'effectuer sans complication à l'aide d'une simple trace 1D.

Support à échantillon

La figure 2.15 montre le porte-échantillon utilisé dans le micro-cryostat Oxford de la figure 2.13. Le support à échantillon est une plaque de cuivre que l'on attache mécaniquement avec des vis sur le doigt froid du cryostat. Au centre du support en cuivre, une ouverture de 7.5 mm permet la transmission de la sonde térahertz et la calibration précise de la densité d'énergie de la pompe. La calibration de la densité d'énergie est importante pour mieux comparer les résultats obtenus des montages pompe-sonde et de spectroscopie dans le domaine temporel. Le substrat est fixé sur la pièce de cuivre avec une colle au caoutchouc de type Lepage. La colle est séchée sous une lampe avant l'insertion dans le cryostat. Le côté du substrat opposé à celui de la couche mince est collé sur le support. Enfin, un thermomètre fixé sur l'échantillon permet une mesure plus

⁹Voir le paragraphe entre les équations 1.85 et 1.86 .

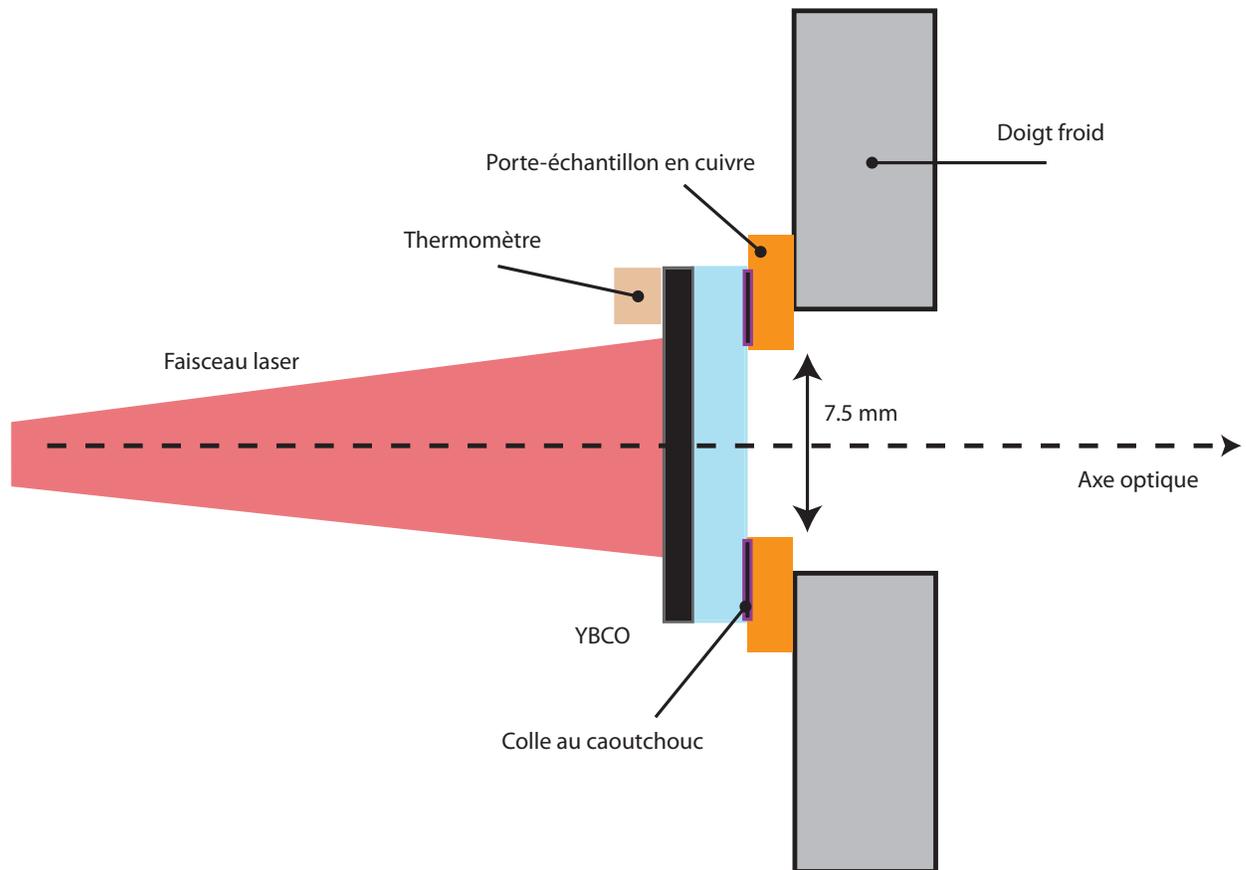


FIGURE 2.15 – Schéma du support à échantillon dans le cryostat pour le montage pompe-sonde.

directe de la température. Un thermomètre éloigné de l'échantillon pourrait ne pas être sensible aux variations de température lorsque ce dernier est excité avec la pompe visible.

2.2.3 Extraction des temps caractéristiques

Les données obtenues à partir d'un balayage 1D (ou 2D dans l'espace des fréquences) sont lissées en utilisant un modèle bi-exponentiel décrit à l'équation 1.87. Il n'y a aucun traitement des données si ce n'est que d'inverser les données en multipliant par -1 si la variation du champ électrique transmis est négative (moins de transmission). Le modèle bi-exponentiel contient deux temps caractéristiques : un court τ_r et un long τ_{r2} . Le lissage

est fait à l'aide du logiciel IGOR Pro. Nous pouvons ignorer le temps de montée τ_c en choisissant de lisser seulement la partie après le maximum de variation pour extraire uniquement τ_r et τ_{r2} (voir fig. 1.3). Nous utilisons la notation τ_l pour exprimer le temps de montée τ_c , car les données n'ont pas été déconvoluées afin d'extraire l'effet de la réponse du détecteur $R(t)$ et du profil du faisceau laser $L(t)$. L'extraction de τ_l permet de mieux estimer τ_c .

Dans ce chapitre, deux techniques principales de caractérisation ont été présentées soient la technique de spectroscopie dans le domaine temporel et la technique pompe-visible et sonde-térahertz. En plus, la fabrication des antennes supraconductrices avec YBCO et des antennes semiconductrices sur substrat de GaAs implanté aux protons a été décrite. Même si en pratique, nous avons effectué les mesures avec les mêmes échantillons en pompe-sonde avant de calibrer le montage de spectroscopie dans le domaine temporel, nous présentons les résultats de l'étude des antennes térahertz au prochain chapitre puisque c'est le sujet central de cette thèse.

Chapitre 3

Antennes térahertz

La caractérisation détaillée et quantitative des propriétés des antennes térahertz exige de modéliser adéquatement le montage de spectroscopie dans le domaine temporel et de connaître les propriétés intrinsèques des matériaux. Dans le cas des antennes semiconductrices que nous avons fabriquées, nous notons que les propriétés intrinsèques (temps de relaxation et de recombinaison) sont dépendantes des étapes de fabrication (implantation et recuit thermique). Dans le cas de YBCO près du dopage optimal, les propriétés intrinsèques (temps de relaxation et de reformation des paires) rapportées par la technique pompe-sonde varient de l'ordre de 100 % [14, 33, 46–48]. Par exemple, un temps de relaxation de 1 ps ou de 2 ps ne pourrait pas être expliqué par le même modèle pour décrire le spectre de l'antenne térahertz. Pourtant, nous devons faire face à cette réalité. Afin de résoudre ce paradoxe qui provient peut-être d'échantillons avec des propriétés différentes et de montrer quel modèle il est préférable d'utiliser pour décrire les caractéristiques des antennes supraconductrices, nous avons réalisé des mesures avec les antennes térahertz et la technique pompe-sonde sur les mêmes échantillons. Dans ce chapitre, nous rapportons les résultats et analyses des caractéristiques des antennes térahertz. Nous mettons l'emphase sur la description des antennes d'émission supraconductrices à base de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Ce chapitre est divisé en deux sections. La première section est séparée en trois parties. Dans la première partie de cette section, nous traitons de la qualité structurale du supraconducteur YBCO. Cette étape est importante, car YBCO peut présenter des caractéristiques extrinsèques à cause de la présence de micro-structures. À la deuxième partie, les caractéristiques térahertz des différents composants du montage sont présentées. Les caractéristiques des substrats et de la réponse du détecteur permettent de mettre en

évidence les paramètres importants pour la définition du modèle de lissage des résultats expérimentaux. Finalement, à la troisième partie, nous présentons les caractéristiques des antennes supraconductrices en fonction de la température, du courant appliqué et de la puissance d'excitation. Enfin, la deuxième section est plus brève, car nous décrivons l'approche pour optimiser la largeur de bande et l'amplitude d'émission d'une antenne supraconductrice. Cet exercice permet de réviser les différents résultats que nous aurons présentés avant de conclure.

3.1 Résultats et analyses

3.1.1 Qualité structurale

Nous présentons les résultats de la diffraction des rayons-X, de la susceptibilité CA, de la résistivité CC et de la mesure du courant critique.

Rayons X

Les rayons X permettent de vérifier l'orientation de l'axe cristallin de YBCO par rapport à celle du substrat de saphir (Al_2O_3) et d'évaluer la qualité cristalline de la couche déposée. Nous cherchons à vérifier que l'axe cristallin \vec{c} des couches de YBCO est bien perpendiculaire à la surface du substrat. La figure 3.1 montre l'intensité des rayons X diffractés sur la surface en mode $\theta - 2\theta$. Seule la famille des plans (001) est présente pour YBCO. Les pics du substrat (Al_2O_3 , R-plane) et de la couche tampon (CeO_2) sont également visibles. La largeur à mi-hauteur Δh des pics de YBCO est de 0.35° , ce qui dénote d'une bonne qualité structurale. Parfois, lorsque la croissance n'est pas optimale, nous pouvons observer des pics provenant d'une croissance suivant l'axe \vec{a} de YBCO (la famille (100)) qui suggèrent l'existence de régions avec différentes orientations cristallines et des joints de grains liant celles-ci. Les micro-structures qui en résultent sont indésirables.

À partir de la position des pics de la famille de plans (001), nous obtenons un paramètre de maille $a_c = 1.16$ nm, ce qui est comparable aux valeurs rapportées dans la littérature [49]. À la figure 3.2, nous comparons le spectre des rayons X d'une couche de 38 nm avec celui d'un échantillon de 60 nm déjà présenté à la figure précédente (fig. 3.1). Nous observons en (a) que la couche de 38 nm a une orientation cristalline principalement selon l'axe \vec{c} puisque nous ne pouvons distinguer de pics d'une autre orientation. La

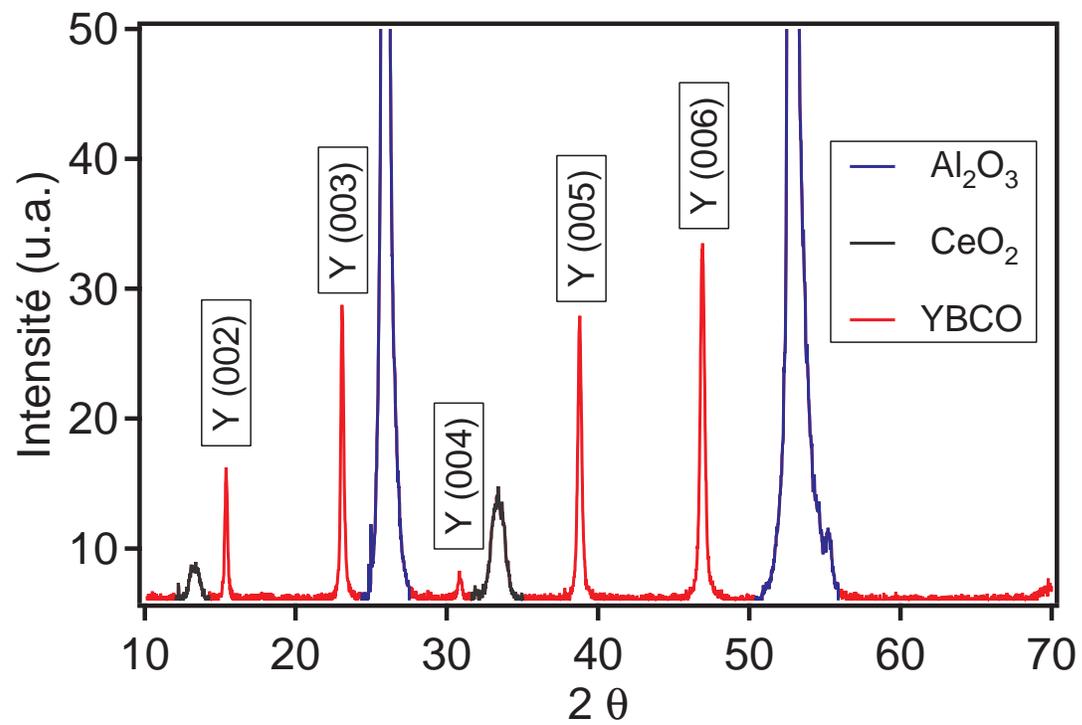


FIGURE 3.1 – Spectre de diffraction des rayons X de la couche mince 070823YA de 60 nm d'épaisseur à la température ambiante.

figure 3.2 (b) montre un grossissement du pic Y(005). L'élargissement observable du pic Y(005) indique que la qualité de la couche à 38 nm est moins bonne; Δh est de 0.55° pour la couche de 38 nm comparativement à 0.35° pour la couche de 60 nm. Notez que le changement de la position du maximum du pic Y(005) n'est pas significatif, car les pics reliés au substrat ont changé d'environ 0.05° ¹. Nos valeurs de largeur à mi-hauteur (Δh) sont inférieures à celles trouvées dans la littérature [49]. Cependant, puisque Δh est plus importante pour l'échantillon de 38 nm, une légère distribution de la grandeur de l'axe \vec{c} serait présente. Dans YBCO, le paramètre de maille \mathbf{c} est plus grand pour les échantillons sous-dopés (T_c plus bas), ce qui se traduit pas un déplacement (ou distribution) des pics Y(00l) vers de plus petits angles.

Susceptibilité CA

Pour la mesure de χ_{CA} , nous avons appliqué un champ de 0.02 Oe à 10 kHz sur un échantillon d'environ 2 mm^2 constitué d'une couche mince à partir de laquelle l'antenne 070823YA a été fabriquée. La figure 3.3 illustre la partie réelle (a) et la partie imaginaire (b) de la susceptibilité magnétique. L'échantillon devient diamagnétique sous 86 K, car la partie réelle est alors négative. Quant à la réponse de la partie imaginaire, elle nous permet d'évaluer la qualité de l'échantillon et/ou la distribution de la température critique T_c . Le maximum est à 86 K et la largeur de la distribution est de 0.5 K, ce qui constitue une valeur acceptable pour une couche mince d'YBCO de 60 nm.

Maintenant, la figure 3.4 illustre seulement la partie imaginaire de la susceptibilité de la couche de 38 nm d'épaisseur. Nous observons clairement une distribution de T_c . La distribution se prolonge en dessous de 75 K. La phase principale est à 81.2 K et une autre secondaire apparaît à 77 K. Cette phase secondaire pourrait être due à la légère distribution de l'axe \vec{c} que nous avons observée ou à de mauvaises jonctions entre les grains de la couche mince. Cette distribution de T_c était peu perceptible avec la mesure de diffraction des rayons X. Dès lors, il ne fait aucun doute que l'antenne fabriquée à partir de cette couche n'est pas idéale pour une étude des propriétés intrinsèques : des effets de chauffage importants pourraient apparaître. Toutefois, nous verrons que les caractéristiques temporelles lors de l'étude en pompe-sonde de l'échantillon de 38 nm sont les mêmes que celles des antennes. Ces observations pourraient renforcer l'hypothèse que les jonctions de grains sont principalement en cause, car les temps de relaxation ou

¹Ceci indique en fait un problème d'alignement du diffractomètre.

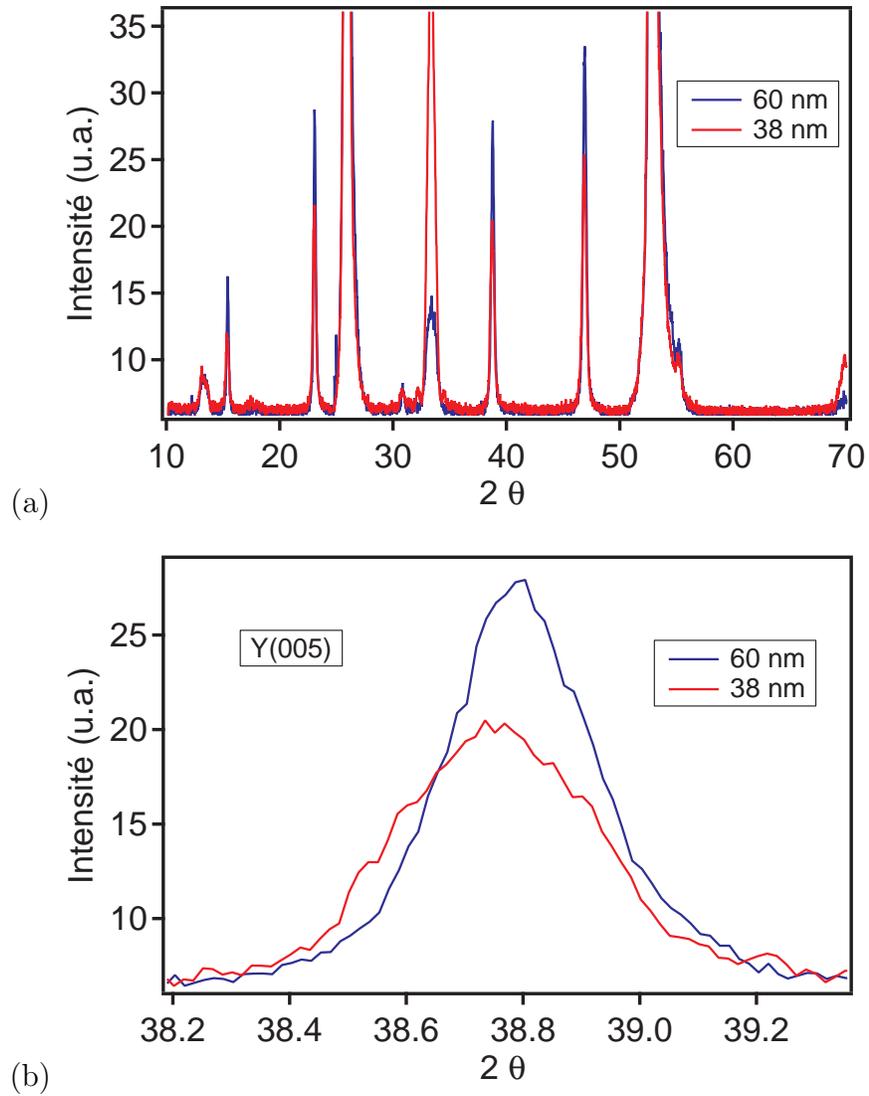


FIGURE 3.2 – Comparaison du spectre de diffraction pour une couche de 38 nm (échantillon 070831YA) et de 60 nm (échantillon 070823YA) à la température ambiante. (a) Spectre de diffraction et (b) grossissement du pic Y(005).

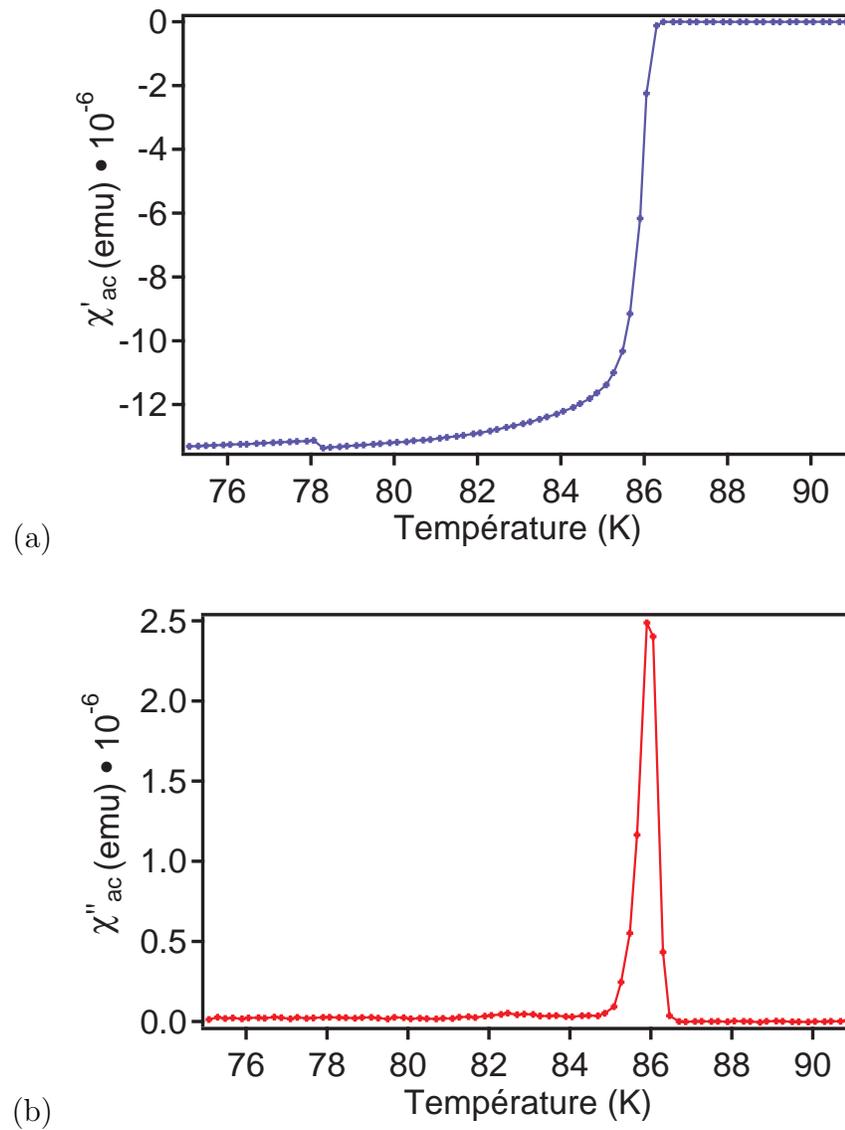


FIGURE 3.3 – Détermination de la température critique de l’antenne 070823YA de 60 nm d’épaisseur avec la technique de susceptibilité CA. (a) Partie réelle et (b) partie imaginaire.

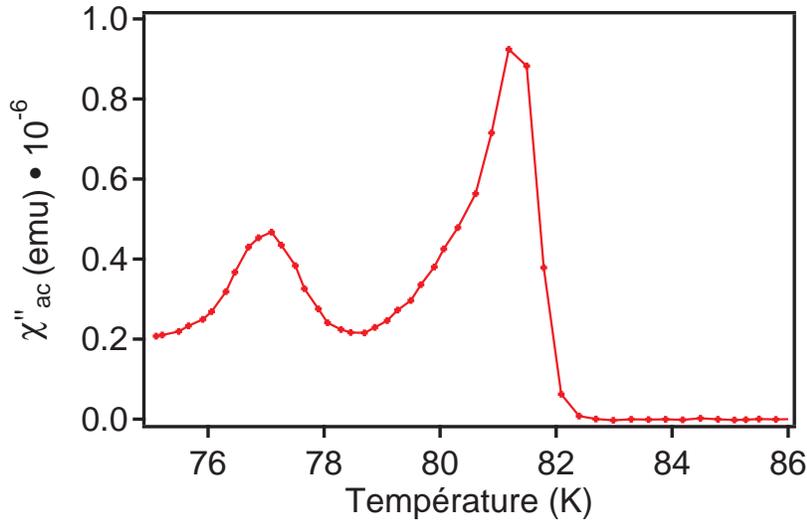


FIGURE 3.4 – Détermination de la température critique de l'échantillon 070831YA de 38 nm d'épaisseur avec la technique de susceptibilité CA.

caractéristiques temporelles de YBCO dépendent de l'oxygénation selon certains articles [15, 26].

Résistivité CC et courant critique

La résistivité CC permet de déterminer la conductivité du micro-pont de l'antenne, mais aussi de déterminer la température critique. Pour un courant d'au plus $10 \mu A$ ², les résistances des antennes 070823YA (60 nm) et 070831YA (38 nm) ont été mesurées en fonction de la température à la figure 3.5. Le micro-pont fait $400 \mu m$ de long et $27 \mu m$ de large. À la température ambiante, la résistance de la couche de 60 nm fait $3 k\Omega$ et celle de la couche de 38 nm fait $12 k\Omega$. La résistance chute environ d'un facteur 3 dans les deux cas entre la température ambiante et 100 K. Ceci est le rapport recherché pour une couche d'YBCO ayant une oxygénation optimale. En-dessous de 100 K, la résistance chute et devient nulle à 82 K pour la couche de 60 nm et 66 K pour la couche de 38 nm. Les deux courbes permettent de vérifier que les antennes n'ont pas de résistance résiduelle et permettent de vérifier s'il y a des problèmes de thermométrie avec le thermomètre du cryostat à cause par exemple du porte-échantillon avec un ancrage thermique déficient.

²Il y a eu une erreur lors de la prise de mesures et le courant n'était pas constant près de la transition critique. Le courant appliqué à 300 K était d'environ $1 \mu A$ et augmentait lors de la diminution de la température. Le PPMS a toutefois arrêté l'augmentation à $10 \mu A$.

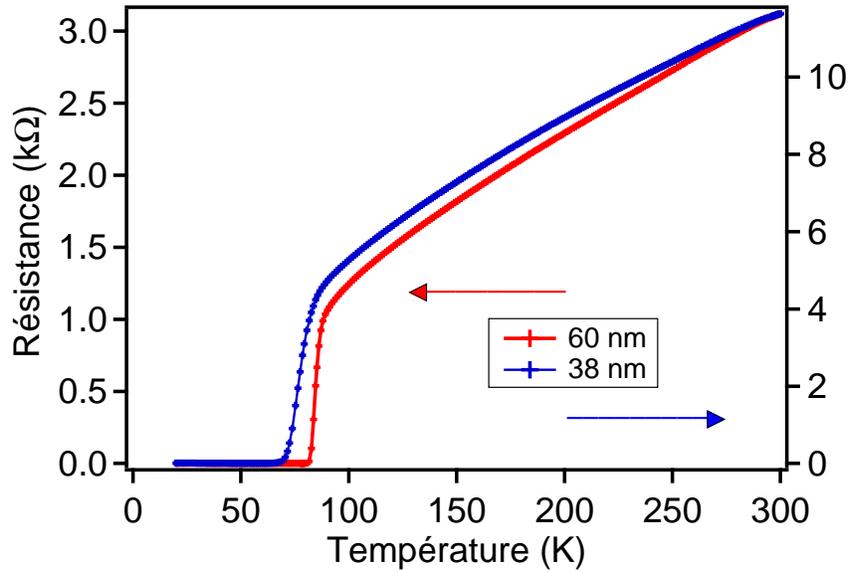


FIGURE 3.5 – Détermination de la résistance des antennes 070823YA (60 nm) et 070831YA (38 nm) et de leur comportement en température. Le courant appliqué est de $1 \mu A$. La longueur du pont est de $400 \mu m$, la largeur de $27 \mu m$ et l'épaisseur de 60 nm.

À partir de la mesure de la résistance, nous pouvons évaluer la conductivité σ_o de YBCO à la température ambiante. Selon nos calculs à l'annexe B, σ_o est de $0.152 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$ pour l'antenne dont la couche fait 60 nm. En ce qui a trait à la couche de 38 nm, celle-ci a une conductivité 2.5 fois plus faible soit de $0.061 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$.

À la figure 3.6, le courant critique en fonction de la température de l'antenne 070823YA est présenté. La figure (a) est un exemple de mesure de la différence de potentiel aux bornes de l'antenne en fonction du courant à 60 K. Le supraconducteur n'a plus une conductivité parfaite au-dessus d'une certaine valeur de courant dite critique et on observe alors une augmentation drastique de la différence de potentiel. Nous pouvons voir sur la figure qu'au-delà de 40 mA une différence de potentiel est apparente. En utilisant un seuil de $1 \mu V$ pour l'atteinte de I_c , nous déterminons une densité de courant critique de 33 mA à 60 K. En utilisant ce même critère pour chacune des courbes enregistrées à différentes températures, nous pouvons tracer le comportement de I_c en fonction de la température à la figure 3.6 (b). On observe que le courant critique diminue avec la température et tend vers 0 à T_c . Le comportement en température de la densité de courant est conforme à celui attendu pour ce type de supraconducteur selon Poole et *al.* [50]. De plus, si nous calculons la densité de courant critique à 40 K pour une largeur de micro-

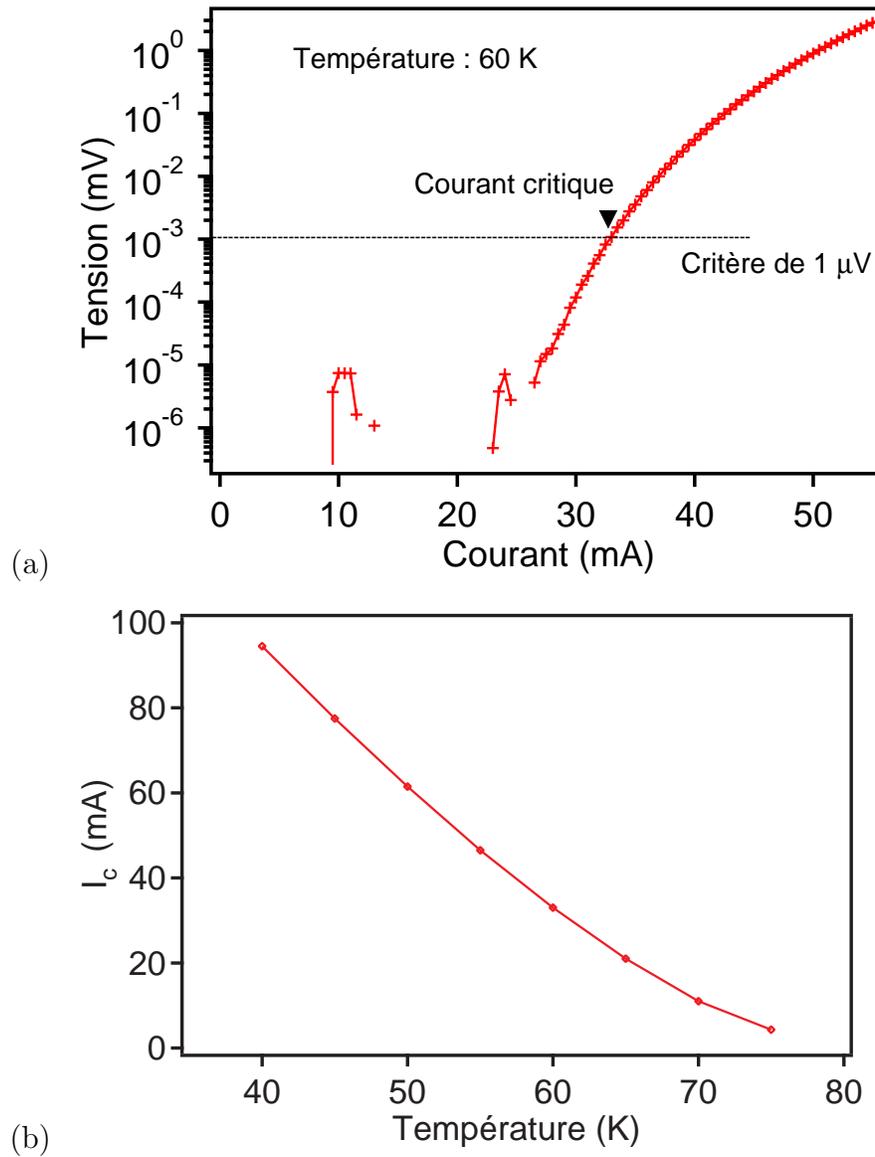


FIGURE 3.6 – Détermination du courant critique de l’antenne 070823YA (60 nm). (a) Exemple de l’évolution de la différence de potentiel aux bornes du micro-pont en fonction du courant appliqué pour une température de 60 K. Le courant critique est de 33 mA. (b) Le courant critique en fonction de la température pour un seuil de $1\mu V$.

pont de $27.6 \mu\text{m}$ et une épaisseur de 60 nm, nous obtenons $5.8 * 10^6 \text{A}/\text{cm}^2$. Cette densité de courant critique entre dans la fourchette de valeurs que nous voulions atteindre entre 77 K et 4 K. Une densité critique élevée signifie que la couche de YBCO possède une qualité comparable à ce qu'il y a de mieux dans la littérature. À titre d'exemple, nous avons fabriqué des couches de YBCO sur des substrats de MgO où la densité de courant critique était jusqu'à deux ordres de grandeur plus faible. La figure 3.6 (b) permet d'établir le régime de fonctionnement normal d'une antenne supraconductrice qui devrait être en dessous du courant critique. Au-dessus de I_c , l'antenne va inévitablement chauffer et si la thermalisation n'est pas adéquatement contrôlée, alors les propriétés deviendront non-linéaires avec le courant appliqué.

La vérification de la qualité structurale par les techniques de diffraction des rayons X, de susceptibilité magnétique CA et du courant critique nous assure que les propriétés des antennes que nous mesurerons ne devraient pas être affectées par les problèmes de micro-structures. La couche de 38 nm pourrait être sujette à de tels effets. De plus, nous réutiliserons certaines des données mesurées pour l'analyse et l'interprétation de nos résultats tout au long de ce chapitre.

3.1.2 Caractérisation des composants du montage

Les impulsions térahertz émises et mesurées par le détecteur doivent traverser différents composants du montage. Afin de s'assurer que le spectre n'est pas modifié par un des composants, nous devons caractériser les spectres de transmission térahertz au travers de ceux-ci. Dans cette section, nous présentons les spectres de transmission d'un substrat de LaAlO_3 (LAO), d'un substrat de saphir Al_2O_3 avec une couche tampon d'oxyde de cérium CeO_2 , d'une gaufre de silicium, de la fenêtre de Teflon du cryostat et d'un substrat de GaAs. Nous terminerons en mesurant la conductivité moyenne haute-fréquence pour la couche de YBCO de 60 nm à température ambiante.

La figure 3.7 présente les traces térahertz ($I_M(t)$) de la référence (courbe noire) et de l'impulsion transmise à travers un substrat de LAO inséré dans le parcours optique (courbe rouge) entre l'émetteur et le détecteur. Le maximum est à 14 ps pour la référence et à environ 23 ps avec un substrat de LAO. Ce décalage temporel provient d'un indice de réfraction différent entre l'air et le substrat. À partir de ce décalage et de l'épaisseur de l'échantillon, nous pouvons déterminer l'indice de réfraction qui est de 4.85. Après le pic principal, nous observons des répliques de l'impulsion principale de plus faibles intensités

dans les deux cas. Le nombre de répliques est plus important avec l'échantillon. Dans ce cas, les répliques sont associées aux réflexions de l'impulsion principale aux interfaces du substrat d'une épaisseur de 0.5 mm. Toutes les données au-delà de 30 ps doivent être exclues pour ne pas affecter la TF. Donc, en appliquant la méthode de corrections des données temporelles vue à la section 2.1.5, nous obtenons la TF des traces térahertz $I_M(\omega)$ à la figure 3.7 (b). $I_M(\omega)$ de la référence (courbe noire) et avec le substrat de LAO (courbe rouge) sont superposées. Le comportement en fréquence est semblable en dessous de 1 THz. Toutefois, au-dessus de 1 THz, les courbes divergent quelque peu. En fait, les endroits où les courbes divergent le plus coïncident avec les positions des raies d'absorption provenant de la vapeur d'eau. Dans l'ensemble, l'enveloppe principale est la même (voir figure 2.12). Ces mesures indiquent que LAO n'affecte pas de façon appréciable le spectre en fréquence émis par l'antenne supraconductrice. Nous n'aurons pas à considérer son effet dans la modélisation du spectre d'émission. Les figures 3.8, 3.9 et 3.10 présentent les résultats obtenus pour les spectres de transmission du silicium, du Teflon et du GaAs respectivement. L'ajout du silicium de 0.4 mm d'épaisseur, du Teflon de 5.95 mm et du GaAs de 0.5 mm dans le parcours optique retarde respectivement l'arrivée de l'impulsion au détecteur de 3.14 ps, 8.5 ps et 4.36 ps. La conclusion est la même que dans le cas du LAO : la lentille de silicium, la fenêtre de Teflon et le substrat de GaAs non-dopé n'affectent pas de façon appréciable la transmission de l'impulsion térahertz. Nous en concluons que l'équation 1.78 peut être utilisée pour le lissage de la TF de la trace térahertz ($I_M(\omega)$).

À présent, regardons le substrat de saphir avec une couche tampon (c.t.) d'oxyde de cérium à la figure 3.11. La couche tampon a une épaisseur d'environ 60-80 nm et le substrat de 0.5 mm. Le retard de 3.66 ps introduit par l'échantillon provient essentiellement du substrat de saphir. À partir de ce retard et de l'épaisseur du substrat, nous en déduisons un indice de réfraction de 3.2 pour le saphir. Le rapport des amplitudes de transmission au maximum est de 0.674. En calculant l'amplitude de transmission sans couche mince de YBCO (voir éq. 1.59 avec $\sigma(\omega) = 0$) et utilisant l'indice de réfraction du saphir mesuré de 3.2, nous devrions obtenir une amplitude de transmission de 0.726. Cette valeur ne concorde pas avec notre valeur observée de 0.674. Nous pouvons tenir compte de cette différence en ajoutant l'effet de la couche tampon (voir éq. 1.60). La différence d'amplitude de transmission nous permet de déduire que l'indice de réfraction de l'oxyde de cérium est de 4. Cet indice est en accord avec la valeur rapportée par M. Shekar et V. Babu [51]. La couche tampon a donc un effet sur l'amplitude de transmission

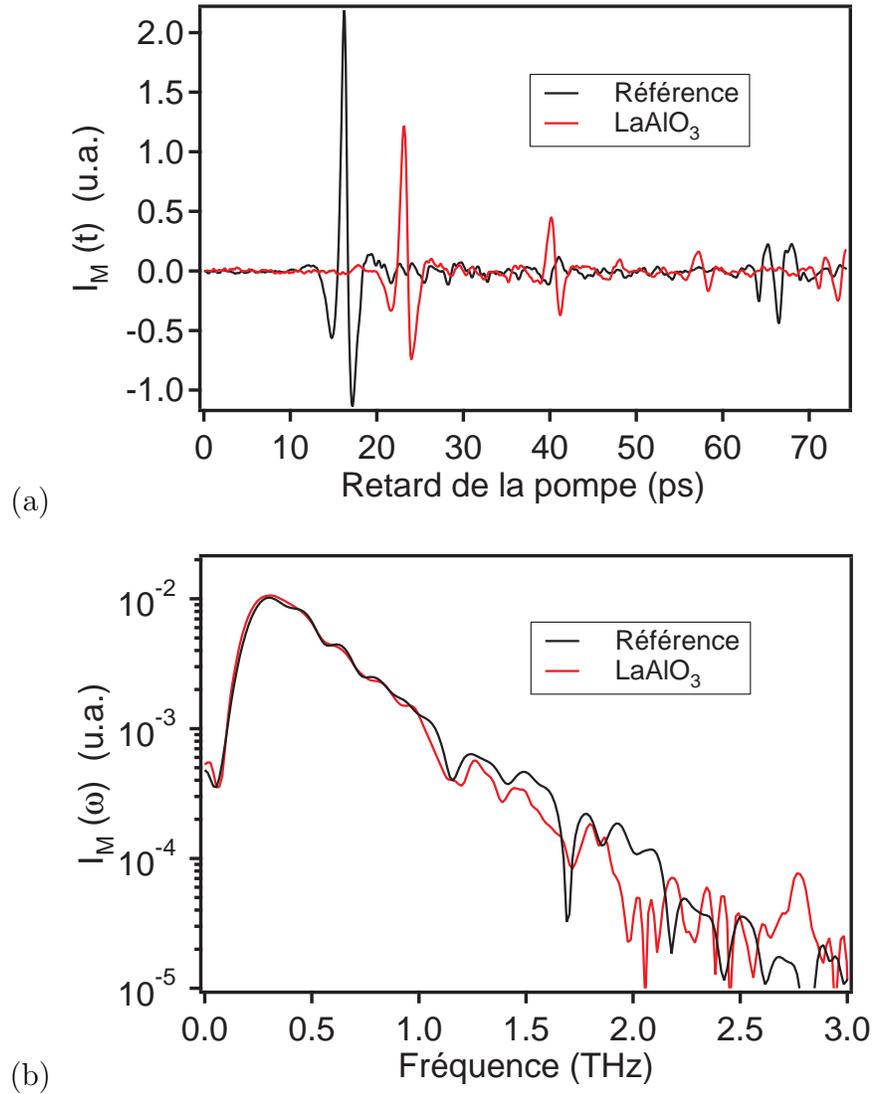


FIGURE 3.7 – Caractéristiques de transmission térahertz d'un substrat de $LaAlO_3$ de 0.5 mm d'épaisseur. (a) Courant moyen mesuré dans le temps $I_M(t)$ pour la référence (courbe noire) et après insertion du substrat dans le parcours du champ térahertz (courbe rouge). (b) La TF de $I_M(t)$ après la soustraction des oscillations et des artefacts après la structure principale.

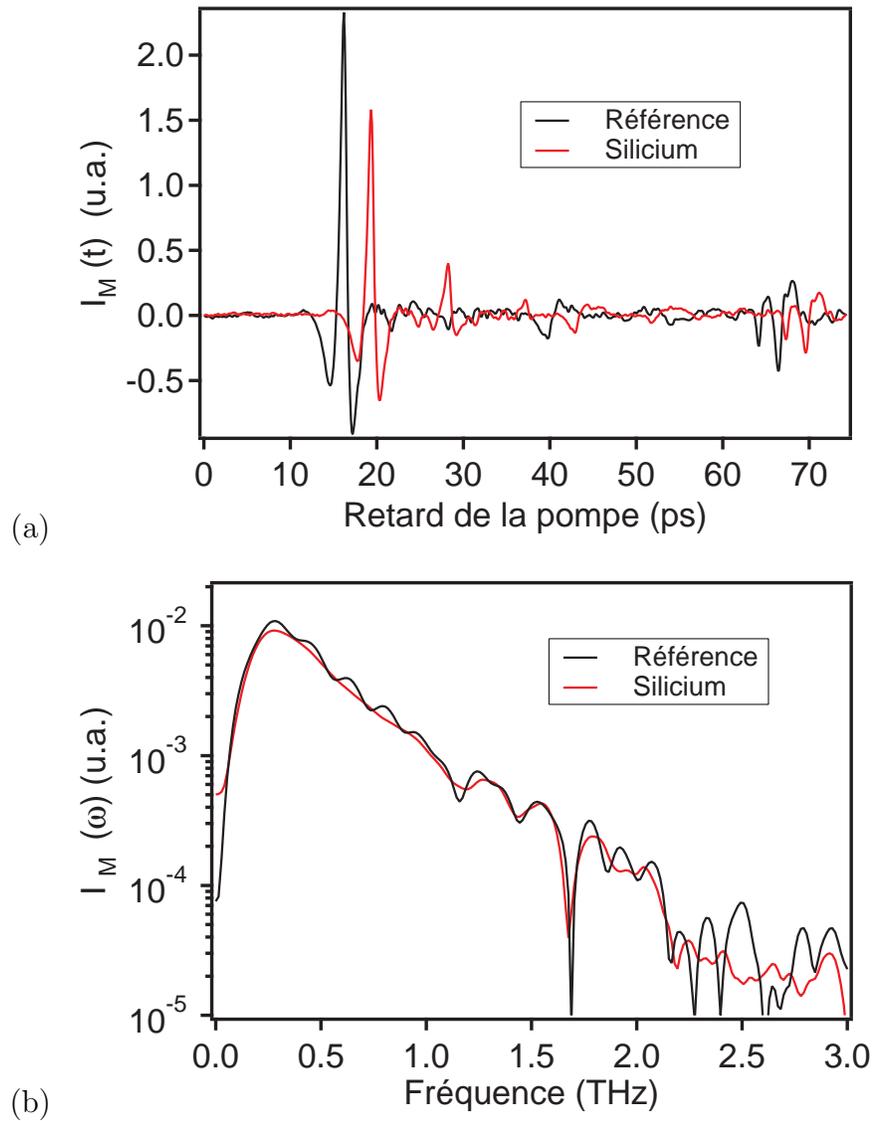


FIGURE 3.8 – Caractéristiques de transmission térahertz d’une gaufre de silicium de 0.4 mm d’épaisseur. (a) Courant moyen mesuré dans le temps $I_M(t)$ pour la référence (courbe noire) et après insertion de la gaufre dans le parcours du champ térahertz (courbe rouge). (b) La TF de $I_M(t)$ après la soustraction des oscillations et des artéfacts après la structure principale.

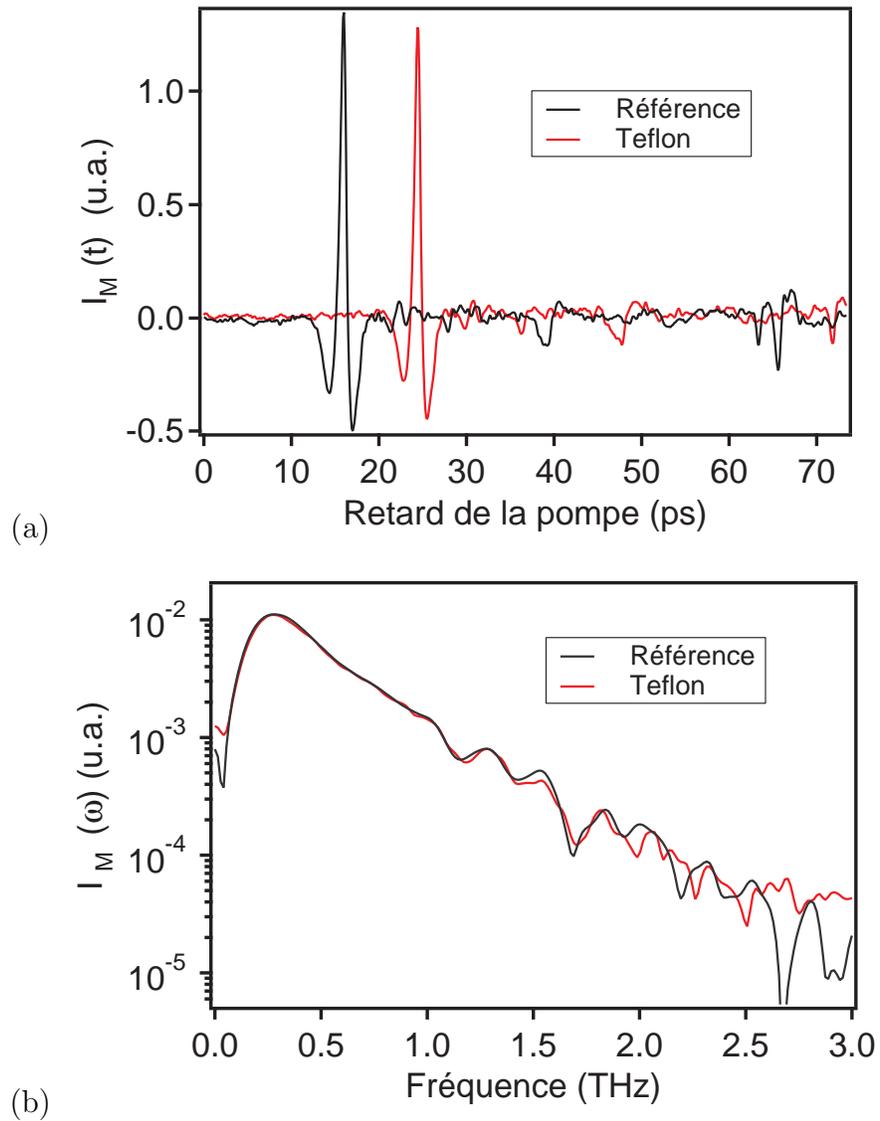


FIGURE 3.9 – Caractéristiques de transmission térahertz de la fenêtre du cryostat de Teflon de 5.95 mm d'épaisseur. (a) Courant moyen mesuré dans le temps $I_M(t)$ pour la référence (courbe noire) et après insertion de la fenêtre de Teflon dans le parcours du champ térahertz (courbe rouge). (b) La TF de $I_M(t)$ après la soustraction des oscillations et des artéfacts après la structure principale.

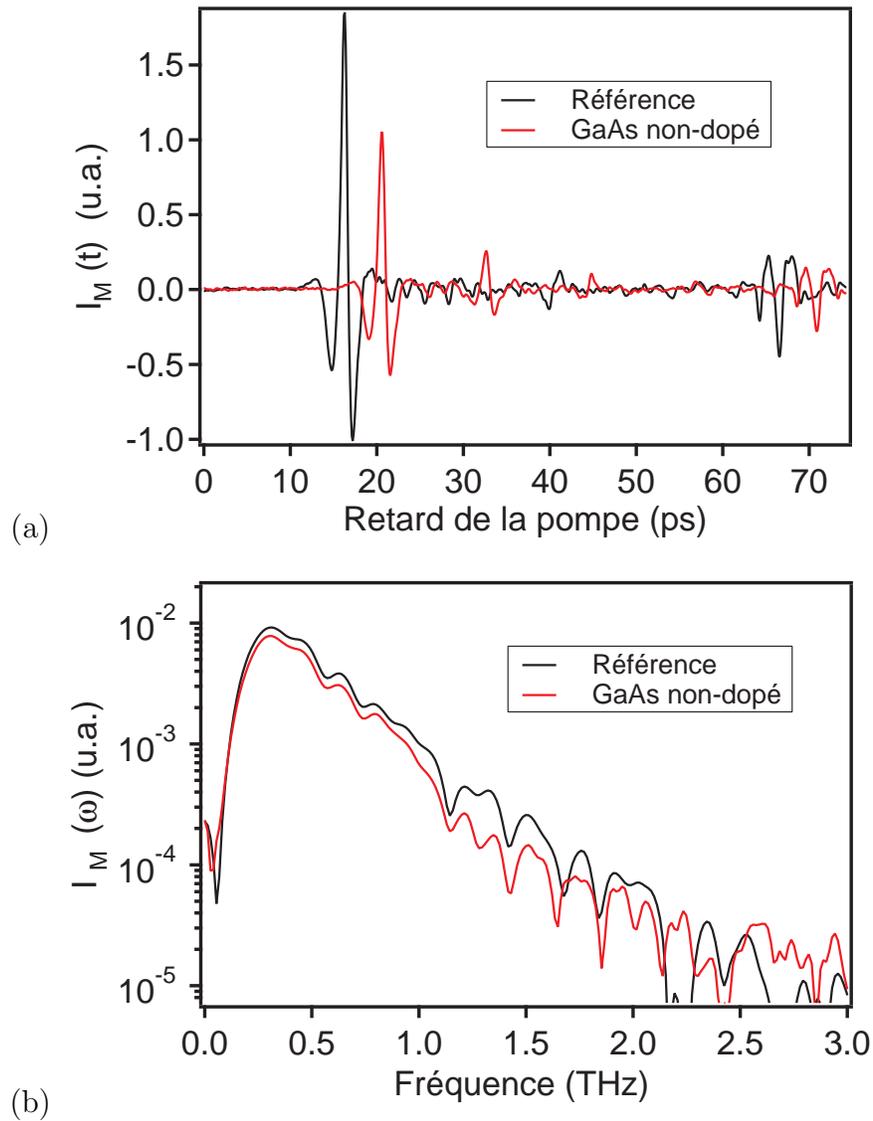


FIGURE 3.10 – Caractéristiques de transmission térahertz d’un substrat de GaAs non-dopé de 0.4 mm d’épaisseur. (a) Courant moyen mesuré dans le temps $I_M(t)$ pour la référence (courbe noire) et après insertion du substrat dans le parcours du champ térahertz (courbe rouge). (b) La TF de $I_M(t)$ après la soustraction des oscillations et des artéfacts après la structure principale.

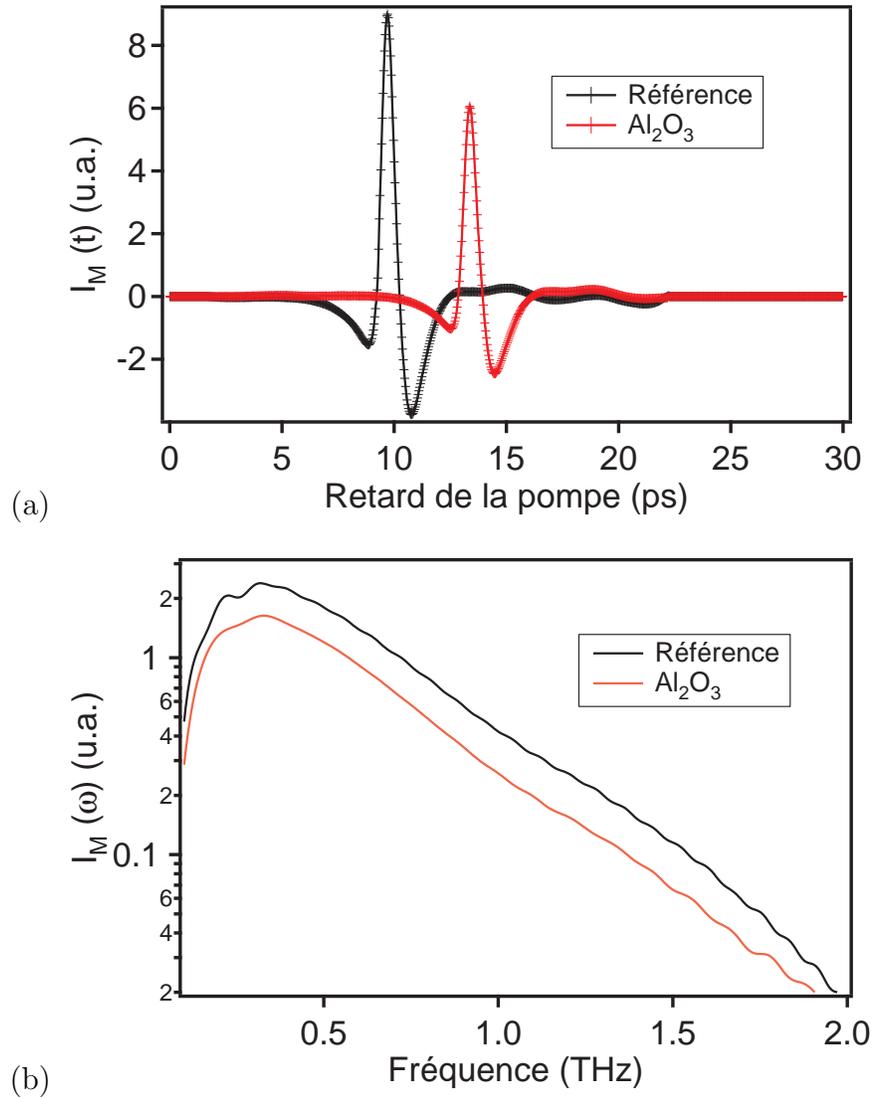


FIGURE 3.11 – Caractéristiques de transmission térahertz d'un substrat de saphir Al_2O_3 de 0.5 mm d'épaisseur. (a) Courant moyen mesuré dans le temps $I_M(t)$ pour la référence (courbe noire) et après insertion du substrat dans le parcours du champ térahertz (courbe rouge). (b) La TF de $I_M(t)$ après la soustraction des oscillations et des artéfacts après la structure principale.

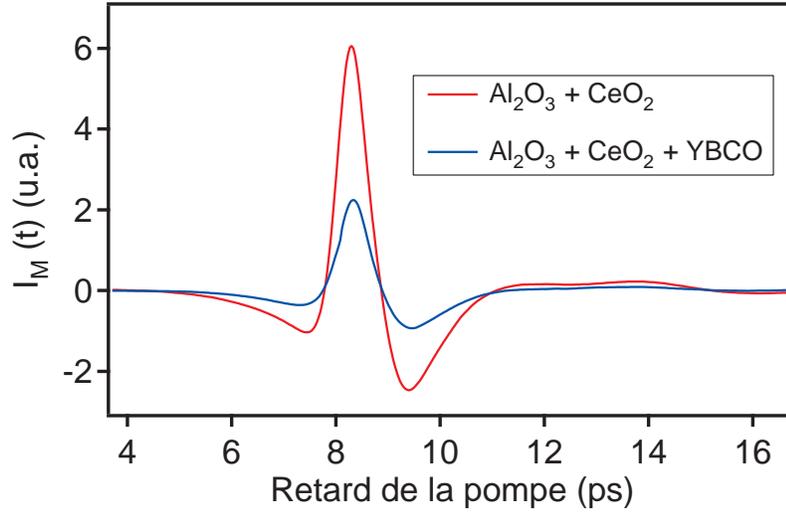


FIGURE 3.12 – Caractéristiques de transmission térahertz d’une couche de YBCO de 60 nm (échantillon 070823YAb) sur substrat de saphir Al_2O_3 de 0.5 mm d’épaisseur à la température ambiante. Une couche d’oxyde de cérium CeO_2 agit de couche tampon entre YBCO et Al_2O_3 .

du champ électrique.

À présent, regardons l’amplitude de transmission lorsqu’une couche mince de YBCO de 60 nm est déposée sur la couche de CeO_2 . La figure 3.12 montre les traces térahertz de transmission d’un substrat sans couche et avec couche de YBCO. Le rapport des amplitudes au maximum de la trace est de 0.36. D’après Pimenov et al. [45], la conductivité haute-fréquence à température ambiante est d’environ $0.5 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$ et le court temps de relaxation mesuré indique que la partie réelle de la conductivité normale domine, car $\omega\tau \ll 1$ autour de 1 THz. En utilisant l’équation 1.60 pour le calcul du rapport de transmission en considérant $\sigma(\omega)$ comme uniquement réelle³, nous obtenons $0.4 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$. L’accord avec Pimenov et al. est très bon. Cependant, nous sommes en désaccord avec notre valeur de $0.16 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$ obtenue à la section 3.1.1 lors de l’évaluation de la conductivité en courant continu. D’après la définition de la conductivité de Drude (éq. 1.62), la conductivité en régime continu devrait être supérieure à celle obtenue à haute fréquence. Cette sous-estimation possible de σ_{cc} indique peut-être que la mesure en courant continu est plus sensible à des dommages créés dans la couche mince définissant la géométrie de l’antenne. De plus, puisque les jonctions de grains sont

³Nous négligeons la partie imaginaire.

| Matériau | Retard introduit | épaisseur | Indice de réfraction |
|---------------|------------------|-----------|----------------------|
| $LaAlO_3$ | 6.81 ps | 0.53 mm | 4.85 |
| Al_2O_3 | 3.66 ps | 0.5 mm | 3.22 |
| CeO_2 | — * | 60-80 nm | 4 |
| Si | 3.14 ps | 0.4 mm | 3.36 |
| Teflon | 8.5 ps | 5.95 mm | 1.43 |
| GaAs non-dopé | 4.36 ps | 0.5 mm | 3.61 |

TABLEAU 3.1 – Indice de réfraction des différents matériaux utilisés dans le montage de spectroscopie dans le domaine temporel. * L'indice de réfraction de CeO_2 est déduite du rapport des amplitudes de transmission en utilisant l'équation 1.60 avec $\sigma(\omega) = 0$.

plus résistives que les grains à cause du désordre cristallin, elles pourraient affecter davantage la conductivité CC que la conductivité optique térahertz qui est une mesure de volume et à haute-fréquence. En effet, la région formée par la jonction est généralement représentée électriquement par une capacité et une résistance, et de plus cette région est moins volumineuse que les grains.

Le tableau 3.1 rappelle les indices de réfraction des différents matériaux obtenus à partir de la caractérisation des propriétés de transmission térahertz dans cette section. La caractérisation de la transmission térahertz de différents substrats a permis d'indiquer que seule la conductivité temporelle des milieux excités affecte le contenu spectral du champ électrique térahertz mesuré. Donc, en première approximation, nous n'avons pas besoin de tenir compte de l'influence de ces composants sur les caractéristiques de notre montage de spectroscopie pour extraire les propriétés intrinsèques des antennes.

3.1.3 Calibration

Dans cette sous-section, nous présentons les résultats de la calibration du détecteur. Rappelons que pour calibrer le détecteur, l'émetteur et le détecteur doivent avoir la même conductivité hors-équilibre ($\sigma(t)$) qui est influencée par les étapes de fabrication. Ainsi, les paramètres libres du modèle de lissage peuvent être réduits.

La trace térahertz de l'émetteur et du détecteur de GaAs bombardé aux protons multi-énergies (GaAs : H+), obtenue après optimisation de la largeur du spectre et de l'amplitude, est présentée à la figure 3.13 (a). La mesure a été effectuée à la température ambiante. La puissance laser totale incidente sur l'antenne d'émission est de 9 mW et de 16 mW au détecteur. La tension appliquée à l'émetteur est de 50 V. Le maximum du champ térahertz se situe autour de 76 ps. Les deux principaux pics de l'impulsion

principale sont distants de 500 fs. Après le pic maximum, un deuxième minimum est présent. Les oscillations apparentes sur cette trace sont associées à l'absorption par la vapeur d'eau ; elles se terminent autour de 113 ps. En deçà de 74 ps et au-dessus de 113 ps, nous avons ajouté des données à valeur nulle du courant pour améliorer la résolution du spectre de la trace térahertz. La figure 3.13 (b) montre la TF de la trace térahertz sur une échelle semi-log. L'amplitude maximale est atteinte à 305 GHz et le signal arrive au niveau du bruit à 3.5 THz. Le rapport signal sur bruit obtenu sur la trace térahertz est plus grand que 600. Entre 1 et 3 THz, nous pouvons distinguer plus d'une dizaine de raies d'absorption importantes provenant de la vapeur d'eau. Dans les conditions d'excitation laser choisies, le spectre d'émission du GaAs : H+ ne dépend pas de la densité d'énergie⁴. Nous pouvons appliquer le modèle décrit par l'équation 1.78 en supposant que les caractéristiques de l'émetteur et du détecteur sont les mêmes.

Cependant, la présence d'un deuxième minimum dans la trace térahertz à la figure 3.13 indique qu'un élément du montage introduit un effet de différentiation temporelle du champ électrique émis par l'antenne. Ceci a pour effet de filtrer les basses fréquences du spectre de l'impulsion. Selon l'étude des antennes détectrices térahertz dans la thèse de S. Keiding, les dimensions de notre détecteur seraient en cause [38]. En effet, la distance entre les électrodes de notre détecteur fait 30 μm et la fréquence maximale détectée de 3.5 THz correspond à une longueur d'onde de 86 μm , donc les basses fréquences sont filtrées. Les données sur les antennes supraconductrices en fonction de la température, présentées plus loin, montrent plus clairement qu'un terme en ω doit être ajouté pour extraire correctement les caractéristiques temporelles intrinsèques.

La figure 3.14 montre le lissage du spectre de la figure 3.13 (b) en utilisant une largeur à mi-hauteur de 175 fs pour l'impulsion laser et un temps de montée τ_c de 0.3 ps. À noter que τ_c doit être ajusté initialement pour que l'enveloppe à haute fréquence soit lissée convenablement. Dans l'ensemble, le spectre est lissé de façon adéquate. À partir de ces conditions de lissage, nous obtenons un temps de recombinaison des porteurs τ_r de 0.9 ps pour des bornes de lissage entre 138 GHz et 4 THz. En changeant la borne de lissage inférieure, nous estimons l'incertitude sur τ_r à 0.1 ps.

Le choix de la position de la borne inférieure affecte l'évaluation de τ_r . Une étude en fonction d'un paramètre donné devra maintenir la borne basse fréquence fixe afin d'augmenter la précision sur la variation de τ_r avec la température ou l'intensité de la pompe. En maintenant les bornes de lissage fixes, l'incertitude obtenue pourrait être

⁴Nous avons vérifié pour d'autres densités d'énergie.

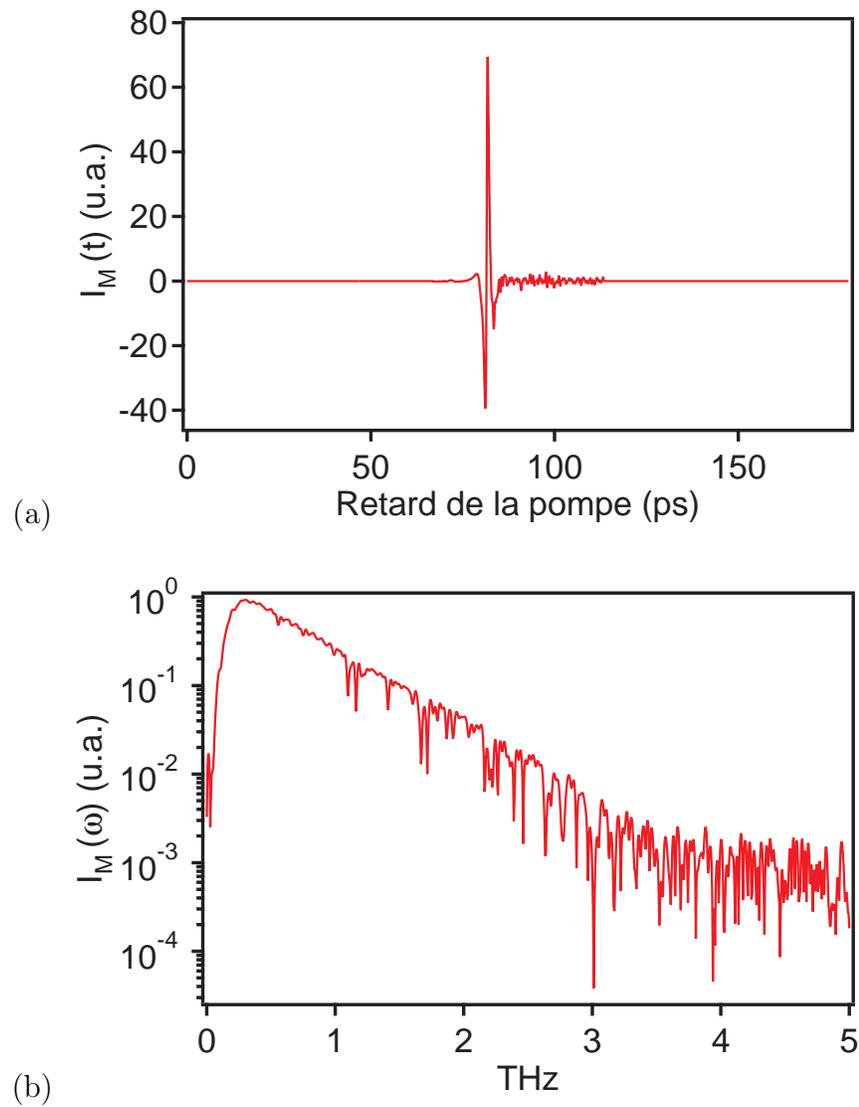


FIGURE 3.13 – (a) Trace térahertz d'un émetteur et d'un détecteur de GaAs : H+ à température ambiante avec ajout de points nuls (*padding*). (b) TF de la trace térahertz de la figure (a).

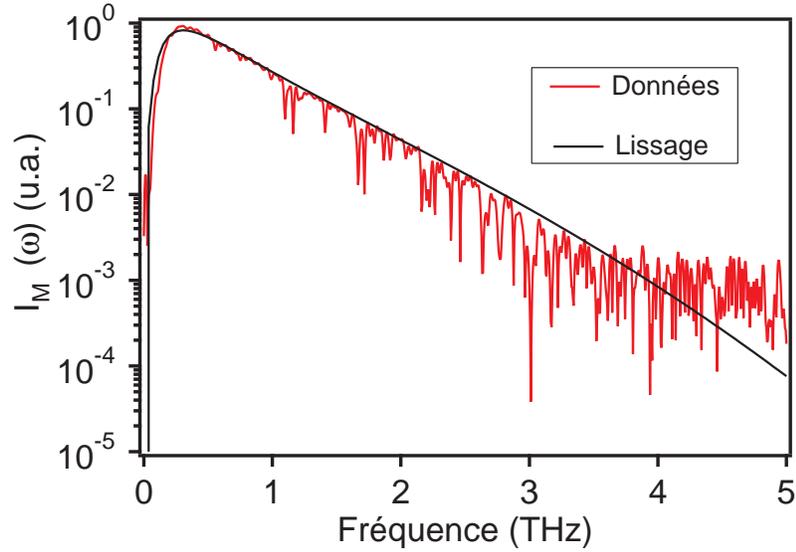


FIGURE 3.14 – La courbe rouge est la TF de la trace térahertz de la figure 3.13(a). La courbe noire est le lissage sans borne en utilisant le modèle de l'équation 1.78. Nous avons fixé la largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser l à 175 fs et le temps de montée τ_c du GaAs H+ multi-énergies à 0.3 ps.

| Caractéristiques | Temps |
|---------------------------------|------------------|
| Temps de montée τ_c | 0.3 ps |
| Temps de recombinaison τ_r | 0.9 ± 0.1 ps |

TABLEAU 3.2 – Caractéristiques du détecteur de GaAs : H+ obtenues à partir de la méthode de calibration développée dans le cadre de ce travail. La borne basse fréquence utilisée pour le lissage est à 138 GHz.

substantiellement inférieure à 10 %⁵.

Dans cette section, nous avons montré la trace térahertz d'un émetteur et d'un détecteur de GaAs : H+ ayant les mêmes propriétés hors-équilibre. À partir de la TF de la trace térahertz, nous avons déterminé les caractéristiques du détecteur que nous utilisons pour la caractérisation de l'antenne supraconductrice. Le tableau 3.2 résume les temps caractéristiques propres à notre détecteur de GaAs H+ multi-énergies que nous utilisons pour la suite de l'analyse des résultats. Une borne de lissage à 138 GHz est utilisée.

⁵En autant que l'intensité du signal détecté ne diminue pas

3.1.4 Antenne supraconductrice

Cette partie traite en profondeur des antennes supraconductrices. Nous présentons d’abord les généralités à propos de la description des antennes supraconductrices. Nous comparons la trace térahertz d’une antenne supraconductrice à celle d’une antenne de GaAs : H+. Ensuite, nous présentons le comportement en température des caractéristiques de l’antenne. Par la suite, les caractéristiques de l’antenne en fonction du courant, des effets d’accumulation et de l’intensité laser sont présentées. Les effets d’accumulation provenant du taux de répétition trop élevé du faisceau laser d’excitation seront finalement mis en évidence avec la méthode de résistivité temporelle.

Généralités

À la section 1.1 du chapitre théorique, nous avons mentionné que la solution à l’équation d’évolution d’un supraconducteur est la même que celle des photoporteurs dans le GaAs : H+. Une façon de renforcer cette hypothèse est de comparer la trace térahertz mesurée ($I_M(t)$) des deux antennes. À la figure 3.15 (a), nous comparons la trace de l’antenne d’émission supraconductrice (courbe rouge) avec celle de l’antenne GaAs : H+ (courbe bleue) dont le détecteur est le même pour les deux. L’allure temporelle de ces traces sont sensiblement les mêmes. À noter que les traces sont normalisées et que l’antenne de GaAs émet un champ électrique environ 10 fois plus élevé. Toutefois, le ration signal sur bruit est équivalent pour les deux antennes ⁶. Vers 9 ps, une petite structure est présente sur la trace térahertz de l’antenne supraconductrice qu’on peut associer à une réflexion du faisceau pompe transmis au travers de la couche. Le retard entre l’impulsion principale et la structure est d’environ 6 ps. Or, l’indice de réfraction dans le visible du saphir est d’environ 1.76 (selon la compagnie Crystec) et pour un substrat de 0.5 mm d’épaisseur, un aller-retour correspond à 1 mm. En calculant la vitesse de la lumière qui parcourt un milieu avec un indice de réfraction de 1.76 sur 1 mm, nous obtenons un retard de 5.9 ps. L’accord est excellent et indique que l’origine est bien une réflexion de la pompe. En plus, notons la présence d’un deuxième minimum tout juste après le maximum. La ligne pointillée indique le niveau de référence.

Nous avons vu à la figure 3.14, lors de la calibration du détecteur, que l’antenne d’émission de GaAs : H+ pouvait être modélisée en utilisant une conductivité hors-équilibre ($\sigma(t)$) dont l’évolution des porteurs est décrite par l’équation 1.3. La corres-

⁶Note importante, nous n’avons pas vérifié la polarité du champ électrique des antennes.

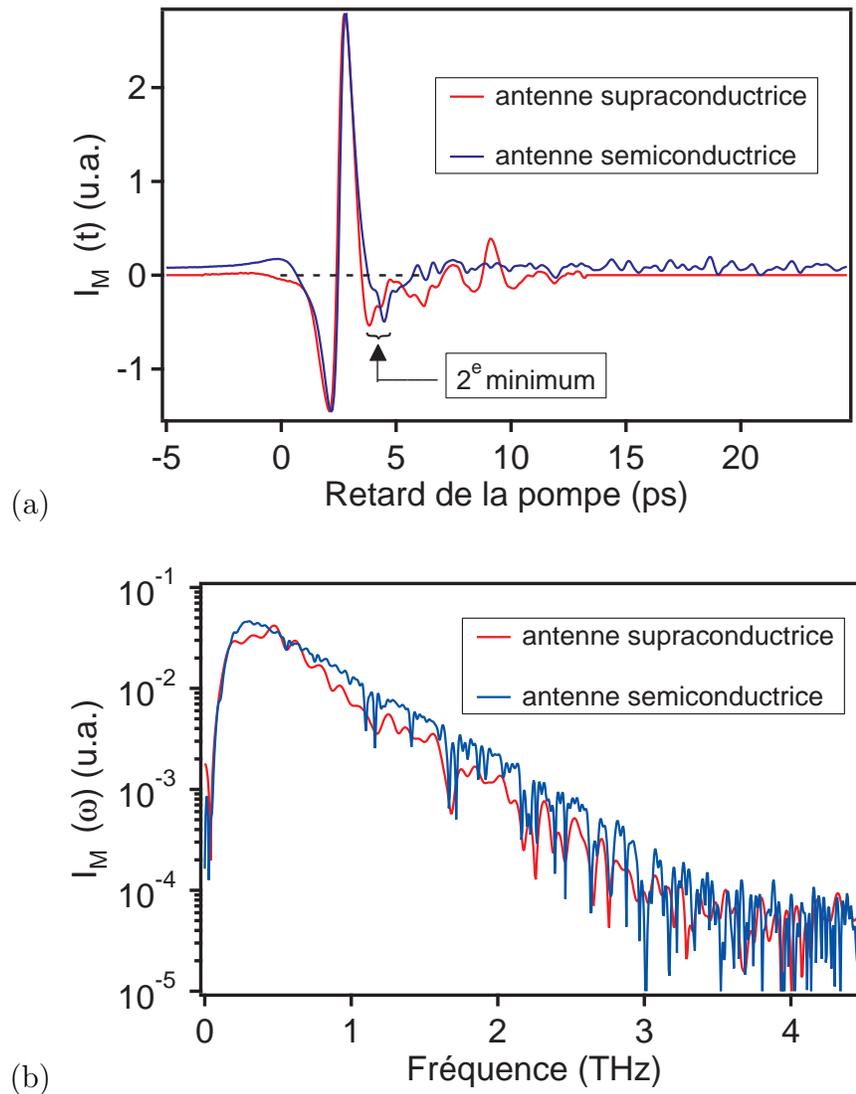


FIGURE 3.15 – Comparaison des antennes d’émission supraconductrice et semiconductrice ayant le même détecteur. L’antenne supraconductrice 070823YA (60 nm) (courbe rouge) est à 30 K et le courant appliqué I_{cc} est de 80 mA. L’antenne semiconductrice (courbe bleue) est du GaAs H+ multi-énergies dont les caractéristiques sont les mêmes que le détecteur. (a) Traces térahertz des antennes d’émission et (b) est la transformée de Fourier TF des traces térahertz.

pondance temporelle et spectrale presque identique entre les antennes d'émission supraconductrice et semiconductrice suggère fortement une modélisation similaire. Selon l'approche phénoménologique de Rothwarf et Taylor (éq. 1.14), une faible perturbation à température finie permet d'écrire l'évolution de la relaxation des paires comme une exponentielle décroissante (éq. 1.22). Des études en température et en puissance pourraient possiblement distinguer entre les deux approches et renforcer l'utilisation d'une exponentielle décroissante pour décrire la relaxation des paires.

Les résultats présentés à la figure 3.15 sont très importants pour trois raisons. La première raison est que la largeur du spectre mesuré pour l'antenne de YBCO est supérieure à celle présentée dans la plupart des articles portant sur les antennes supraconductrices dans la littérature ⁷. Ceci pourrait être expliqué par le fait que nos échantillons sont de meilleure qualité ⁸ ou bien que notre système de détection térahertz a une plus grande sensibilité à haute fréquence. La deuxième raison est que la possible mise en évidence d'une reformation des paires de façon exponentielle et non de façon bimoléculaire (1.17) apporte une partie de la solution au problème souligné par Hangyo et *al.* [3]. Ils avaient souligné que le modèle phénoménologique de Rothwarf et Taylor n'était pas adéquat pour expliquer les valeurs de τ_r extraites des antennes en fonction de la puissance et de la température. Nous montrerons que la forme de l'évolution des paires avec le temps $N_s(t)$ que nous avons retenue permet d'extraire de façon adéquate les caractéristiques temporelles de l'antenne supraconductrice de YBCO. La dernière et troisième raison est liée à l'allure de la trace térahertz qui contient deux minima. Ce qui veut dire qu'un élément du montage produit l'équivalent d'une différentiation temporelle de l'impulsion térahertz. Nous pensons que l'origine de cet effet est reliée à la dimension du détecteur. En effet, la distance entre les électrodes de l'antenne de détection est plus petite que la plus petite longueur d'onde du spectre de l'impulsion térahertz. L'effet qui en résulte est de favoriser la détection des hautes fréquences. Pour en tenir compte, il faut multiplier la réponse spectrale par ω (voir fig. 1.7). L'équivalent temporelle est une différentiation.

Puisque l'effet de filtrage est aussi présent sur l'antenne de GaAs : H+, l'origine de cette correction ne serait pas reliée à l'effet de l'inductance cinétique comme suggérée par Lin et *al.* pour relier les caractéristiques de l'antenne supraconductrice à celles mesurées en pompe-sonde [14].

⁷Voir les articles de Murakami et *al.* pour fin de comparaison [52, 53].

⁸ τ_c serait plus court à cause possiblement d'une plus faible distribution de la stoechiométrie de YBCO.

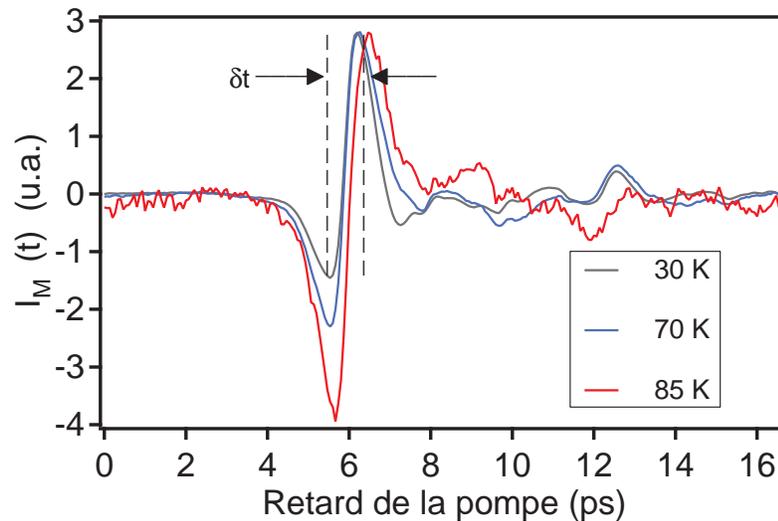


FIGURE 3.16 – Trace térahertz en fonction de la température de l’antenne 070823YA pour une puissance d’excitation de 9 mW. Les traces mesurées à 30 K, 70 K et 85 K sont présentées pour des courants appliqués respectifs de 80 mA, 20 mA et 2 mA.

Effets de la température

La figure 3.16 montre le comportement de la trace térahertz à trois températures pour l’antenne supraconductrice 070823YA. Seule la puissance d’excitation a été maintenue constante à 9 mW. Le courant continu dans l’antenne est maintenu idéalement en dessous du courant critique ⁹, c’est pourquoi le courant ne peut pas être le même en fonction de la température. Les traces térahertz ont été prises à 30 K avec un courant de 80 mA (courbe noire), 70 K et 20 mA (courbe bleue), et 85 K avec un courant de 2 mA (courbe rouge). L’amplitude des traces a été normalisée par rapport au pic positif à 30 K. La position du maximum correspond approximativement à l’endroit où la densité de paires brisées (ou la vitesse des paires) est maximale (voir l’équivalent à la figure 1.3). Le minimum secondaire avec une faible amplitude est situé à 7.5 ps. L’amplitude du minimum principal à 5.8 ps augmente en fonction de la température. Quant à la partie après le maximum, elle prend plus de temps à retourner vers zéro à plus haute température. En associant une différence de temps (δt) entre le minimum principal et le maximum, nous pouvons qualitativement décrire l’évolution du spectre : la largeur temporelle de l’impulsion augmente, donc la largeur du spectre en fréquence diminue.

⁹La tension limite minimale sur la source de courant est de 1 V.

| Courbe | Température | Courant continu | Courant critique | δt |
|--------|-------------|-----------------|------------------|------------|
| Noire | 30 K | 80 mA | > 100 mA | 0.67 ps |
| Bleue | 70 K | 20 mA | 11 mA | 0.73 ps |
| Rouge | 85 K | 2 mA | < 2 mA | 0.87 ps |

TABLEAU 3.3 – Effet de la température sur la différence de temps δt entre le minimum principal et le maximum de la trace térahertz ($I_M(t)$) de YBCO. La puissance d’excitation est de 9 mW.

Le tableau 3.3 résume les conditions expérimentales et les observations. Il présente la différence de temps δt entre le minimum et le maximum de la trace térahertz en fonction de la température qui caractérise de façon qualitative l’évolution du spectre avec la température. δt passe de 0.67 ps à 30 K à 0.87 ps à 85 K.

L’augmentation de la largeur δt entre le minimum et le maximum en fonction de la température indique que le contenu en fréquence diminue. Selon la solution décrivant la relaxation des quasiparticules en surplus (ou la reformation des paires) à l’équation 1.22, une diminution du contenu en fréquence signifie que τ_c et/ou τ_r augmente.

L’augmentation de δt et la diminution de l’amplitude du maximum par rapport à l’amplitude du minimum principal a été rapportée par Tonouchi et *al.* [31]. Ils mentionnent tout comme Hangyo et *al.* [54] que la trace térahertz ne dépend pas de l’épaisseur de la couche supraconductrice. Ils ont mesuré la trace térahertz pour des antennes ayant des épaisseurs entre 70 et 350 nm. Notre échantillon fait 65 nm d’épaisseur. Leur interprétation de l’indépendance des temps de relaxation face à l’épaisseur de la couche mince est que les phonons hors-équilibre dans l’approche de Rothwarf-Taylor [8] n’influencent pas l’évaluation du temps de relaxation à partir de la trace. Nous pouvons aussi interpréter leurs résultats en fonction du modèle à deux températures : la variation de température des phonons n’affecte pas l’évaluation du temps de relaxation (sec. 1.4). Si le terme provenant des phonons (ou autres excitations bosoniques) n’est pas important, alors le terme bimoléculaire devrait dominer (éq. 1.17) si le nombre de quasiparticules à l’équilibre thermique est plus faible que le nombre de quasiparticules en surplus. Sinon, la solution où les quasiparticules en surplus forment des paires avec les quasiparticules en équilibre thermique est envisageable (éq. 1.20).

$I_M(t)$ en fonction de la température indique que le contenu en fréquence de l’impulsion térahertz diminue, mais nous ne savons pas comment T affecte τ_c et τ_r . Nous aimerions savoir si τ_c change en augmentant la température, car les conséquences lors du lissage pourraient être importantes. La figure 3.17 présente un exemple de la trace térahertz

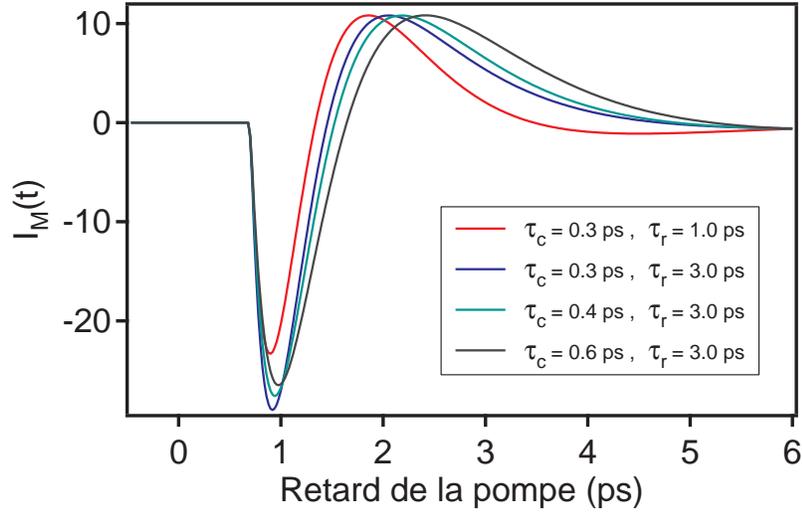


FIGURE 3.17 – Simulation de la trace térahertz $I_M(t)$ pour différents τ_r et τ_c de l’antenne d’émission. Les caractéristiques du détecteur sont fixes et définies par $\tau_r = 1.0$ ps et $\tau_c = 0.3$ ps. La perturbation de la pompe est fixe.

($I_M(t)$, voir éq. 1.75) simulée pour différents τ_r et τ_c de l’antenne d’émission pour une perturbation fixe. Les caractéristiques du détecteur ne changent pas et sont définies par $\tau_r = 1.0$ ps et $\tau_c = 0.3$ ps. La convolution avec le faisceau laser n’a pas été prise en compte. Tout comme à la figure 3.16, nous avons normalisé les traces par rapport au maximum.

La courbe en rouge est considérée comme étant la trace térahertz à basse température avec $\tau_r = 1$ ps et $\tau_c = 0.3$ ps. Elle sera notre référence. En maintenant $\tau_c = 0.3$ ps et en augmentant τ_r à 3 ps, nous obtenons la trace térahertz qui est représentée par la courbe bleue. Nous observons que δt augmente dans ce cas. Afin d’observer l’effet d’un changement possible de τ_c sur la trace [55,56], nous avons varié celui-ci en gardant τ_r fixe à 3 ps. Les courbes verte et noire ont respectivement un temps de montée de 0.4 ps et de 0.6 ps. Par rapport à la courbe de référence (courbe rouge), l’amplitude du minimum principal de la courbe verte est plus importante, mais elle diminue par rapport à la courbe bleue. En augmentant davantage τ_c à la courbe noire, δt augmente, mais nous pouvons désormais observer un effet distinct à τ_c sur la trace térahertz : la position du minimum dans le temps évolue. Un fait important de notre modélisation est que nous observons une faible augmentation de l’amplitude du minimum malgré le fait que nous ayons utilisé une perturbation fixe. Cette observation indique que l’unique mesure de l’amplitude du pic

pour évaluer le comportement en température du champ térahertz émis est influencée à la hausse lorsque τ_r (et/ ou τ_c) augmente avec la température. Une mesure plus adéquate serait d'utiliser l'amplitude A obtenue à partir du lissage du spectre (éq. 1.78).

Par ailleurs, en regardant attentivement nos données à la figure 3.16, nous remarquons que la position du minimum change de 0.133 ps à 85 K par rapport à celle à 30 K et à 70 K qui sont à une position identique. La conclusion est qu'il est possible que τ_c change près de la température critique du supraconducteur après 70 K. En gardant en tête cette possibilité, nous sommes maintenant en mesure d'extraire le temps de relaxation τ_r .

La figure 3.18 montre la transformée de Fourier des traces térahertz $I_M(\omega)$ de la figure 3.16. Sur les spectres, nous avons ajouté la courbe de lissage en utilisant l'équation 1.78 multipliée par ω pour tenir compte de l'effet de filtrage des basses fréquences. Rappelons que seul le temps de relaxation de l'antenne d'émission τ_r est libre dans le modèle de lissage choisi. Le temps de montée de l'antenne d'émission τ_c est déterminé à 23 K et gardé fixe pour toutes les températures et pour que les hautes fréquences soient lissées au niveau de l'enveloppe principale. L'enveloppe se situe au-dessus des raies d'absorption de l'eau. C'est ce qu'on peut observer pour des fréquences supérieures à 1 THz jusqu'à ce que la courbe de lissage atteigne le niveau de bruit vers 3.5 THz à 30 K. Près de 0.5 THz, la courbe passe en dessous de l'amplitude du spectre. Cette divergence est reliée à l'anomalie due à une deuxième excitation par le faisceau pompe que nous avons souligné en présentant la figure 3.15. Elle a pour effet d'ajouter du poids spectral à 0.5 THz. Finalement, les courbes de lissage montrent que le maximum se déplace vers les basses fréquences en fonction de la température.

En utilisant un modèle identique à celui utilisé pour l'antenne de GaAs : H+, nous lisons convenablement le spectre émis par l'antenne supraconductrice pour toutes les températures et en ajustant **un seul paramètre** en fonction de la température. La figure 3.19 présente la valeur de τ_r extraite en fonction de la température ¹⁰. À basse température entre 23 K et 55 K, τ_r est environ constant à 0.7-0.9 ps. Au-delà de 55 K jusqu'à la température critique T_c de 86.5 K, τ_r augmente. Sa valeur passe de 0.9 ps à 16 ps. La puissance d'émission de l'antenne diminue en s'approchant de T_c , car nous devons diminuer la densité de courant traversant l'antenne pour être en-dessous du courant critique. Dans ce contexte, vers la température critique, le rapport signal sur bruit augmente. Nous avons estimé les barres d'erreurs à environ 25 % sur toute la plage de température. Ces barres tiennent compte de l'incertitude provenant de la calibration du

¹⁰Les données ainsi que les lissages pour les autres températures se retrouvent à l'annexe D.

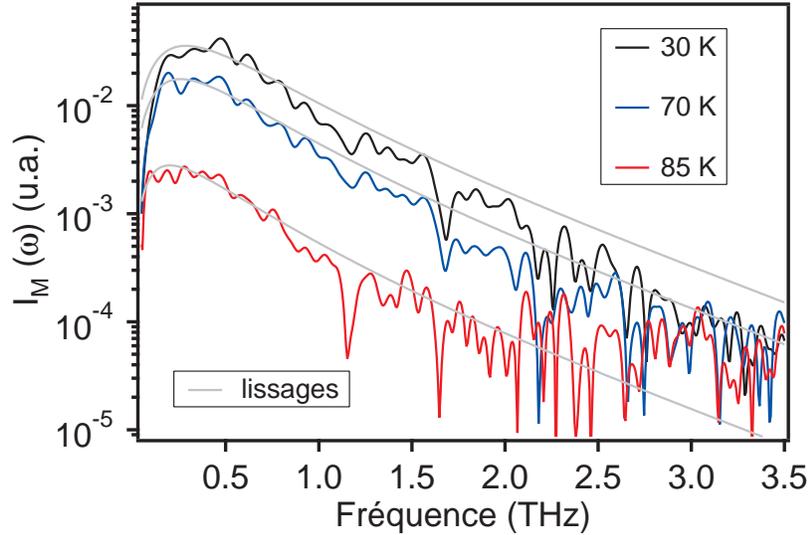


FIGURE 3.18 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ en fonction de la température de l’antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d’excitation de 9 mW. Le temps de montée de l’antenne d’émission τ_c a été fixé à 187 fs à 23 K. Le courant continu appliqué est 80 mA, 20 mA et 2 mA pour respectivement 30 K, 70 K et 85 K. À noter que les valeurs des lissages sont présentées lors de la description de la figure 3.19.

détecteur, de l’alignement des antennes et de la position des bornes de lissage. C’est principalement une erreur absolue, car lorsque la plupart des paramètres de lissage sont fixés, l’incertitude sur la variation de τ_r est inférieure à 10 % d’après l’écart type obtenu avec le programme de lissage IGOR Pro. La figure 3.19 montre les résultats principaux de cette thèse. Le temps de relaxation τ_r extrait à basse température correspond à certains résultats en pompe-sonde dans la littérature [33], mais pas à tous [15, 46, 48] où un écart de 0.5 ps à 1.5 ps est observé. Tonouchi et *al.* [31] ont rapporté qu’ils obtenaient un temps de relaxation beaucoup plus court que ce qui a été présenté dans la littérature avec la modélisation de leurs antennes, mais en ne justifiant pas clairement la différence. Lin et *al.* ont proposé l’ajout d’un effet de filtrage provenant de l’inductance cinétique des paires pour corriger cet écart [14]. Nous avons ajouté une correction identique dont l’origine n’est pas la même. Cette correction à apporter serait due à un effet géométrique du montage, c’est-à-dire à cause de la distance entre les électrodes du détecteur qui est plus petite que la longueur d’onde des fréquences mesurées. L’argument principal est que la trace térahertz ($I_M(t)$) de l’antenne de GaAs : H+ montre deux minima comme l’antenne supraconductrice. Ces minima suggèrent qu’il y a une différentiation supplémentaire (ef-

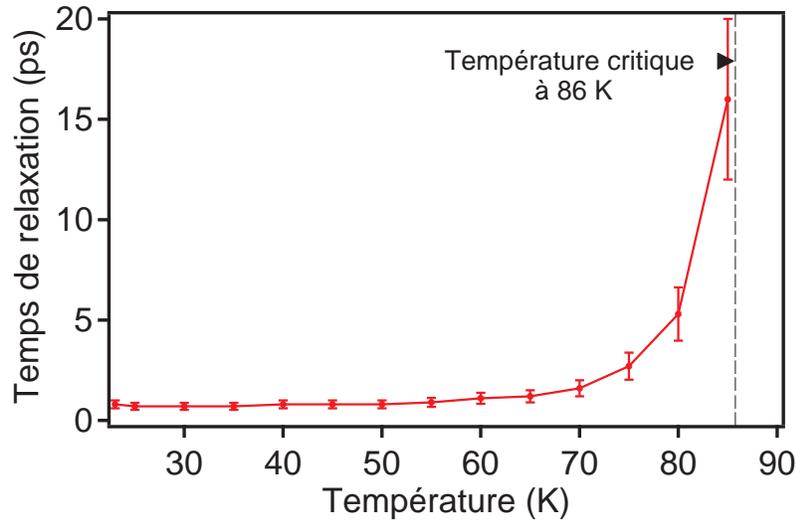


FIGURE 3.19 – Temps de relaxation de l’antenne d’émission (τ_r) 070823YA (60 nm) pour une puissance d’excitation de 9 mW à différentes températures. Les paramètres utilisés lors du lissage pour le détecteur sont résumés au tableau 3.2. τ_c de l’émetteur est fixé à 0.3 ps à 23 K. La fréquence du hacheur est de 3.23 kHz.

fet de filtrage) à tenir en compte dans le modèle du montage de spectroscopie dans le domaine temporel.

La majorité des valeurs de τ_r rapportées en pompe-sonde varient entre 1.5 ps et 2.5 ps et, en plus, le comportement en température n’est pas tout à fait le même [15, 26, 33, 46–48]. Nous pourrions invoquer l’hypothèse que la qualité de l’échantillon modifie la mesure du temps de relaxation, car Averitt et *al.* ont montré à partir de la technique pompe-visible et sonde-térahertz qu’un échantillon optimal en oxygène a un temps de relaxation de 2 ps et qu’un échantillon à faible oxygénation (sous-dopé) a un temps de relaxation de 3.5 ps [15]. Leurs températures critiques sont respectivement de 80 K et 50 K. Mais, dans le même article, ils montrent qu’avec une sonde visible, les rôles sont inversés : l’échantillon optimal a un temps de relaxation de 1.5 ps et l’échantillon sous-dopé de 0.3 ps. De toute évidence, nous n’avons aucune base de comparaison dans la littérature pour appuyer nos résultats et valider le modèle de l’antenne supraconductrice et du montage de spectroscopie.

Le fait que le temps de relaxation de l’antenne τ_r de 0.8 ps extrait à basse température sur nos échantillons puisse être de 2 à 3 fois plus court que les valeurs rapportées en pompe-sonde pourrait signifier que le modèle n’est pas complet même si le spectre est cor-

rectement décrit. Toutefois, une confirmation que τ_r se rapproche de la valeur intrinsèque de YBCO permettrait de réajuster les modèles utilisées pour décrire les caractéristiques des détecteurs ultra-rapides [57]. Dans le chapitre qui suivra, nous utiliserons le même échantillon pour mesurer le temps de relaxation par la technique pompe-sonde, ce qui nous permettra de contourner en partie les problèmes mentionnés aux paragraphes précédents à propos de la qualité de l'échantillon. Ainsi, nous pourrions confronter directement le modèle de l'antenne en comparant les temps de relaxation entre les deux techniques.

Le maximum principal autour de 7 ps de la trace térahertz $I_M(t_d)$ à la figure 3.16 peut être utilisé pour tirer des informations sur les propriétés de transport ($N_s(T)$) du supraconducteur en fonction de la température. La figure 3.20 illustre l'amplitude du maximum de la trace térahertz en fonction de la température pour deux séries de mesures dont les conditions de fonctionnement sont identiques sur la plage de température considérée. La courbe en mauve est associée aux données à basse température de l'antenne 070823YA. Sur toutes les antennes étudiées, cette plage de température (20-50 K) a toujours montré un $E_{THz}(t)$ presque constant avec la température. S'il y avait une quelconque dépendance du champ électrique avec la température, nous ne pourrions pas l'observer, car les problèmes d'alignement et de fluctuations du signal dans notre montage se traduisent par des barres d'erreurs systématiques d'environ 15 % sur l'amplitude du champ détecté. Après 52 K jusqu'à 70 K, la courbe rouge montre que $E_{THz}(t)$ ($I_M(t_d)$) de l'antenne 070813YA change d'un facteur 2. Malgré la présence des barres d'erreurs de 15 %, nous pouvons affirmer que l'amplitude augmente avec la température pour des paramètres fixes. Ces comportements qualitatifs basse et haute température de $E_{THz}(t)$ ont déjà été rapportés dans la littérature [14, 58, 59].

En plus, sur la figure 3.20, nous avons **uniquement** lissé les données de la courbe rouge à haute température pour une faible perturbation de la densité superfluide pour le **cas $\mathbf{J} = \mathbf{cte}$** sans effet des quasiparticules ($A_1(T)$) et le **cas $\mathbf{J} \neq \mathbf{cte}$** ou le **cas $\mathbf{J} = \mathbf{cte}$ avec** influence des quasiparticules ($A_2(T)$). Les données de l'antenne 070823YA (courbe mauve) sont un guide pour le comportement à basse température. Pour tous les lissages, nous avons utilisé le comportement de $N_s(T)$ mesuré par Hosseini et *al.* [60] qui nous permet d'obtenir le comportement en température du gap d'énergie $\Delta(T)$ où $N_s(T) \propto \Delta^2(T)$.

Tout d'abord, nous attribuons les fluctuations de $I_M(t_d)$ au problème de vibrations du cryostat. En effet, à cause du cryostat à compression mécanique que nous avons utilisé et le manque de stabilité du support à cryostat, nous devons périodiquement

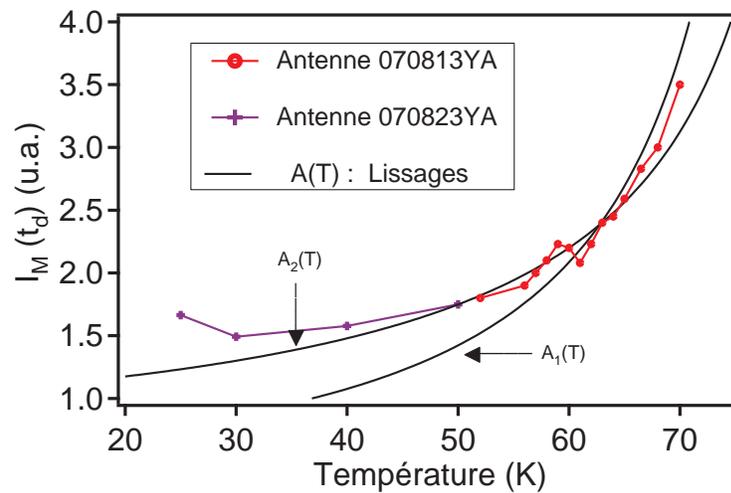


FIGURE 3.20 – Comportement en température de l’amplitude de la trace térahertz évaluée au maximum ($I_M(t_d)$) des antennes 070813YA et 070823YA pour une même puissance d’excitation (9 mW) et un même courant continu appliqué (50 mA). Seulement les données de la courbe rouge ont été lissées. La courbe de lissage marquée $A_1(T)$ utilise l’amplitude créée par l’inductance cinétique sans effet des quasiparticules (cas $\underline{J} = \text{cte}$). Quant à la courbe de lissage marquée $A_2(T)$, le comportement en température du cas $\underline{J} \neq \text{cte}$ ou le **cas $\underline{J} = \text{cte}$ avec** influence des quasiparticules a été utilisé. La dépendance en température du temps de relaxation n’est pas considérée.

réajuster la position de l'antenne après quelques mesures. De plus, l'idéal serait d'inclure la dépendance en température du temps de relaxation dans le modèle de lissage, car le temps de relaxation τ_r change avec la température (voir fig. 3.19). Cependant, τ_r est pratiquement une constante sur la plage de température considérée.

Le comportement en température de l'amplitude d'émission suggère que le modèle $J \neq \text{cte}$ est plus adéquat si la contribution des quasiparticules est négligeable sur l'accélération des paires. Cependant, le **cas $J = \text{cte avec}$** influence des quasiparticules pourrait aussi expliquer cette dépendance. Donc, dans ce scénario, la présence de quasiparticules atténue l'amplitude du champ électrique provoqué par l'accélération des paires. La forme que nous avons proposée dans la théorie (éq. 1.44) est bien décrite par un terme d'amplitude de type $1/\Delta^3(T)$ qui va comme l'inverse du cube du gap supraconducteur ¹¹. La mesure de la polarité du champ électrique d'une antenne supraconductrice par rapport à une antenne semiconductrice permettrait d'indiquer le scénario le plus adéquat. Nous poursuivons ce chapitre en décrivant les autres caractéristiques de l'antenne supraconductrice après avoir montré les effets d'une distribution de T_c sur les caractéristiques de l'antenne supraconductrice.

Effets d'une distribution de T_c

À la section 3.1.1, nous avons mentionné que l'antenne 070831YA dont la couche de YBCO fait 38 nm a une distribution de T_c possiblement due à une non-uniformité des oxygènes dans les chaînes de cuivre ou à cause de mauvaises jonctions de grains. Nous présentons à la figure 3.21 une comparaison des caractéristiques de la trace térahertz **(a)** et du spectre **(b)** des antennes 070831YA et 070823YA à basse température et basse puissance. En **(a)**, nous avons ajusté les amplitudes pour mieux comparer les traces. Le minimum principal de l'antenne de 38 nm est plus intense et large que l'antenne de 60 nm. La pente après le maximum est plus importante pour la couche de 38 nm. Nous notons la présence de la réflexion de la pompe à 12.5 ps qui est plus importante pour la couche de 38 nm. En **(b)**, nous distinguons pour la couche de 38 nm que le maximum du spectre est à plus basse fréquence et que son contenu en fréquence est plus étroit. Nous évaluons la fréquence de coupure au niveau du rapport signal sur bruit à environ 1.9 THz, alors que pour la même chute d'amplitude, la fréquence de coupure est de 2.7 THz pour l'antenne de qualité. À partir du lissage du spectre de l'antenne 070831YA de 38 nm, nous avons déduit un temps de relaxation τ_r de 2 ps et un temps de montée τ_c de

¹¹Voir ; dépendance de la température, à la fin de la section 1.2.1

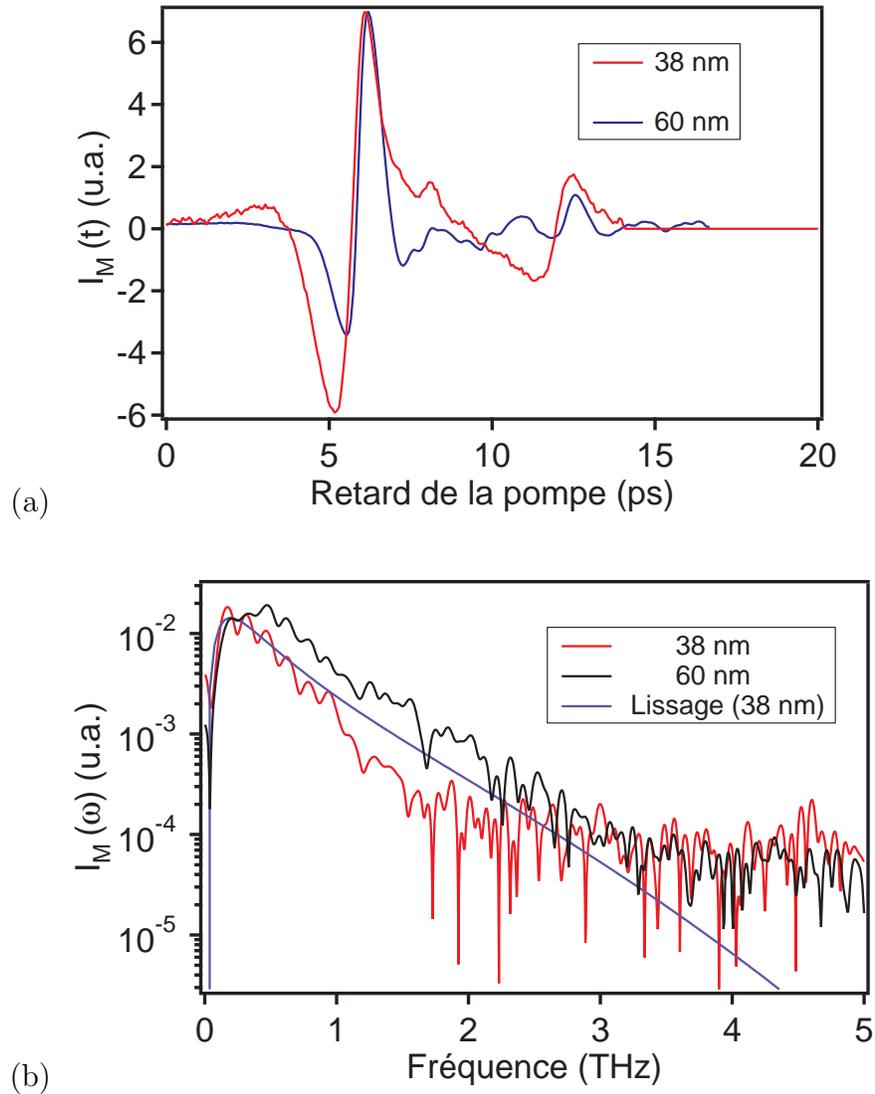


FIGURE 3.21 – Caractéristiques de l’antenne 070831YA à 20 K pour un courant appliqué I_{cc} de 30 mA et une puissance d’excitation de 2 mW comparées à l’antenne 070823YA de 60 nm à 30 K (9 mW et 80 mA). Les paramètres utilisés lors du lissage pour le détecteur sont résumés au tableau 3.2. (a) Traces térahertz des antennes d’émission et (b) est la transformée de Fourier TF des traces térahertz.

0.8 ps. En comparant ces caractéristiques avec celles de l'antenne 070823YA (60 nm) à la figure 3.19, nous constatons que τ_r et τ_c sont environ un facteur 2 plus élevés (relaxation plus lente).

Nous avons observé que le rapport entre le minimum et le maximum de la trace térahertz de la couche à 38 nm est plus important que la couche à 60 nm. Nous avons observé un tel changement lors de l'étude en température à la figure 3.16. Pourtant, la couche de 38 nm absorbe moins de photons qu'une couche de 60 nm pour une même densité de photons incidents, donc la couche de 38 nm devrait moins chauffer. En effet, le rapport du pic maximum avec la réflexion à 12.5 ps pour la couche de 38 nm est plus faible, ce qui indique que l'absorption du faisceau laser par la couche est moins importante. Alors, l'hypothèse la plus simple pour expliquer une différence des temps de relaxation, si les propriétés intrinsèques sont les mêmes pour les deux couches, est que la température locale de l'antenne est plus élevée que celle que nous mesurons en réalité. Dans ce cas, l'hypothèse des jonctions de grains avec une faible densité de courant serait renforcée : la densité de courant circulant dans l'antenne serait au-dessus du courant critique et entraînerait des pertes et ainsi une augmentation de la température. D'après nos résultats à la figure 3.19, l'effet de chauffage serait de 45 K si les propriétés intrinsèques des grains sont les mêmes pour les deux couches. Par ailleurs, nous n'avons pas observé de changement aussi important avec la température pour τ_c . Donc, peut-être que les défauts structuraux aux jonctions (ou autres) seraient en cause pour expliquer une faible fréquence de coupure. En conclusion, l'hypothèse selon laquelle nos échantillons seraient de meilleure qualité (haute fréquence de coupure) serait plausible puisque les limites hautes fréquences d'émission des antennes supraconductrices rapportées dans les récents articles de Murakami et *al.* [52, 53] sont plus faibles. De plus, la présence des jonctions de grain peut nuire à l'évaluation adéquate du temps de relaxation à cause d'effet de chauffage.

Effet du courant

À la figure 3.22, nous avons superposé l'amplitude de trois traces térahertz pour trois densités de courant de l'antenne 070823YA (60 nm) à une température de 50 K. La puissance d'excitation est de 6 mW. Les traces à 30 mA et à 70 mA se superposent presque parfaitement. Celle à 8 mA semble légèrement différente près de 8 ps et plus étroite au niveau de la largeur du maximum. Toutefois, le rapport signal sur bruit est plus faible pour cette trace térahertz. Les petites différences de la courbe à 8 mA par rapport à

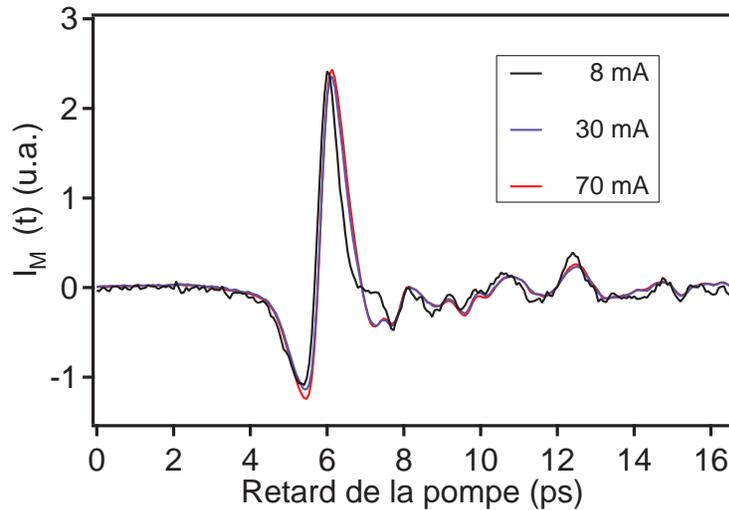


FIGURE 3.22 – Effet du courant sur la trace térahertz ($I_M(t)$) de l’antenne 070823YA (60 nm) à une température de 50 K et une puissance d’excitation de 6 mW.

celles obtenues à 30 mA et à 70 mA ne sont pas comparables aux effets provoqués par la température à la figure 3.16. Dans l’approche $\underline{J = cte}$ et pour une faible perturbation, le spectre ne doit pas dépendre de la grandeur de la densité de courant. Le comportement de l’amplitude du champ térahertz émis mesuré au maximum de la trace en fonction du courant continu est montré à la figure 3.23. L’amplitude du champ térahertz varie linéairement avec le courant continu appliqué et est en accord les modèles au chapitre 1. Ce comportement suggère aussi qu’il n’y a pas de problème d’échauffement où un comportement non-linéaire aurait été observé. Cette observation est valide lorsque le courant continu est inférieur au courant critique et a été rapportée dans la littérature [3, 13, 61, 62]. À titre de comparaison, la figure 3.24 montre l’effet de l’augmentation de la température sur l’amplitude du champ térahertz émis lorsque le courant appliqué est plus grand que le courant critique. La trace térahertz à 70 K montre que le temps de relaxation augmente avec la température, car le maximum est plus large. L’effet de chauffage du courant ne semble pas identique à l’effet de l’augmentation de température sur les processus d’excitation et de relaxation. La description théorique que nous avons faite de l’antenne térahertz ne permet pas d’expliquer une diminution de l’amplitude d’émission de l’antenne lorsque la température augmente (fig. 3.20), donc notre modèle est inadéquat pour le régime de fonctionnement au-dessus de la densité de courant critique. En effet, d’après la détermination du courant critique à la figure 3.6, la différence de

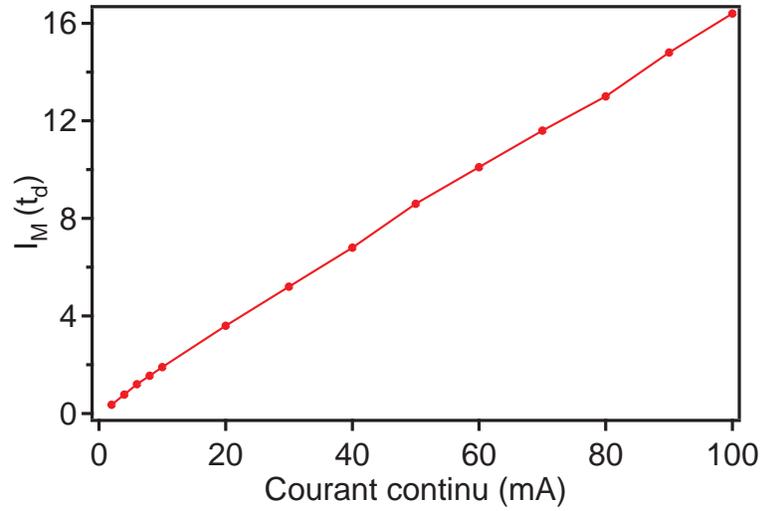


FIGURE 3.23 – Effet du courant sur l’amplitude du maxima $I_M(t_d)$ de la trace térahertz de l’antenne 070823YA (60 nm) à une température de 30 K et une puissance d’excitation de 6 mW.

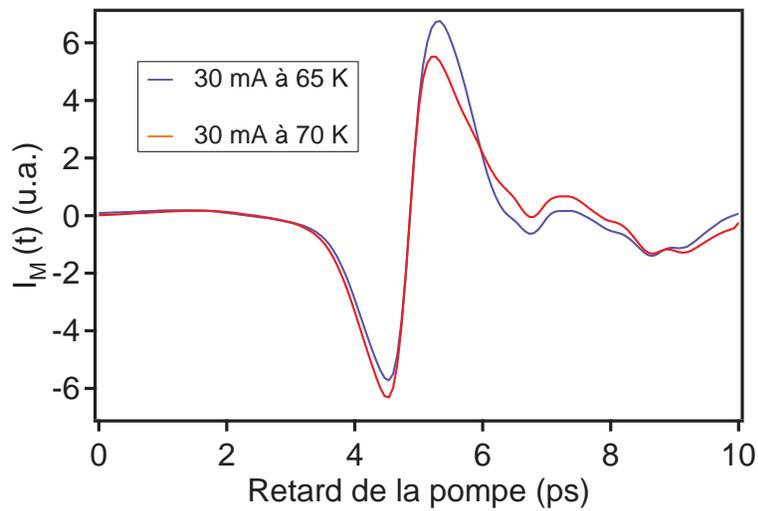


FIGURE 3.24 – Trace térahertz de l’antenne 070823YA (60 nm) pour deux températures différentes. Le courant est maintenu constant à 30 mA au-delà du courant critique dans les deux cas. La puissance d’excitation est de 9 mW.

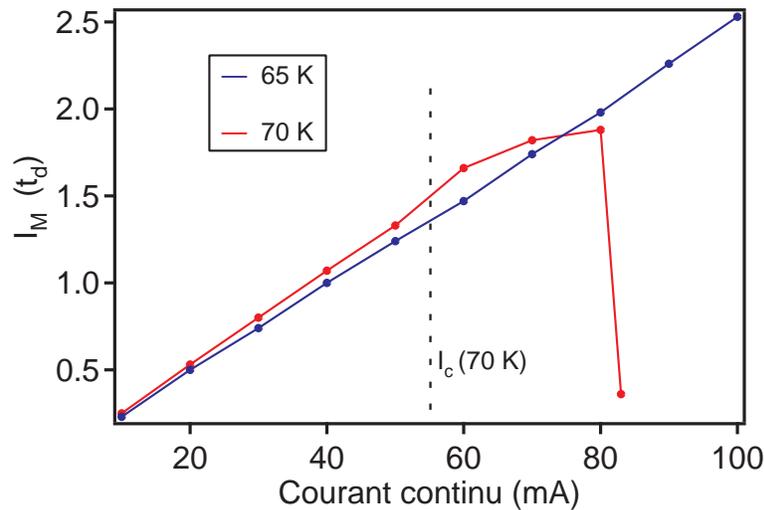


FIGURE 3.25 – Comportement de l’amplitude du maximum de la trace térahertz ($I_M(t_d)$) de l’antenne 070117YL (120 nm) en fonction du courant continu appliqué pour deux températures différentes à une puissance d’excitation de 8 mW. La courbe bleue présente un régime linéaire à 65 K alors que la courbe rouge illustre l’apparition d’un comportement non-linéaire lorsque la densité de courant critique est atteinte à 70 K. La ligne pointillée indique la région estimée du courant critique.

potentiel aux bornes du micro-pont de l’antenne est de quelques μV ou mV. La source de courant que nous utilisons ne peut pas nous empêcher d’aller au-dessus du courant critique, car la tension limite inférieure est de 2 V ($V_{lim} = 2V$). Rappelons que notre seuil pour définir le courant critique est 1 μV . Cette tension limite peut seulement nous empêcher d’aller trop loin dans l’état dissipatif.

Parce que l’antenne 070823YA (60 nm) a une résistance normale très élevée, nous ne pouvons pas étudier le comportement de l’antenne largement au-dessus du courant critique de crainte de l’abîmer. Toutefois, l’antenne 070117YL (120 nm), d’une épaisseur de 120 nm, montre un comportement spectaculaire près du courant critique pour une température de 70 K à la figure 3.25. À 65 K, l’amplitude du maximum de la trace térahertz demeure linéaire comme à la figure 3.23 puisque le courant critique est supérieur à 100 mA. Par contre, à 70 K pour un courant de 60 mA (ligne pointillée), le courant critique est atteint et l’antenne se retrouve dans un état dissipatif. L’amplitude chute abruptement à 83 mA. Sur le même graphique, nous observons deux comportements différents de l’amplitude du maximum de la trace térahertz en fonction de la température. À 70 K à partir de 60 mA, nous savons que l’antenne opère dans un régime où J est

au-dessus de la densité de courant critique, car nous pouvions mesurer une différence de potentiel d'une dizaine de μV à l'aide de la technique à quatre pointes sans faisceau d'excitation. Vers 80 mA, la tension mesurée était de 1.6 V. Pour une même température, la dépendance de I_{max} versus I_{appl} passe d'un régime linéaire à non-linéaire lorsque la densité de courant dépasse le courant critique.

Dans la littérature, le régime non-linéaire présente plusieurs comportements différents [13, 58, 63] ; dans certains cas l'amplitude d'émission augmente et dans d'autres cas, l'amplitude diminue. Un modèle phénoménologique a été développé pour expliquer ce type de comportement [13]. Ce n'est pas l'objectif de cette thèse de décrire le régime non-linéaire, mais d'identifier les limites de la zone optimale d'opération et d'améliorer la compréhension des antennes supraconductrices à l'intérieur de ces limites. Clairement, le fonctionnement de l'antenne au-dessus du courant critique n'est pas optimal : le spectre est moins large et l'amplitude d'émission plus basse.

Effets d'accumulation de chaleur

L'utilisation d'un faisceau laser d'excitation avec un haut taux de répétition peut provoquer des effets d'accumulation de chaleur en augmentant graduellement la température moyenne des phonons pendant la période d'éclairage, ce qui aura pour effet de modifier les propriétés observées. Le temps nécessaire à l'évacuation de l'énergie phononique de la couche mince est τ_{es} (éq. 1.74). Cependant, un autre phénomène pourrait survenir sans que la température des phonons augmente substantiellement : certains porteurs pourraient demeurer dans un état excité avant l'arrivée d'une autre impulsion laser (accumulation de la chaleur au niveau électronique), leur temps de relaxation serait très lent (τ_{rl}). Prenons l'exemple simple du GaAs où les photoporteurs peuvent demeurer plusieurs centaines de picosecondes dans la bande de conduction (fig. 1.2). Les effets d'accumulation de chaleur observés dépendront du temps le plus lent entre τ_{es} et τ_{rl} .

La résistivité temporelle permet de vérifier si la tension aux bornes de l'antenne évolue pendant la période d'éclairage par le faisceau laser. Comme nous utilisons un hacheur mécanique pour moduler l'éclairage et synchroniser le signal de détection, la période (ou cycle) correspond à la demie période définie par la fréquence du hacheur. Les figures 3.26 (a) et (b) montrent la tension aux bornes de l'antenne 070117YL (120 nm) pendant un cycle du hacheur pour deux températures différentes et courants différents. Le début et la fin du cycle d'éclairage sont indiqués par des flèches et des lignes pointillées. Nous supposons que la fin d'un cycle correspond au début de la diminution de la tension. En

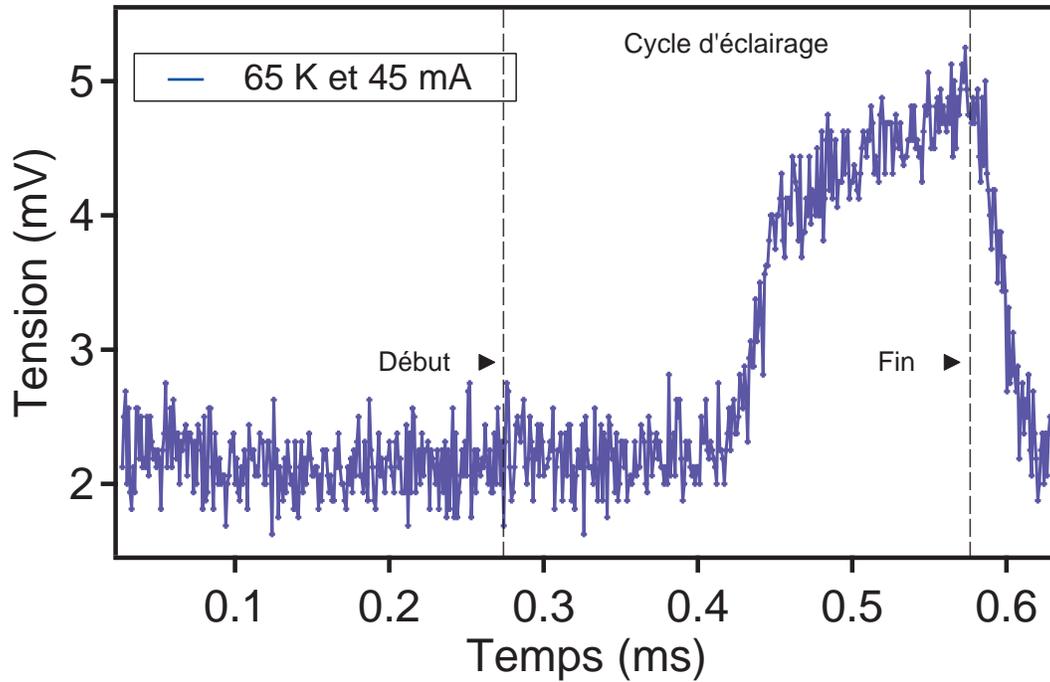
(a) à 65 K, le courant continu appliqué est de 45 mA et de 10 mA à 75 K. Au début du cycle, aucune tension est apparente. Le courant appliqué est en dessous de la densité de courant critique. Après 142 μs , une différence de potentiel apparaît et augmente à un taux presque constant sur 39 μs pour ensuite atteindre un régime où l'augmentation est plus lente. Ce régime dure 120 μs . En (b), le comportement est qualitativement le même. L'aspect important est qu'une différence de potentiel prend 90 μs à s'établir plutôt que 142 μs . L'amplitude maximale atteinte est d'environ 5 mV à 65 K et de 21 mV à 75 K.

Les résultats à la figure 3.26 montrent que pendant la période d'éclairage l'antenne passe d'un régime sous le courant critique à un régime bien au-dessus du courant critique puisque notre critère pour définir I_c à la figure 3.6 était de 1 μV . L'hypothèse la plus simple pour expliquer un tel comportement est de considérer que la température locale de l'échantillon augmente graduellement après chaque impulsion.

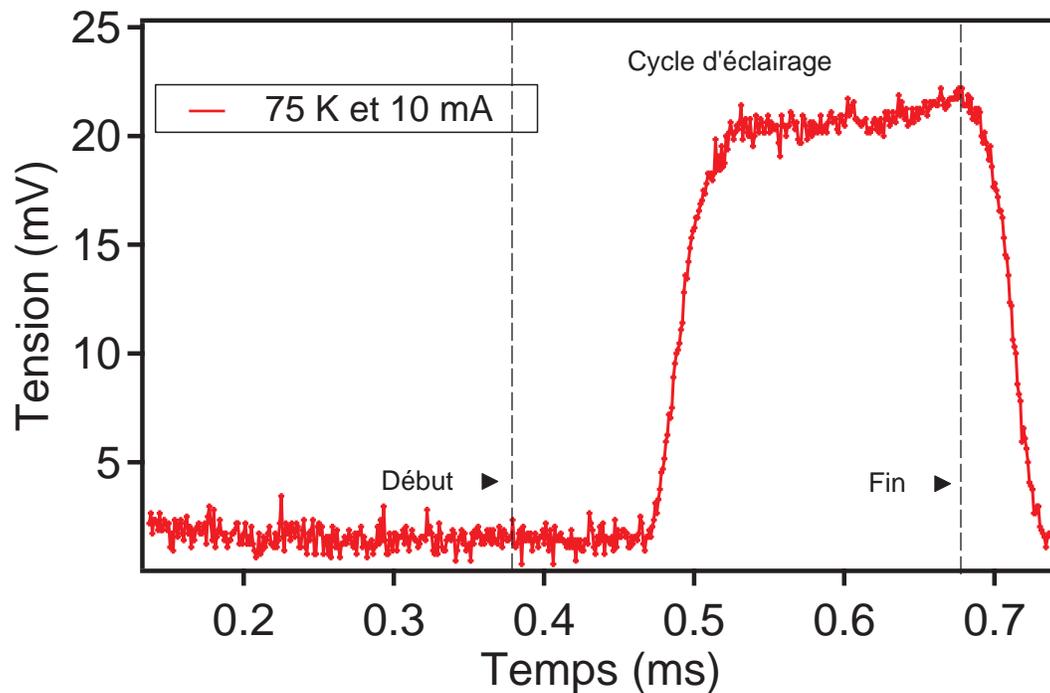
Nous pouvons estimer le changement de température ΔT à l'aide des courbes V-I¹² de l'antenne 070823YA (60 nm), car l'antenne 070117YL (120 nm) a environ les mêmes caractéristiques. La seule différence est son épaisseur qui est deux fois plus importante. Puisque la largeur du micro-pont des deux antennes est la même, un courant de 45 mA circulant dans l'antenne 070117YL représentera la même densité de courant critique qu'un courant de 22.5 mA dans l'antenne 070823YA. À la figure 3.26 (a), nous avons mesuré une différence de potentiel de 3-5 mV pour un courant de 45 mA à 65 K. À 65 K, le courant appliqué de 45 mA équivaut à 22.5 mA sur la figure 3.27 représentant les courbes V-I de 070823YA. Ainsi, nous pouvons estimer l'augmentation maximale de la température de la couche mince à 5 K. En effet, dans l'état dissipatif, l'énergie emmagasinée par les paires à cause du courant important pourrait se libérer et contribuer au réchauffement local de l'échantillon. Nous examinons cette possibilité dans ce qui suit.

À la température ambiante, la résistance de l'antenne 070117YL (micro-pont + électrodes) est de 326 Ω . La résistance dans l'état normal extrapolée sous T_c à 75 K est estimée à 81 Ω . D'après les calculs à l'annexe B, la contribution de cette couche à la résistance totale du micro-pont est environ de 50 %. Pour un courant de 45 mA, l'énergie maximale pouvant être dissipée pendant la période d'éclairage (301 μs) est de 25 μJ sur tout le pont de 400 μm et de 3.8 μJ si seulement la région éclairée (60 μm) devient normale. L'apport du faisceau pompe en énergie est au maximum de 18.5 μJ . De plus, l'apparition d'une différence de potentiel de 5 mV pour un courant de 45 mA suggère une résistance de 17 m Ω . La dissipation de l'énergie emmagasinée dans l'antenne à cause de

¹²Cette approche se rapproche de celle présentée par Hegmann et Preston [4]



(a)



(b)

FIGURE 3.26 – Mesure temporelle de la tension aux bornes du micro-pont de l'antenne 070117YL (120 nm). La fréquence du hacheur est de 1.66 kHz. La puissance d'excitation laser est de 46 mW. En (a), le courant appliqué est de 45 mA à 65 K et en (b) de 10 mA à 75 K. Les flèches indiquent le début et la fin de l'éclairage par le faisceau pompe.

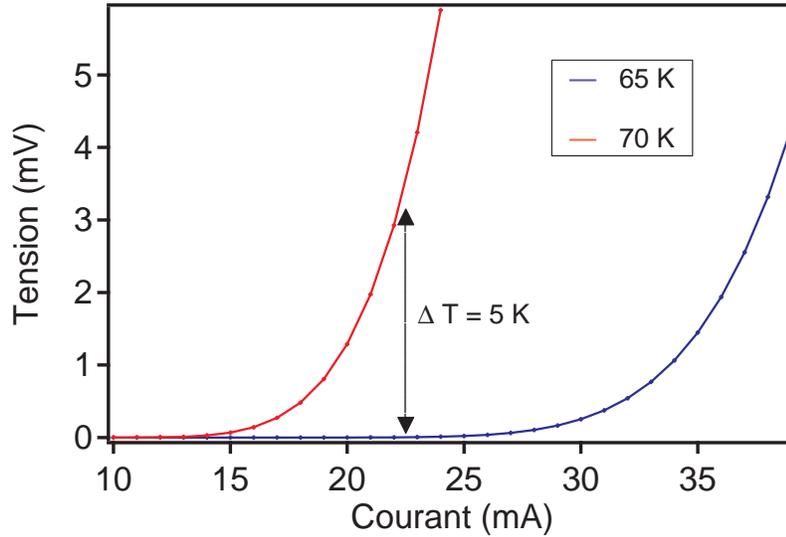


FIGURE 3.27 – Courbe V-I de l’antenne 070823YA dont les propriétés sont comparables à 070117YL. Évaluation du changement de température observée lors de la mesure de la résistivité temporelle (fig. 3.26). À 65 K, la différence de potentiel observée est de 3-5 mV autour de 22.5 mA.

l’apparition d’une différence de potentiel est négligeable par rapport à l’énergie provenant de la pompe d’excitation. Nous concluons que seulement l’effet de la pompe est important. Notre attention sera donc entièrement portée sur les effets de la pompe sur la température de la couche mince.

Si la température de la couche mince augmente, alors ceci suppose que le temps de réaction du contrôleur de température n’est pas assez rapide pour diminuer la puissance dissipée à l’élément chauffant (fig. 2.7) pour compenser l’apport d’énergie, car le thermomètre placé près du micro-pont excité par le faisceau laser (fig. 2.8) est très sensible au changement de température. Ce dernier va mesurer le changement de température du substrat, mais son temps de réponse sera limité par le temps de diffusion τ_{diff} de la chaleur dans le substrat défini par la chaleur spécifique volumique (C_p) et la conductivité thermique (κ) du substrat

$$\tau_{diff} = \frac{d^2 C_p}{\kappa} \quad (3.1)$$

où \mathbf{d} est la distance entre l’endroit éclairé et le thermomètre. Nous estimons \mathbf{d} à 0.2 cm. En utilisant $C_p = 0.55 \text{ J/cm}^3/\text{K}$ et $\kappa = 0.6 \text{ W/cm/K}$ mesurées près de 70 K [64], nous évaluons τ_{diff} à 37 ms. L’effet de chauffage local d’une série d’impulsions sur le micro-pont qui dure 301 μs ne peut être détecté par le thermomètre à 0.2 cm de distance, car

τ_{diff} de 37 ms est trop lent. Le système éclairé par des impulsions à intervalle de 12.5 ns peut être considéré statique du point de vue du thermomètre ¹³.

Regardons le problème sous un autre angle. Considérons que l'énergie du faisceau laser de 46 mW soit complètement absorbée par la couche mince et transférée entièrement dans le substrat sur une période d'éclairage de 301 μs (46 mW * 301 $\mu s = 13.8 \mu J$). Le volume du substrat fait 0.013 cm^3 (0.5 cm * 0.5 cm * 0.05 cm). Dans ces conditions et en utilisant la valeur mesurée de $C_p = 0.55 J/cm^3/K$ [64], nous évaluons la limite maximale d'augmentation de la température du substrat pendant le cycle d'éclairage à **2 mK**. Le substrat peut être considéré comme un réservoir de chaleur dont la température est considérée fixe. Donc, l'énergie absorbée à chaque impulsion sera transférée en un temps τ_{es} qui sera contrôlée par la résistance thermique R_k entre les deux matériaux (éq. 1.74).

Évaluons l'augmentation maximale de température si R_k est infinie. Admettons que la surface de la couche mince représente le quart de celle du substrat à cause de la géométrie, alors le volume obtenu est de $7.5 * 10^{-7} cm^3$ (l'épaisseur est de $120 * 10^{-7} cm$). La chaleur spécifique de YBCO (C_p) est de $1 J/cm^3/K$ à 65 K [4]. Finalement, nous estimons le changement de température maximal de la couche pendant un cycle d'éclairage à 18.4 K si la couche est complètement isolée du substrat.

Puisque nous observons un changement de température ΔT estimé à 5 K après un demi cycle d'éclairage, nos résultats et estimations indiquent que la majorité de l'énergie de la pompe a été accumulée dans la couche mince. L'énergie s'accumule dans la couche mince, car le temps de transfert de la chaleur (τ_{es}) vers le substrat n'est pas assez court. En effet, le temps de transfert de la chaleur τ_{es} est évalué entre 1.6 ns à 20 ns dans la littérature [4, 5, 17, 18, 44]. À partir de nos observations, nous pouvons estimer τ_{es} .

Si nous considérons que la région éclairée fait 30 μm de rayon et en utilisant la puissance du faisceau laser mesurée de 45 mW à un taux de répétition de 80 MHz (**avec le hacheur**), le coefficient d'absorption de YBCO à 750 nm de $1.1 * 10^5 cm^{-1}$ et la chaleur spécifique de YBCO près de 65 K est de $1 J (cm^3 K)^{-1}$, nous obtenons un changement de température d'environ 1.1 K (tab. 3.4) par impulsion. L'utilisation d'un changement de température de 1.1 K par impulsion se rapproche de nos conditions expérimentales et est du même ordre de grandeur que celui utilisé par Hegmann et Preston [4]. La figure 3.28 montre l'augmentation de la température phononique locale après chaque impulsion

¹³Lors de l'éclairage initial, le thermomètre détecte une augmentation de la température locale de plusieurs degrés, le contrôleur diminue la puissance dissipée à l'élément chauffant pour maintenir la température fixe. Après quelques minutes, un nouvel équilibre thermique est atteint.

| Paramètre | Valeur |
|----------------------------------|--------------------------|
| Point focal du laser | $R = 30 \mu m$ |
| Puissance du laser | $46 mW$ |
| Coefficient d'absorption optique | $1.1 * 10^5 cm^{-1}$ [4] |
| Chaleur spécifique | $1 J(cm^3 K)^{-1}$ |
| Épaisseur de la couche | $120 nm$ |
| Fréquence du laser | $80 MHz$ |

TABLEAU 3.4 – Paramètres et propriétés de YBCO utilisés pour le calcul de la température induite dans la couche mince par impulsion.

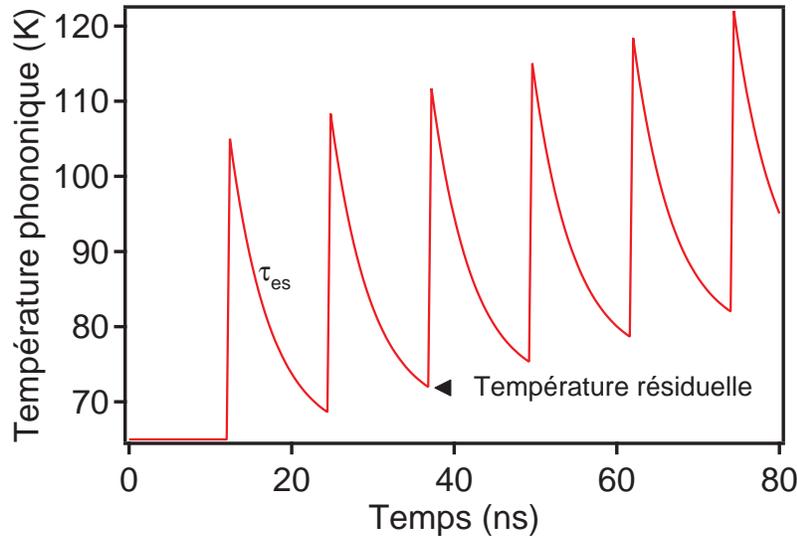


FIGURE 3.28 – Modélisation du changement de la température phononique T_p . La température résiduelle augmente linéaire après chaque impulsion.

pour $\tau_{rl} = 5$ ns lorsque la chaleur s'accumule dans la couche. Chaque impulsion provoque une augmentation de la température locale dont l'énergie est transférée au substrat en un temps τ_{es} . Nous définissons la température résiduelle comme étant la valeur de T_p tout juste avant une autre impulsion. T_p augmente linéairement d'une impulsion à l'autre. Le retard t_d de $181 \mu s$ entre l'établissement d'une différence de potentiel de 3 mV à la figure 3.26 (a) correspond à 7240 impulsions. Si la température phononique T_p résiduelle augmente linéairement sur cette période pour atteindre 5 K (ΔT), nous pouvons évaluer τ_{es} à partir de la relation

$$\Delta T = 7240 * (1.1K) e^{-\frac{12.5ns}{\tau_{es}}} \quad (3.2)$$

qui est la somme de la température résiduelle de chaque impulsion distante de 12.5 ns.

Dans cette approche, nous estimons τ_{es} à 1.7 ns. Si le temps de transfert τ_{es} est environ constant avec la température, il est donc normal d'observer un retard t_d plus court à 75 K (fig. 3.26 (b)), car la densité de courant critique est atteinte plus rapidement. En effet, le critère d'évaluation du retard est l'apparition d'une différence de potentielle après le début de la période d'éclairage. Nous notons que $\tau_{es} = 1.7$ ns correspond aux temps de transfert d'énergie vers le substrat les plus courts rapportés dans la littérature [4, 5, 17, 18, 44].

À partir de nos observations de la résistivité temporelle, nous concluons que l'augmentation de la température (électronique ou phononique) graduelle de l'échantillon modifie le comportement de l'amplitude du champ térahertz (voir figure 3.25) et par conséquent l'évaluation du temps de relaxation en fonction de la température [31, 65]. L'effet de l'augmentation de la température sur l'évaluation des propriétés provient du fait que nous moyennons sur plusieurs impulsions (voir sec. 1.6). Afin de bien caractériser le comportement de l'antenne térahertz supraconductrice au-dessus du courant critique, il faudrait diminuer le taux de répétition du laser pour découpler les effets d'accumulation de chaleur des mesures afin d'obtenir uniquement les propriétés intrinsèques. En présence de ces effets d'accumulation près de la température critique, il sera peut-être difficile d'obtenir un accord quantitatif entre les temps de relaxation (τ_r) extraits des antennes et ceux que nous obtiendrons grâce au pompe-sonde.

Effet de l'intensité de la pompe

Nous présentons à la figure 3.29 l'effet de la puissance de la pompe d'excitation sur la trace térahertz (a) et sur la TF de la trace térahertz (b). La température a été fixée à 40 K avec un courant de 50 mA. En premier lieu, nous observons que l'amplitude du minimum principal augmente par rapport à l'amplitude du maximum en fonction de l'augmentation de la puissance d'excitation laser. En deuxième lieu, la largeur du maximum augmente avec la puissance du laser, mais la pente après celui-ci semble constante. Dans le cas de l'étude en température, cette partie changeait : la pente de la trace après le maximum diminuait avec l'augmentation de la température (fig. 3.16). La TF de la trace térahertz à la figure 3.29 (b) indique que l'amplitude du spectre augmente à basse fréquence à 200 GHz, ce qui indique que τ_r augmente. De plus, la courbe de lissage à haute fréquence semble moins bien suivre l'enveloppe lorsque la puissance augmente. Il serait possible que l'on perde du contenu en hautes fréquences si le temps de montée τ_c augmente. Toutefois, à cause des nombreuses raies d'absorption provenant de la vapeur d'eau, il est difficile de statuer sur cette possibilité.

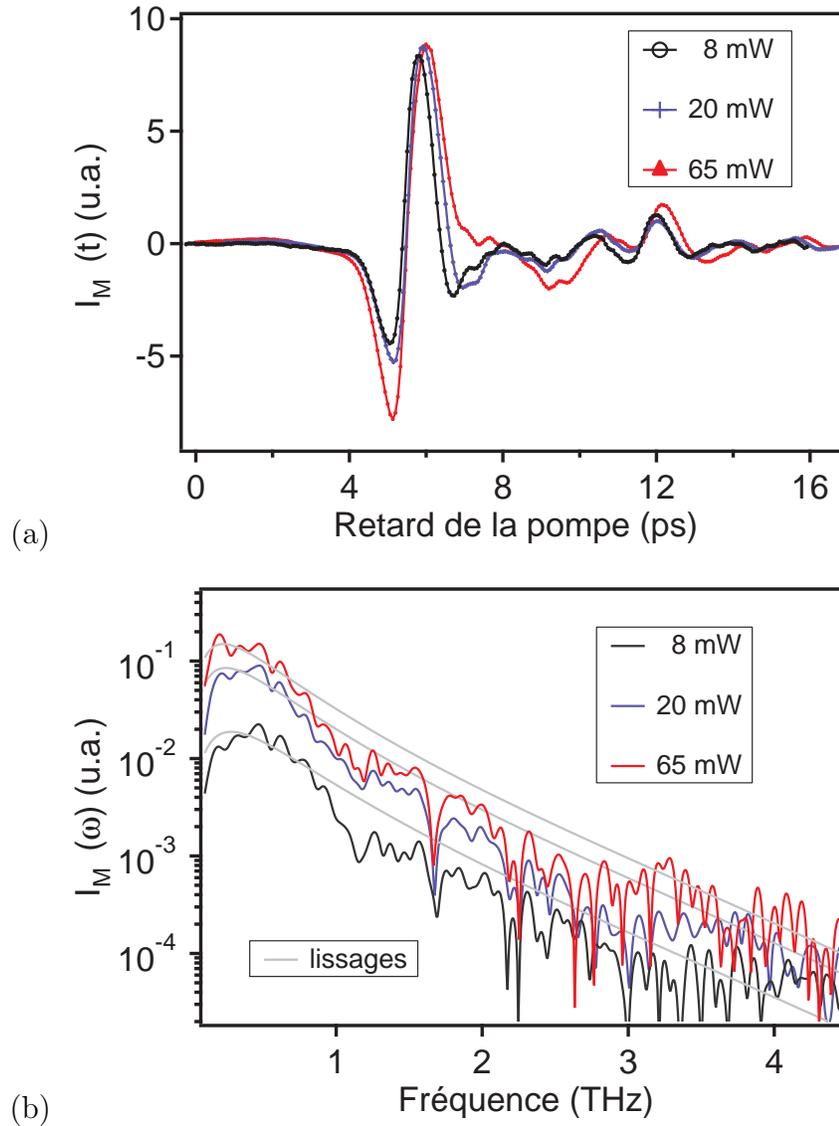


FIGURE 3.29 – Effet de la puissance de la pompe d’excitation sur l’évaluation du temps de relaxation τ_r de l’antenne 070823YA à 40 K pour un courant de 50 mA. La fréquence du hacheur est de 3.2 kHz. (a) Traces térahertz ($I_M(t)$) et (b) la transformée de Fourier TF des traces térahertz ($I_M(\omega)$).

| Puissance laser | τ_r | $I_M(t_d)$ |
|-----------------|----------|------------|
| 8 mW | 0.7 ps | 1.39 |
| 20 mW | 1.1 ps | 5.53 |
| 65 mW | 2.6 ps | 8.74 |

TABLEAU 3.5 – Effet de la puissance laser sur l'évaluation du temps de relaxation à 40 K. L'incertitude est d'environ 10 %. L'amplitude du maximum de la trace térahertz $I_M(t_d)$ est indiquée.

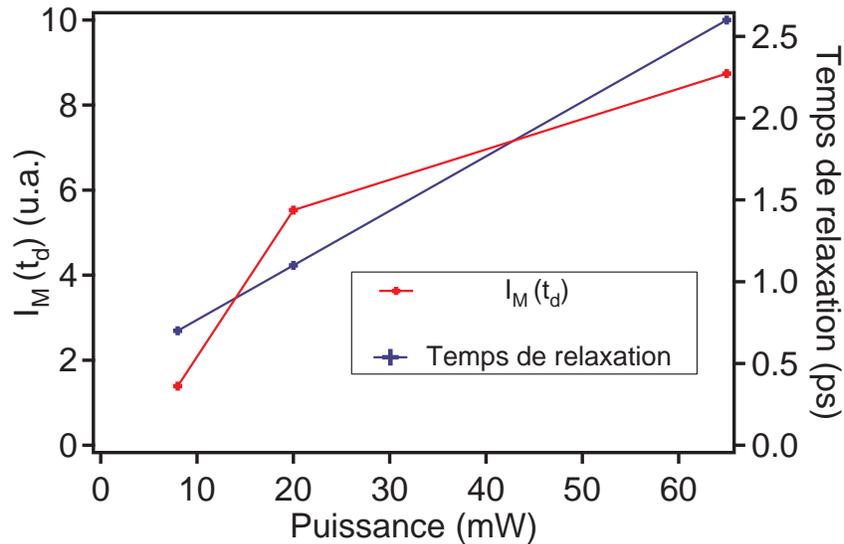


FIGURE 3.30 – Amplitude d'émission térahertz évaluée au maximum de la trace térahertz de l'antenne 070823YA à 40 K pour un courant de 50 mA. La fréquence du hacheur est de 3.2 kHz. Le temps de relaxation τ_r est aussi indiqué en fonction de la puissance.

À partir des courbes de lissage de la figure 3.29 (b), nous avons obtenu les temps de relaxation présentés au tableau 3.5. Nous indiquons aussi l'amplitude réelle du maximum de la trace térahertz ($I_M(t_d)$) à titre indicatif. À noter que l'amplitude $I_M(t_d)$ n'est pas linéaire avec la puissance d'excitation et que celle-ci semble saturer à haute excitation (fig. 3.30). Quant au comportement du temps de relaxation, il semble linéairement dépendant de la puissance. De plus, le comportement de la trace térahertz en fonction de la puissance ne se compare pas à celui de Tonouchi et *al.* [13]. En effet, dans leur cas, la puissance modifie la trace comme le ferait un changement de la température. Pour un temps de relaxation presque identique, la figure 3.31 illustre la différence entre l'effet de la température et de la puissance. D'après le modèle que nous utilisons, un changement de la pente entre le minimum et le maximum de la trace térahertz devrait être relié à

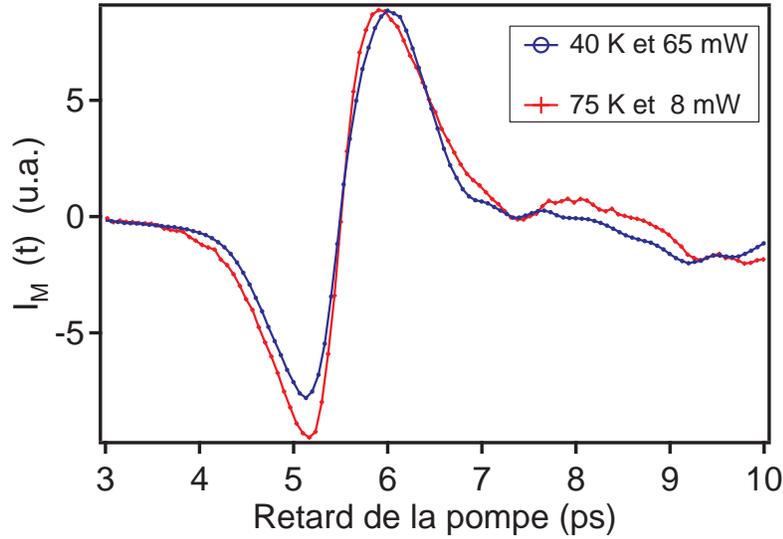


FIGURE 3.31 – Comparaison des traces térahertz de l’antenne 070823YA à 40 K pour une puissance laser de 65 mW et à 75 K pour une puissance de 8 mW. La fréquence du hacheur est de 3.2 kHz.

un changement du temps de montée τ_c si nous supposons que le temps de relaxation (τ_r) est presque identique. La compréhension des mécanismes qui affectent le temps de montée τ_c de $N_s(t)$ est importante pour identifier le paramètre limitant l’émission à plus haute fréquence. Murakami et *al.* ont suggéré que le couplage entre les plans de cuivre-oxygène est un des facteurs limitants [52] même si la polarisation du faisceau pompe est parallèle à ceux-ci.

La diminution du contenu en fréquence et de la possible saturation de l’amplitude d’émission indiquent que le fonctionnement de l’antenne n’est pas optimal dans la perspective où la largeur du spectre est le paramètre important. Puisque nous avons mis en évidence des effets d’accumulation de chaleur, la valeur extraite par le lissage de τ_r et l’amplitude d’émission pourraient être affectées par ces derniers.

3.2 Discussions

En guise de résumé, nous expliquons comment optimiser les paramètres d’émission d’une antenne supraconductrice d’après les observations que nous avons faites et d’après quelques résultats importants soulevés dans la littérature. Le tableau 3.6 indique les paramètres en ordre d’importance à choisir avant la conception pour l’optimisation d’ap-

| Paramètre | Condition(s) recherchée(s) |
|------------------|--|
| Supraconducteur | Isotrope et T_c élevée |
| Courant critique | Être le plus élevé |
| Substrat | Pas de pertes térahertz |
| Substrat | N'absorbe pas le faisceau d'excitation |
| τ_{es} | Court |
| Lentille | Grand diamètre |

TABLEAU 3.6 – Paramètres en ordre d'importance pour l'optimisation d'une antenne supraconductrice avant la conception d'une application. Nous indiquons la condition à rechercher pour maximiser le spectre et l'amplitude du champ électrique.

plications nécessitant un large spectre d'émission et une grande amplitude térahertz. Une fois ces conditions remplies, il faut placer l'antenne à la température où le temps de relaxation est plus court, la densité de courant critique la plus élevée et l'amplitude d'émission la plus élevée. À la figure 3.19, le temps de relaxation est plus court à très basse température et est presque constant jusqu'à 50 K. Entre 50 K et 70 K, le temps de relaxation augmente de 25 %. En ce qui a trait au courant critique à la figure 3.6, nous avons vu que celui-ci diminue d'un facteur 10 entre 30 K et 70 K. Quant à l'amplitude d'émission, celle-ci est presque constante à basse température et augmente d'un facteur 2 environ entre 50 K et 70 K (fig. 3.20). Compte tenu de ces trois paramètres, la température de fonctionnement idéale est à basse température autour de 23 K légèrement en dessous du courant critique ¹⁴.

Maintenant, si τ_{es} se comporte comme la relation à l'équation 1.74, alors il serait préférable d'augmenter la température pour diminuer τ_{es} lors de l'utilisation d'une puissance d'excitation laser plus grande. Mais si τ_{es} est faiblement dépendant de la température, alors la plus basse température demeure la meilleure option pour augmenter la densité de courant.

Nous avons présenté à la figure 3.30 que l'amplitude du maximum de la trace térahertz augmente d'un facteur 6 pour une augmentation de puissance d'un facteur 8. Cependant, le temps de relaxation augmente considérablement avec la puissance du laser ¹⁵, ce qui réduit la largeur du spectre. Une étude à plus basse puissance serait nécessaire pour évaluer le point optimal. La puissance idéale serait entre une basse (< 1 mW) et une moyenne puissance (8 mW).

¹⁴Pour une opération à 77 K, la description de l'optimisation du champ électrique est la même.

¹⁵Peut-être à cause des effets d'accumulation de la chaleur

À cause des effets d'accumulation de chaleur présents avec des lasers d'excitation à haut taux de répétition, la température d'une antenne augmente graduellement dans un cycle d'éclairage et ses caractéristiques d'émission évoluent. En étant près du courant critique, une plus grande puissance d'excitation amènera le point d'opération encore plus au-dessus de celui-ci dans une région où l'intensité émise commencera à diminuer. Pour maximiser l'amplitude d'émission, il suffit de diminuer la densité de courant à la même température d'opération. Finalement, la fréquence du laser pourrait être diminuée pour contrer les effets d'accumulation de chaleur (ou la fréquence du hacheur augmentée). La fréquence du laser peut être diminuée tant que le rapport signal sur bruit est maintenu et que le temps de moyennage des données demeure raisonnable selon le temps que nous voulons investir.

Enfin, le dernier point important à discuter pour éviter des problèmes de chauffage à cause des courants élevés qui circulent dans l'antenne est d'augmenter les surfaces des contacts Cr-Au et de réduire la largeur du micro-pont de l'antenne selon la dimension du point focal du faisceau d'excitation que nous pouvons obtenir.

Au cours de ce chapitre, nous avons mis en évidence la similitude entre la trace térahertz d'une antenne supraconductrice de YBCO et celle du GaAs : H+. Cette ressemblance nous a suggéré d'exploiter le modèle où les quasiparticules en surplus se recombinaient avec les quasiparticules à l'équilibre thermique pour former des paires pour extraire les propriétés intrinsèques hors-équilibre de YBCO. Dans cette perspective, la contribution bi-moléculaire est négligée. Pour y arriver, nous avons dû ajouter un effet de filtrage basse fréquence (ω) dont l'origine la plus plausible proviendrait du détecteur. En effet, la distance des électrodes de ce dernier est plus petite que la longueur d'onde de la plus haute fréquence détectée. À partir du modèle utilisé, nous avons extrait un temps de relaxation τ_r autour de 0.8 ps à basse température et avons été capables de l'extraire jusqu'à une température de plus de $0.95 * T_c$. Le temps de montée τ_c pourrait changer près de T_c rendant l'extraction de τ_r plus difficile.

En plus, nous avons mis en évidence les caractéristiques de l'antenne supraconductrice dans un régime optimal de fonctionnement : large contenu en fréquence et une amplitude d'émission élevée. En dessous de la densité de courant critique (J_c), l'amplitude d'émission térahertz varie linéairement avec la densité de courant en accord avec les attentes théoriques. En augmentant la température d'opération de l'antenne supraconductrice, l'amplitude d'émission augmente et semble suivre un comportement qui va comme l'inverse du cube de l'énergie du gap supraconducteur $\Delta(T)$ (voir la figure 3.20).

Nous pensons que l'origine de ce comportement est due à l'effet des quasiparticules sur le champ électrique créé lors de l'accélération des paires, mais une mesure de la polarité du champ électrique de l'antenne supraconductrice par rapport à une antenne semiconductrice est nécessaire pour écarté le cas où la densité de courant est considéré constante. Par ailleurs, en fonction de la puissance d'excitation, l'amplitude d'émission de l'antenne semble atteindre un régime de saturation à haute puissance et son contenu en fréquence diminue. La région optimale d'opération pour maximiser la largeur du spectre de l'antenne térahertz supraconductrice se situe à basse puissance et à basse température.

Avant d'étudier le comportement en température du temps de relaxation qui nous permettra d'obtenir plus d'informations sur la physique de YBCO, nous devons d'abord confirmer le modèle des antennes en comparant les temps de relaxation extraits avec la technique de lissage du spectre à ceux mesurés en pompe-sonde. En plus, nous vérifierons si les effets d'accumulation de chaleur mis en évidence avec la technique de résistivité temporelle sont uniquement de nature phononique.

Chapitre 4

Mesures pompe-sonde

La technique pompe-visible et sonde-téraherz permet entre autres de mesurer le temps de relaxation court τ_r , mais aussi de mesurer les temps de relaxation plus longs τ_{rl} des porteurs excités par un faisceau laser. Dans notre cas, nous explorerons davantage les propriétés intrinsèques de YBCO et GaAs : H+ afin de mieux comprendre la physique qui régit le fonctionnement de nos antennes. Dans ce chapitre, nous pourrions comparer le temps de relaxation de l'antenne τ_r obtenu par lissage du spectre à celui mesuré avec la technique pompe-sonde que nous noterons τ_{r1} . Pour que la comparaison de ces temps soit facilitée, nous avons utilisé les **mêmes** échantillons et des densités de puissance d'excitation semblables pour les deux mesures. Nous voulons ainsi éviter des problèmes liés à la variabilité de la qualité des échantillons et des effets de puissance qui pourraient affecter la grandeur du temps de relaxation court. De plus, nous pourrions étudier directement τ_{es} que nous avons déduit **indirectement** avec la technique de résistivité temporelle.

Ce chapitre est divisé en sept sections. Tout d'abord, à la section 1.1, nous caractérisons la perturbation du faisceau laser sur la conductivité CA en régime téraherz. À la section 4.2, nous mettons l'emphase sur les temps de relaxation courts τ_{r1} déduits des cinétiques obtenues à la fois sur un échantillon supraconducteur et sur un échantillon semiconducteur. Ensuite à la section 4.3, nous présentons l'effet de la puissance du faisceau laser sur le temps de relaxation court τ_{r1} . La section 4.4 met en évidence la dépendance du temps de relaxation court face à la fréquence de la sonde utilisée. Par la suite à la section 4.5, nous vérifions l'effet de l'épaisseur de la couche mince sur l'évaluation de τ_{r1} . Nous présentons la dépendance en température des amplitudes et des temps de relaxation mesurés pour YBCO à la section 4.6. Le comportement particulier avec la température du temps de relaxation lent τ_{es} est souligné. Finalement à la section 4.7, nous faisons un

sommaire des résultats de cette thèse afin de discuter du lien entre le temps de relaxation court obtenu à l'aide des deux techniques de mesure. De plus, nous discutons du comportement en température de ce dernier. Enfin, nous concluons en rappelant les éléments importants du chapitre.

4.1 Perturbation

La courbe rouge à la figure 4.1 illustre la trace térahertz transmise ($E_m(t)$) au travers d'une couche mince de YBCO de 38 nm à 50 K sans pompe d'excitation. Ce signal est obtenu en hachant le faisceau sonde térahertz pour la mesure à l'aide de l'amplificateur synchrone. L'allure de la trace est semblable à celle de nos antennes térahertz. Après le maximum d'une amplitude de 6.76, nous observons des oscillations autour de 4-5 ps provenant possiblement des raies d'absorption de la vapeur d'eau dans l'environnement du montage puisque l'impulsion térahertz doit parcourir au moins 25 cm dans l'air avant de pénétrer dans le cryostat. La courbe bleue de la figure 4.1 illustre la **variation de la transmission** ($\Delta E_m(t)$, voir l'équation 1.57) qui est d'environ 2.8 après l'excitation de la couche mince de YBCO avec un faisceau pompe de 8 mW. Cette perturbation représente un changement significatif de 40 %¹ sur l'amplitude de transmission. Pour cette mesure, c'est le faisceau d'excitation visible qui est modulé. Notons que nous n'avons pas vérifié si la transmission augmentait ou diminuait lorsque l'échantillon était perturbé par le faisceau laser. Le déphasage dans le temps entre les deux traces n'est pas significatif puisque la configuration du montage a changé entre ces deux mesures ; la position du hacheur est différente (voir figure 2.13) et le parcours optique pourrait être légèrement différent. Ce qui est important de souligner à la figure 4.1, c'est que la perturbation créée par la pompe visible est considérable. Le champ électrique transmis de la sonde térahertz après la thermalisation des porteurs créés avec la pompe visible change de 40 %. En effet, nos calculs à l'annexe A indiquent que $3.74 * 10^{26}$ *quasiparticules* (m)⁻³ par impulsion en surplus sont créés dans nos conditions expérimentales. Pimenov et *al.* ont rapporté un poids spectral ($\frac{e^2 N_n}{m^*}$) pour les quasiparticules de $1.3 * 10^{19}$ $C^2(kg)^{-1}(m)^{-3}$ pour le composé YBCO en dessous de la température critique (T_c) à 50 K dans le régime térahertz [45]. Après conversion de celui-ci, nous obtenons la densité de quasiparticules totale : $2.37 * 10^{27}$ *quasiparticules* (m)⁻³ (si $m^* = 1.8m_o$). Nous en déduisons que le faisceau

¹Il suffit de diviser 2.8 par 6.76 pour obtenir ce pourcentage. La courbe bleue indique la **variation** et non la grandeur du champ térahertz de la sonde.

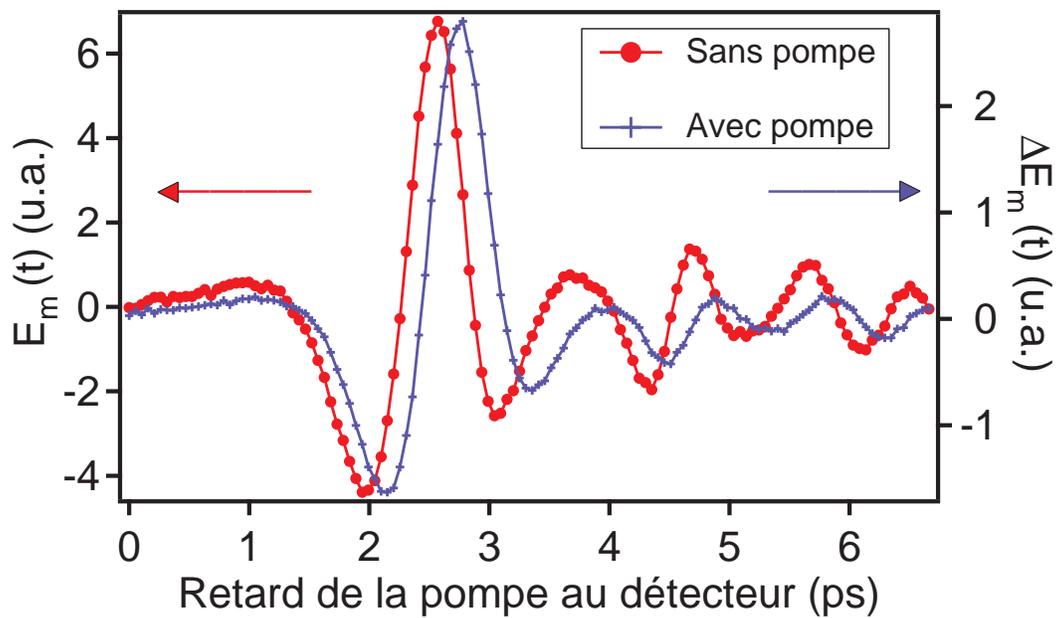


FIGURE 4.1 – Effet de la pompe d’excitation sur l’impulsion térahertz de la sonde qui se propage au travers d’une couche mince de YBCO de 38 nm sur substrat de saphir à 50 K. La courbe en rouge représente le champ électrique transmis $E_m(t)$ mesuré au détecteur sans pompe d’excitation sur YBCO. La courbe en bleu est la variation du champ électrique transmis mesuré $\Delta E_m(t)$ avec une pompe d’excitation d’une puissance de 8 mW sur la couche mince de YBCO.

d'excitation visible provoque une variation d'environ 45 % de la densité de quasiparticules dans YBCO. Quant à la densité de paires qui est d'environ $1.4 * 10^{27} \text{ paires } (m)^{-3}$ à une température de 50 K selon Pimenov et *al.*, la densité de paires brisées est de 13 %. Malgré une perturbation appréciable de la densité de paires et de quasiparticules, nous utiliserons la variation de transmission dans l'approximation de faible perturbation (éq. 1.86) pour fin de simplicité. Dans cette approche, le temps de relaxation est légèrement sous-estimé.

Par ailleurs, l'importante conductivité à l'équilibre et hors-équilibre rendent le terme $(n_s + 1)$ à l'équation 1.59 presque négligeable. En effet, à partir des données rapportées par Pimenov et al. [45], nous pouvons estimer la conductivité à l'équilibre décrite principalement par la partie supraconductrice pour une fréquence de 800 GHz comme étant de $4 * 10^6 (\Omega m)^{-1}$. Le terme $\sigma(\omega) d Z_o$ est alors égal à 90, ce qui est plus grand que $(n_s + 1) = 5$. Donc, l'approximation à l'équation 1.82 pour décrire la variation de transmission sans l'influence de l'indice de réfraction du substrat est valide.

4.2 Temps de relaxation court τ_{r1}

4.2.1 Supraconducteur

À la figure 4.2 (a), la courbe rouge représente l'évolution du maximum de $\Delta E_m(t)$ ($\Delta E_m(t_d)$) d'une couche mince de YBCO de 38 nm sur un substrat de saphir à une température de 50 K et pour une puissance d'excitation de 8 mW. Après la montée rapide, $\Delta E_m(t_d)$ diminue assez rapidement pour ensuite atteindre un plateau. La descente rapide peut être caractérisée à l'aide de deux exponentielles à temps court ($\tau_{r1} = 1.3$ ps et $\tau_{r2} = 25$ ps) que nous obtenons en lissant les données à l'aide d'un modèle bi-exponentiel (éq. 1.87) sur la plage de temps entre 0 et 25 ps. Ces deux temps de relaxation pourraient être associés à des mécanismes de relaxation différents. Lors du lissage des données, nous avons tenu compte de la réflexion de la pompe en ajoutant une deuxième fonction de type bi-exponentiel. L'accord est excellent sur la plage de temps considéré. Par contre, nous notons qu'après 25 ps, la relaxation est plus lente. À la figure 4.2 (b), les données jusqu'à 160 ps sont présentées pour mettre en évidence la descente lente qui peut être caractérisée par un temps de relaxation τ_{es} de 360 ps. Nous avons obtenu ce temps en utilisant seulement une exponentielle décroissante pour lisser les données (courbe bleue) entre 25 ps et 160 ps. Ce long temps pourrait être associé à la thermalisation de l'échantillon ; nous y reviendrons à la section 4.6 qui traite de l'étude en température des

| Paramètres | Valeur |
|---|--------|
| Temps de montée τ_l | 0.5 ps |
| Temps de relaxation court 1 τ_{r1} | 1.1 ps |
| Temps de relaxation court 2 τ_{r2} | 4.8 ps |
| Temps de relaxation lent τ_{es} | 366 ps |
| a1 (τ_{r1}) | 33.5 |
| a2 (τ_{r2}) | 5.3 |
| a3 (τ_{es}) | 1.9 |

TABLEAU 4.1 – Caractéristiques de l'échantillon 070831YA de 38 nm d'épaisseur extraites à partir de $\Delta E_m(t_d)$ à 50 K pour une puissance d'excitation de 8 mW.

cinétiques. À cause de la présence d'une relaxation lente, nous devons utiliser un lissage de trois exponentielles afin d'extraire les valeurs des temps de relaxation. La figure 4.2 (c) présente le lissage à trois exponentielles. Le lissage est excellent et nous obtenons 1.1 ps, 4.8 ps et 366 ps pour les valeurs de τ_{r1} , τ_{r2} et τ_{es} respectivement. Cette approche a permis de corriger principalement τ_{r2} de 25 ps à 4.8 ps. Le temps de montée extrait (τ_l) est de 0.5 ps. Le tableau 4.1 résume les paramètres extraits du lissage de $\Delta E_m(t_d)$ avec une fonction tri-exponentielles à la figure 4.2 (c). Les amplitudes $a1 = 33.5$, $a2 = 5.3$ et $a3 = 1.9$ représentent le poids de chacune des trois exponentielles et sont respectivement reliées à τ_{r1} , τ_{r2} τ_{es} . Puisque nous n'avons pas tenu compte des effets de dispersion au détecteur de ZnTe qui est épais (2 mm), nous pouvons considérer que la valeur de τ_l est comparable à ce que nous avons déterminé avec l'antenne 070823YA (60 nm), soit de 0.3 ps. De même, dans le cas de τ_{r1} , nous obtenons une valeur comparable avec la valeur extraite (0.8 ps) avec l'antenne supraconductrice 070823YA (60 nm) ².

Si nous calculons un temps moyen de relaxation (τ_{rmoy}) pour le temps court en tenant compte des amplitudes respectives des exponentielles décroissantes, nous obtenons une valeur de 1.6 ps. Cette valeur de τ_{rmoy} de 1.6 ps concorde avec la plupart des valeurs rapportées des mesures en pompe-sonde dans la littérature [15, 26, 33, 46–48]. Par ailleurs, si de plus nous supposons que le temps de relaxation extrait de l'antenne est τ_{rmoy} , alors un désaccord du temps de relaxation déduit à partir des deux techniques persiste. Le désaccord du temps de relaxation rapide entre les deux techniques n'a pas été expliqué clairement dans la littérature [13, 31, 54] et **personne n'a utilisé les mêmes échantillons** pour confronter les temps de relaxation obtenus avec chaque technique.

²Nous verrons à la section 4.5 que les couches des antennes 070823YA (60 nm) et 070831YA (38 nm) ont sensiblement les mêmes caractéristiques temporelles, malgré une différence importante dans le temps de relaxation extrait des antennes.

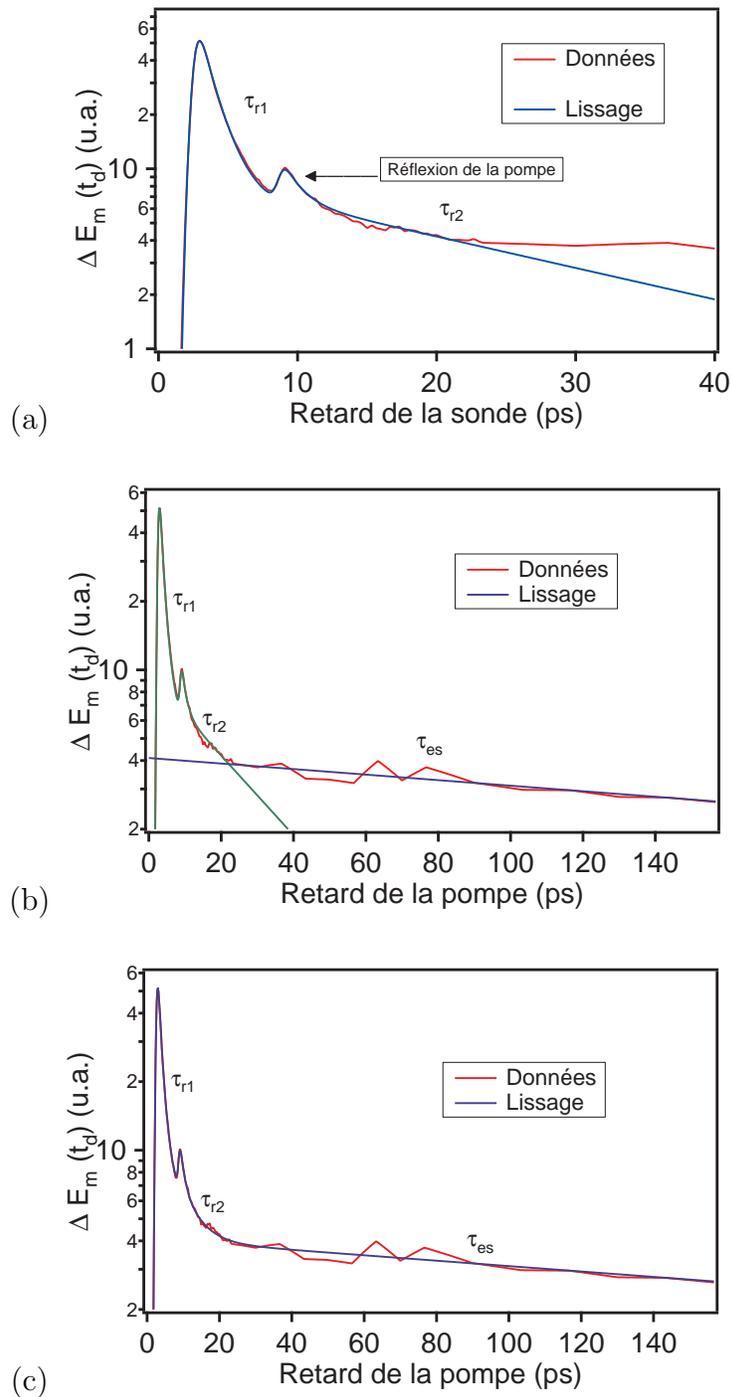


FIGURE 4.2 – Évolution du maximum de la trace de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ après excitation optique d'une couche mince de YBCO de 38 nm (échantillon 070831YA) déposée sur un substrat de saphir. Les mesures ont été prises à 50 K. Le faisceau de la pompe d'excitation est à une puissance de 8 mW. La courbe en rouge représente les données que nous avons lissées avec un modèle bi-exponentiel sur une plage de 0 à 25 ps (a) et avec une exponentielle décroissante de 25 ps à 160 ps (b). La figure (c) est un lissage avec trois exponentielles pour évaluer correctement les temps de relaxation.

Dans les sections qui suivent, nous tentons de cerner l'origine de ce désaccord, ce qui en fait une contribution originale de cette thèse.

Avant de poursuivre la présentation des résultats, nous voulons renforcer le fait que le temps de relaxation court 1 (τ_{r1}) est mieux décrit par une exponentielle décroissante plutôt qu'une décroissance de type bimoléculaire (voir éq. 1.17). La figure 4.3 présente le lissage (courbe bleue) de $\Delta E_m(t_d)$ à partir d'un modèle bimoléculaire pour décrire la relaxation rapide et à partir d'une exponentielle décroissante pour décrire la relaxation lente (τ_{es} est fixé à 366 ps). L'anomalie due à la réflexion de la pompe dans le substrat (courbe verte) n'a pas été tenue en compte lors du lissage. Le temps de relaxation bimoléculaire effectif ($\tau_{rbimoleculaire}$) extrait du lissage est de 0.8 ps. Nous avons lissé les données à partir du maximum. L'accord n'est pas très bon puisque le lissage indique que la relaxation bimoléculaire est plus rapide initialement et sature plus rapidement que les valeurs mesurées de $\Delta E_m(t_d)$. De plus, nous avons observé que le temps de relaxation était presque indépendant de la puissance d'excitation à basse température (voir fig. 4.5).

Notre analyse préliminaire indique donc que la relaxation rapide est mieux décrite par une exponentielle décroissante qu'une relaxation de type bimoléculaire. Au cours de ce chapitre, nous essaierons d'éclaircir l'origine d'une relaxation de type exponentielle avec la présence possible de deux mécanismes différents pour les courts temps. Mais avant, nous poursuivons avec la présentation des résultats du GaAs : H+.

4.2.2 Semiconducteur

La figure 4.4 montre la cinétique du changement d'amplitude de transmission $\Delta E_m(t_d)$ de l'onde térahertz au travers du GaAs H+ multi-énergies (le détecteur de notre banc de mesures de spectroscopie térahertz). La mesure a été effectuée à la température ambiante pour deux puissances d'excitation d'environ 0.2 mW et 1.2 mW. La courbe en bleu est un lissage bi-exponentiel des données. Pour l'excitation à 1.2 mW, nous observons deux temps de relaxation ; un court temps τ_{r1} de 1.7 ps et un long temps τ_{r2} de 80 ps pour un lissage sur toute la plage de temps. Toutefois, nous notons que la relaxation lente n'est pas purement exponentielle parce que le lissage de la cinétique à long temps n'est pas parfait. Le comportement non-exponentiel a des effets importants sur l'évaluation des court et long temps de relaxation. En effet, si nous limitons le lissage aux 40 premières picosecondes, nous obtenons $\tau_{r1} = 1.3$ ps et $\tau_{r2} = 42$ ps au lieu de 1.7 ps et 80 ps pour un

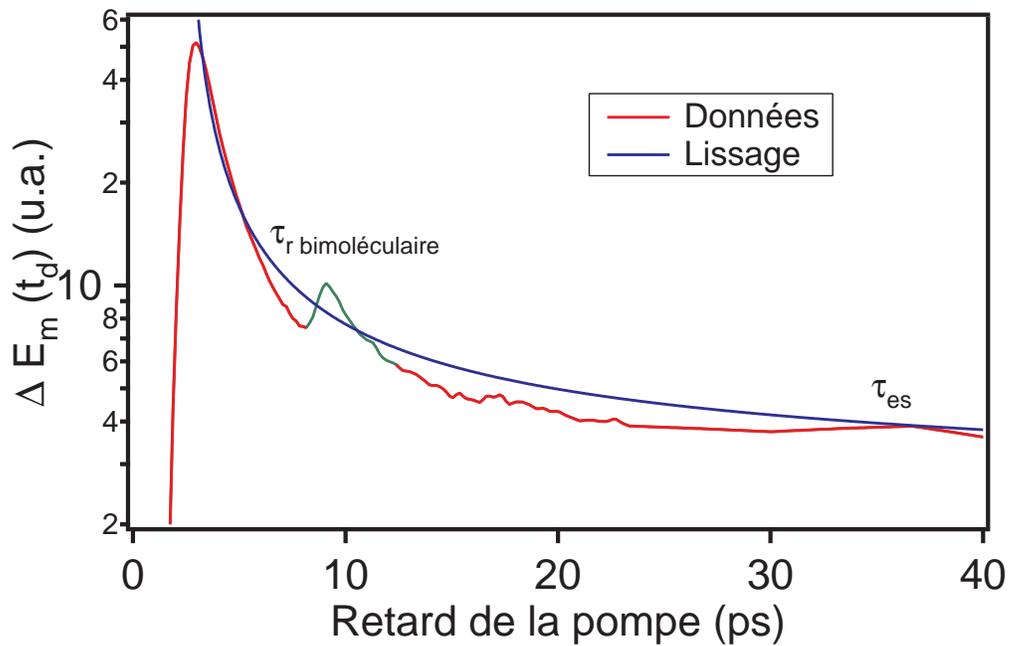


FIGURE 4.3 – Évolution du maximum de la trace de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ après excitation optique d'une couche mince de YBCO de 38 nm (échantillon 070831YA) déposée sur un substrat de saphir. Mesure effectuée à 50 K. Le faisceau de la pompe d'excitation est à une puissance de 8 mW. La courbe en rouge représente les données que nous avons lissées avec une relaxation bimoléculaire pour le temps rapide et une exponentielle décroissante pour le temps de relaxation lent.

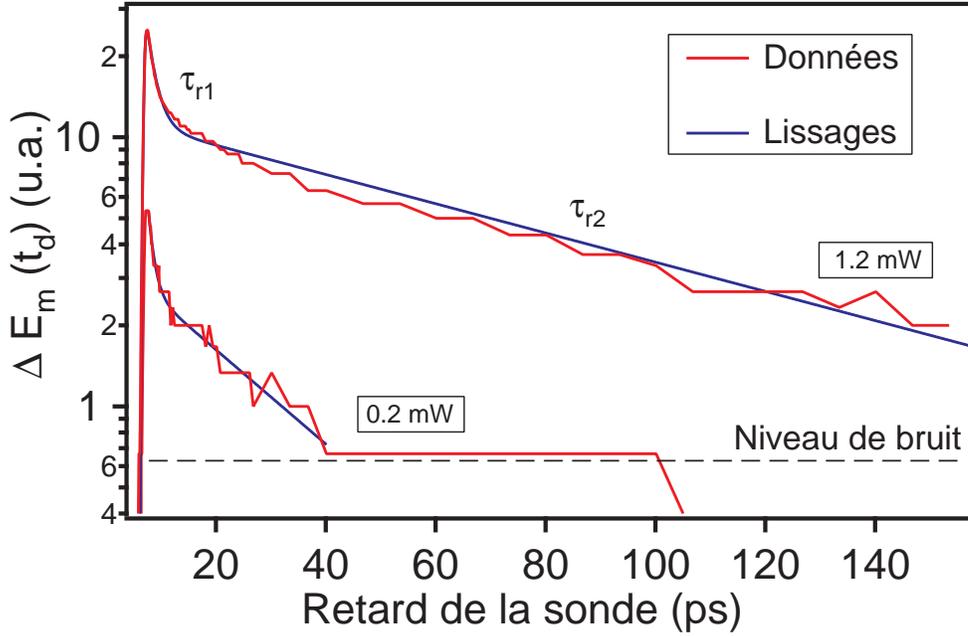


FIGURE 4.4 – Évolution du maximum de la trace de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ après excitation optique d'un substrat de GaAs bombardé de protons multi-énergies (GaAs : H+) sur une profondeur de $1 \mu\text{m}$. Les courbes en rouge représentent les données à 1.2 mW et 0.2 mW, et les courbes en bleu les lissages à partir d'un modèle bi-exponentiel.

lissage sur toute la plage de temps. En utilisant les bornes entre 0 et 40 ps, $\tau_{r1} = 1.1$ ps et $\tau_{r2} = 25$ ps à une puissance de 0.2 mW où le niveau de bruit est atteint après 40 ps. Dans les deux cas, le temps de montée τ_l obtenu est de 0.4 ps. Le terme de recombinaison court τ_{r1} serait associé à la capture des électrons par des défauts profonds tandis que le temps long τ_{r2} pourrait être associé à la diffusion de porteurs situés dans des régions peu ou non-endommagées par le bombardement ionique. La dépendance des temps de relaxation en fonction de l'intensité du faisceau pompe pourrait être due à un début de saturation des pièges ou à la diffusion dans le volume. Le modèle bi-exponentiel permet de tenir compte de la relaxation de ces porteurs. Cependant, la diffusion des porteurs n'est pas une exponentielle décroissante [66], donc la deuxième exponentielle se veut une approximation. Nous devons vérifier l'effet d'une telle approximation.

En déplaçant les bornes du lissage bi-exponentiel, nous avons évalué l'erreur sur τ_{r1} à 0.3 ps à une puissance d'excitation de 1.2 mW. Quant à τ_{r2} , l'incertitude est de 20 ps. Les valeurs extraites des temps de relaxation à partir du lissage à la figure 4.4 sont des

| Paramètres de lissage | Valeur |
|---|------------------|
| Temps de montée τ_c | 0.4 ps |
| Temps de relaxation court τ_{r1} | 1.4 ± 0.3 ps |
| Temps de relaxation long τ_{r2} | 60 ± 20 ps |
| Amplitude de l'exponentielle de τ_{r1} | 13 |
| Amplitude de l'exponentielle de τ_{r2} | 11 |

TABLEAU 4.2 – Caractéristiques de l'échantillon de GaAs H+ multi-énergies extraites à partir de $\Delta E_m(t_d)$ à température ambiante pour une puissance d'excitation de 1.2 mW.

extremums. Après l'étude de l'effet de la position des bornes, nous obtenons des valeurs moyennes de τ_{r1} à 1.4 ± 0.3 ps et de τ_{r2} à 60 ± 20 ps. La modélisation adéquate de la descente lente permettrait de diminuer l'erreur sur τ_{r1} . Cette étude met en évidence la difficulté d'obtenir des temps de relaxation quantitatifs précis lorsque l'amplitude du terme décrivant le long temps de relaxation est comparable à celui du court temps.

Le tableau 4.2 résume les caractéristiques extraites du lissage de $\Delta E_m(t_d)$ avec la fonction bi-exponentielle en fonction du temps pour une puissance d'excitation de 1.2 mW. En diminuant la puissance d'excitation, τ_{r1} et τ_{r2} ont diminué à 1.1 ps et à 25 ps, ce qui représente des variations d'environ 20-30 %. Donc, la puissance a un impact important sur l'évaluation des temps de relaxation. En considérant que nous n'avons pas soustrait les effets d'élargissement sur la trace par le détecteur de ZnTe d'une épaisseur de 2 mm, nous obtenons un excellent accord avec la valeur de 0.9 ± 0.1 ps extraite avec les antennes. Dans le cas du GaAs : H+, la difficulté de comparaison entre les deux techniques est la densité de puissance d'excitation : il faut absolument que la densité de puissance soit la même pour relier les temps de relaxation. Nous avons calibré la densité d'énergie du montage pompe-sonde et avons contrôlé la densité d'énergie sur les antennes pour que les densités d'énergie soient comparable.

Nos observations du comportement de τ_r du GaAs : H+ avec la puissance d'excitation suggèrent que la densité d'énergie d'excitation en pompe-sonde sur la couche de YBCO (fig. 4.1) est peut-être plus élevée que celle des antennes si τ_r augmente avec la puissance. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons mesuré le comportement de τ_{r1} avec la densité de puissance d'excitation sur les couches minces de YBCO.

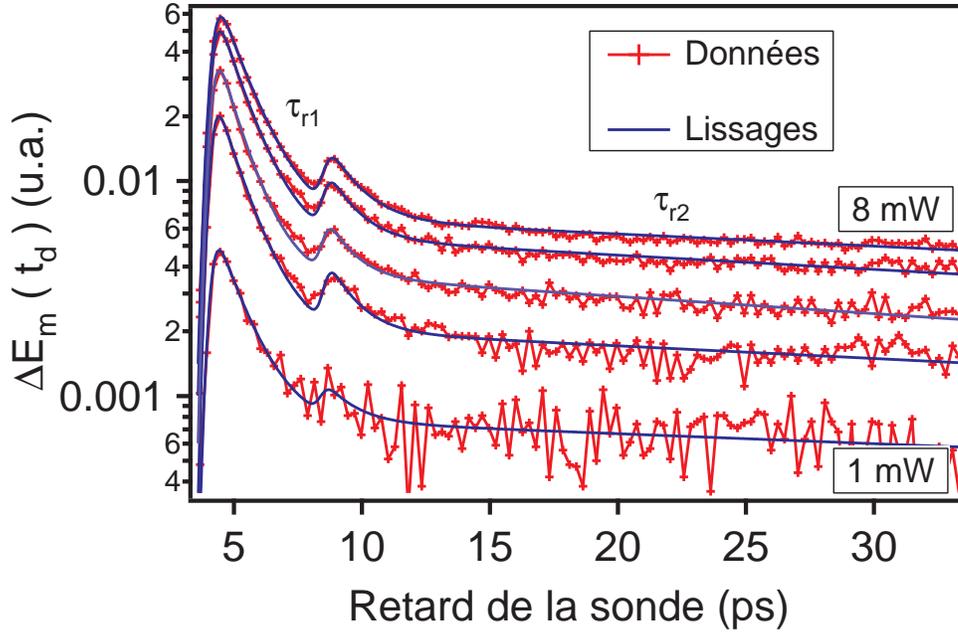


FIGURE 4.5 – Amplitude du maximum de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d)$ en fonction du temps pour diverses puissances d’excitation laser. Une couche mince de YBCO de 38 nm sur saphir est excitée à une température de 30 K.

4.3 Effets de la puissance d’excitation

La figure 4.5 montre les cinétiques pompe-sonde obtenues sur l’échantillon d’une couche mince d’YBCO de 60 nm d’épaisseur, et ce pour différentes puissances d’excitation laser et pour une température de 30 K. La puissance du faisceau laser varie entre 1 mW et 8 mW. Nous obtenons un temps court 1 (τ_{r1}) de **1.1 ps** à peu près indépendant de la puissance. De même, le deuxième temps court $\tau_{r2} = 70$ ps³ est aussi à peu près indépendant de la puissance du faisceau laser (sur cette plage de puissance). Mentionnons ici que la figure 4.5 n’est pas similaire à celle de la figure 4.2 malgré que ce soit le même échantillon. Un écart de 0.4 ps sur l’évaluation de τ_{r1} sépare les deux mesures. Cet écart est attribué au fait que nous n’avons pas effectué le balayage 1D à la même position temporelle sur la trace de l’impulsion sonde-térahertz (voir fig. 4.6). Nous expliquerons cette différence à la prochaine section (sec. 4.4) lors de la présentation des données en

³Pour simplifier l’analyse, τ_{r2} contient aussi le comportement du long temps de relaxation τ_{es} , c’est pourquoi il est sur-évalué par rapport au tableau 4.1.

balayage 2D.

La mesure d'un temps de relaxation des quasiparticules (τ_r) presque indépendant de la puissance contraste avec notre étude de la dépendance du spectre de l'antenne d'émission en fonction de la puissance d'excitation à la section 3.1.4. Nous avons observé une augmentation importante du temps de relaxation de 0.7 ps à 2.6 ps avec l'augmentation de la puissance. Puisque les densités d'énergie **sont comparables** pour les deux techniques, **au moins** deux possibilités permettraient d'expliquer ces différences :

1. Des effets d'accumulation de chaleur pourraient changer le point d'opération en température de l'antenne d'émission puisque les caractéristiques observées sont moyennées, car la température augmente linéairement avec le nombre d'impulsion pendant une mesure, ou
2. Des effets d'accumulation de charges changerait le point d'opération de l'antenne ce qui nécessite un long temps de relaxation pour les quasiparticules hors-équilibre, car le retard entre chaque impulsion est de 12.5 ns.

Analysons l'effet du temps de relaxation lent $\tau_{r2} = 70$ ps sur l'éventualité où le cas 1 (effets d'accumulation de chaleur) serait envisagé. Nous avons observé qu'à haute puissance le temps de relaxation était équivalent à une augmentation de température de 35 K, mais que la trace térahertz était différente (fig. 3.31). Dans l'éventualité où toute l'énergie de la pompe demeure dans la couche mince, nous aurions de la difficulté à atteindre une augmentation de 35 K (selon nos calculs à la section 3.1.4). En insérant $\tau_{r2} = 70$ ps à la place du temps de transfert de la chaleur vers le substrat (τ_{es}) à l'équation 3.2, nous déterminons que les effets d'accumulation de chaleur sont négligeables.

Par élimination, le cas 2 serait un scénario permettant d'expliquer la différence de comportement avec la puissance des antennes supraconductrices et la technique pompe-sonde. À l'équation 1.21, le temps de relaxation est défini par les quasiparticules à l'équilibre (ou avant l'arrivée d'une impulsion laser) et par un taux de recombinaison β qui dépend lui-même de la température. Le taux de transfert ne serait pas le même à basse et haute température, ce qui pourrait expliquer la différente trace térahertz à la figure 3.31). La différence du temps de relaxation avec la puissance entre les deux techniques proviendrait d'un temps de relaxation très lent des quasiparticules hors-équilibre qui se situerait entre 12.5 ns et 1 ms. Ces dernières valeurs correspondent au taux de répétition des lasers dans chacun des montages.

4.4 Dépendance de τ_{r1} avec la fréquence de la sonde

La figure 4.6 présente la variation de la trace de la sonde-téraherz après une perturbation. Le mode 2D ou balayage 2D a été utilisé. La mesure a été effectuée à 50 K à une puissance de 8 mW. En (a), les courbes noire, bleue et verte présentent la variation de transmission mesurée ($\Delta E_m(t, t')$) pendant la brisure des paires (τ_c) et les courbes rouges $\Delta E_m(t, t')$ pendant la relaxation rapide (τ_{r1}) (voir la figure 1.4). Entre chaque courbe, la pompe-visible et la sonde-téraherz sont décalées ($\Delta t'$) de 0.413 ps. En (b), nous avons effectué la transformée de Fourier (TF) des courbes en (a) ($\Delta E_m(\omega, t')$). À la figure 4.6 (a), nous identifions un premier minimum secondaire qui est suivi d'un maximum principal (pic 1) et d'un minimum principal (pic 2). C'est sur ces deux pics que nous avons effectué le balayage 1D pour extraire τ_{r1} et que nous avons observé que la relaxation n'était pas la même (voir discussion sec. 4.3). Au début de la perturbation (courbes noire, bleue et verte), nous constatons que le contenu en fréquence évolue, car la forme de la trace change : la position des pics 1 et 2 n'est pas la même. Pendant la relaxation, la position des pics ne semble pas évoluer beaucoup, sauf le minimum secondaire autour de 1 ps. En regardant le comportement de ce dernier, nous avons l'impression qu'à mesure que t' augmente, le contenu en fréquence de la variation de la trace diminue comme si τ_{r1} était dépendant du retard entre la pompe et la sonde. En effet, à la figure 4.6 (b), nous pouvons observer que le poids spectral n'évolue pas au même taux. En comparant les amplitudes à 443 GHz et 886 GHz au maximum de la perturbation (courbe verte) et après $t' = 2$ ps, le rapport des amplitudes diminue d'un facteur 4 à 443 GHz et d'un facteur 5.9 à 886 GHz. Donc, la variation de l'amplitude de transmission de la sonde à hautes fréquences relaxe plus rapidement. Un fait intéressant à noter, la courbe noire au début de la perturbation et la courbe rouge à $t' = 2$ ps n'ont pas le même poids spectral, ce qui signifie que l'état de YBCO, 2 ps après la perturbation, n'est pas revenu à son état d'équilibre pendant la brisure des paires.

La quantification de τ_{r1} en fonction de l'énergie de la sonde se fait en lissant la variation de transmission pour une fréquence donnée. À la figure 4.7 (a), nous avons lissé $\Delta E_m(\omega, t')$ pour une fréquence de 443 GHz et 1030 GHz à l'aide d'une seule fonction exponentielle avec une constante autour de 0.01 simulant le long temps : le nombre de points mesurés dans la montée n'est pas suffisant et le niveau de bruit est atteint vers 5 ps. τ_{r1} extrait est de 1.4 ps et 1.0 ps pour 443 GHz et 1030 GHz respectivement ⁴. C'est le plus

⁴Nous n'avons pas inclus le premier point dans le lissage, car l'effet de τ_c est encore perceptible.

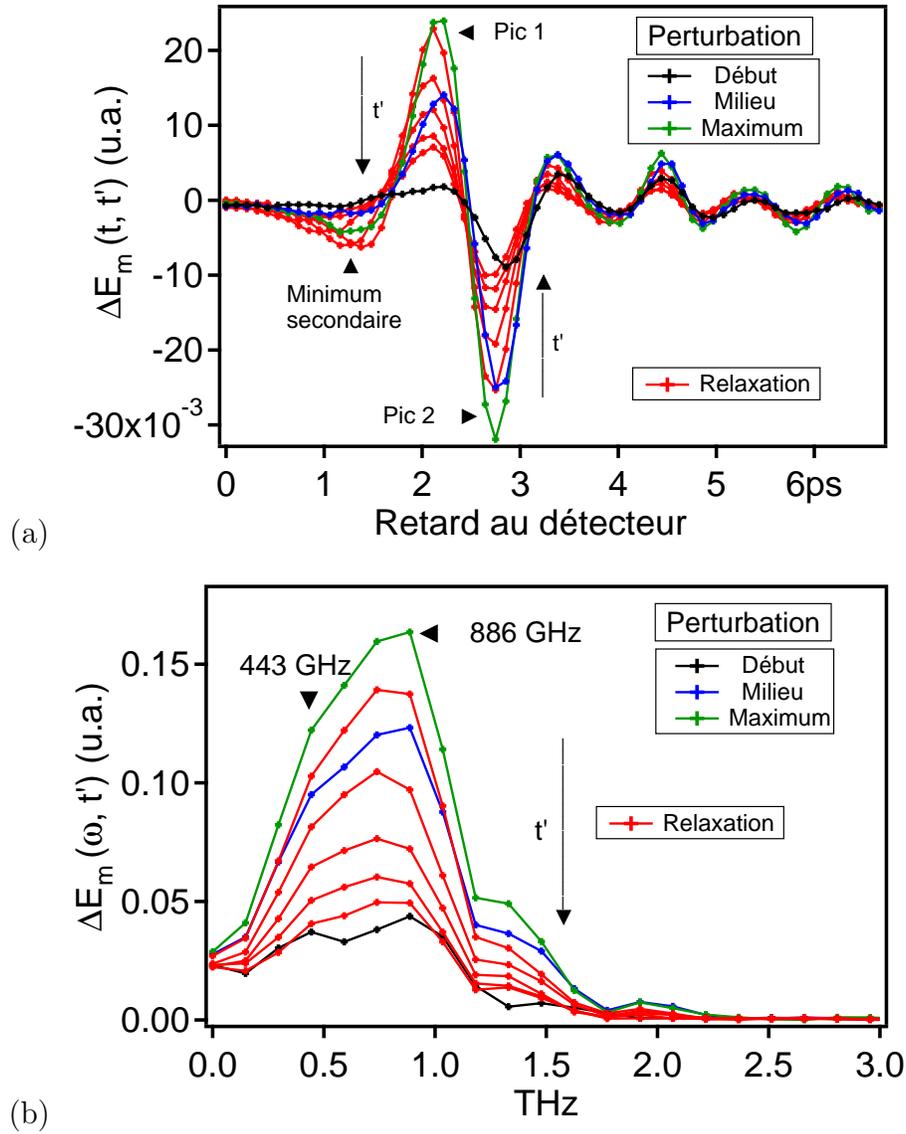


FIGURE 4.6 – (a) Variation de la trace de la sonde-téraherz transmise au travers de YBCO (070831YA) pour différents temps t' pendant et après la perturbation de la pompe-visible. (b) Transformées de Fourier de la variation de la trace en (a). Les courbes noire, bleue et verte représentent la montée pendant la perturbation et les courbes rouges la relaxation après le maximum de perturbation. Le décalage de la pompe-visible $\Delta t'$ entre chaque courbe est de 0.413 ps. La température est de 50 K et la puissance de 8 mW. t' varie de 0 à 2.89 ps sur les figures.

important écart que nous observons. La figure 4.7 (b) présente le comportement de τ_{r1} en fonction de quelques fréquences. Nous trouvons que τ_{r1} diminue avec l'augmentation de la fréquence.

Nous avons effectué le même exercice avec l'échantillon 070823YA, qui a une épaisseur de 60 nm et avec lequel nous avons caractérisé le spectre de l'antenne en fonction de la température, pour l'étude en balayage 2D sur l'échantillon 070831YA (30 nm d'épaisseur). La figure 4.8 (a) présente la TF de la variation de la trace de l'impulsion sonde ($\Delta E_m(\omega, t')$). Sur chacune des courbes, le décalage de la pompe ($\Delta t'$) est de 0.416 ps. Les données sont plus bruyantes que celles de la figure 4.6 (b), mais à mesure que t' augmente, nous observons le même comportement : la variation de conductivité à hautes fréquences relaxe plus rapidement. À la figure 4.8 (b), nous rapportons l'extraction du temps de relaxation τ_{r1} en fonction de la fréquence des données où l'amplitude est la plus élevée en (a). Nous voyons clairement que τ_{r1} diminue d'un facteur **2** avec la fréquence d'environ 2 ps à 1 ps.

Une question demeure à savoir si la dépendance de τ_{r1} avec la fréquence (ou l'énergie des photons) est un effet intrinsèque au matériau. En effet, si la phase de l'impulsion sonde change pendant la perturbation par rapport à l'équilibre, la différence de deux fonctions identiques avec une dépendance temporelle de la phase pourrait donner un comportement étrange du poids spectral en fonction du temps. Pour répondre à cette question, il faudrait mesurer directement le champ électrique transmis de la sonde et non la différence de transmission ⁵. Ainsi, l'effet d'un changement possible de la phase sur τ_{r1} pourrait être écarté. Néanmoins, nous avons mis **en évidence une contribution possible au désaccord** du temps de relaxation extrait à partir des antennes et de la technique pompe-sonde. Cette contribution est la dépendance de l'évaluation du temps de relaxation pour le supraconducteur YBCO par rapport à la fréquence de la sonde térahertz.

4.5 Épaisseur de la couche mince

La figure 4.9 présente sur une échelle semi-log l'effet de l'épaisseur de la couche mince de YBCO sur la variation du champ électrique transmis $\Delta E_m(t_d, t')$ en mode balayage 1D. L'épaisseur de YBCO est de 38 nm pour la courbe rouge et de 60 nm pour la

⁵Nous n'avons pas eu le temps de vérifier cet aspect expérimental. Cette expérience pourrait être réalisée.

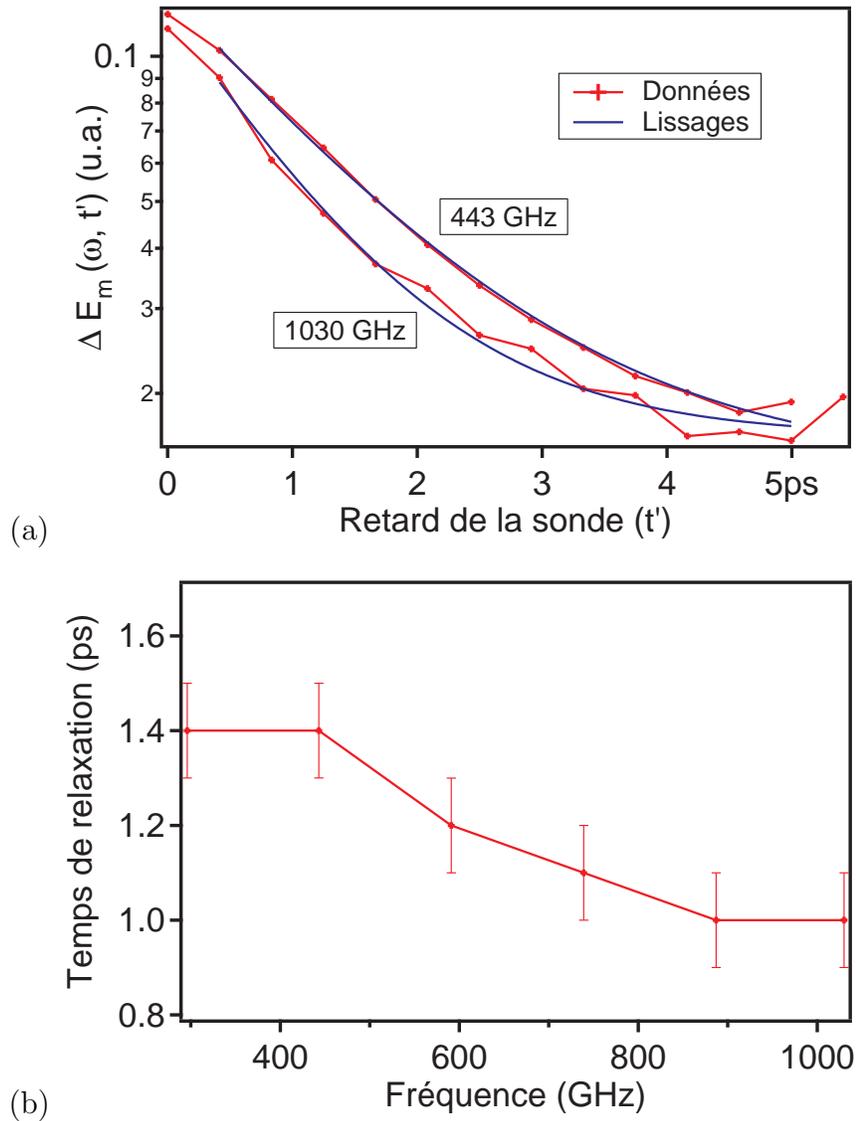


FIGURE 4.7 – (a) Variation de la trace de la sonde-téraherz transmise au travers de YBCO (070831YA) pour différents temps t' pendant et après la perturbation de la pompe-visible. (b) Transformées de Fourier de la variation de la trace en (a). Les courbes noire, bleue et verte représentent la montée pendant la perturbation et les courbes rouges la relaxation après le maximum de perturbation. Le décalage de la pompe-visible $\Delta t'$ entre chaque courbe est de 0.413 ps. La température est de 50 K et la puissance de 8 mW.

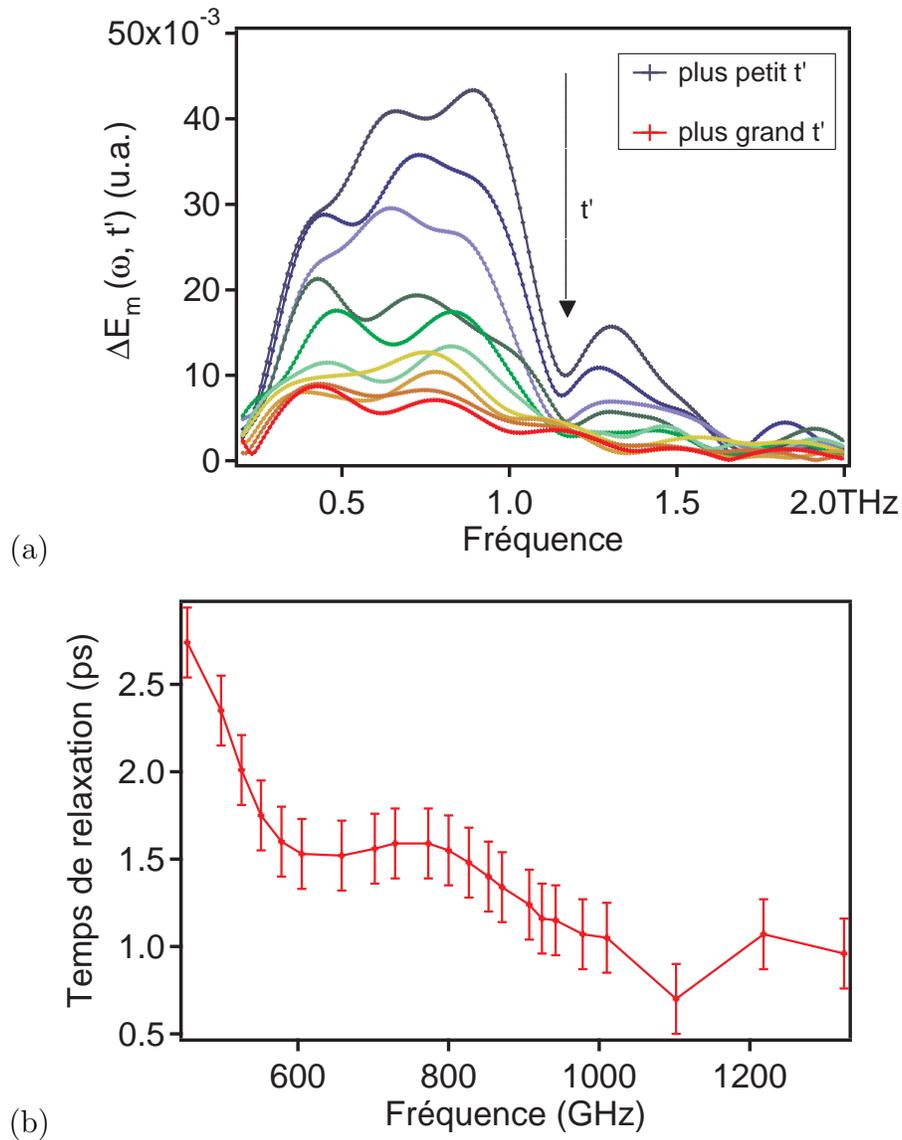


FIGURE 4.8 – (a) Variation de la trace de la sonde-téraherz transmise au travers de YBCO (070823YA) pour différents temps t' pendant et après la perturbation de la pompe-visible. (b) Transformées de Fourier de la variation de la trace en (a). Les courbes noire, bleue et verte représentent la montée pendant la perturbation et les courbes rouges la relaxation après le maximum de perturbation. Le décalage de la pompe-visible $\Delta t'$ entre chaque courbe est de 0.413 ps. La température est de 50 K et la puissance de 8 mW.

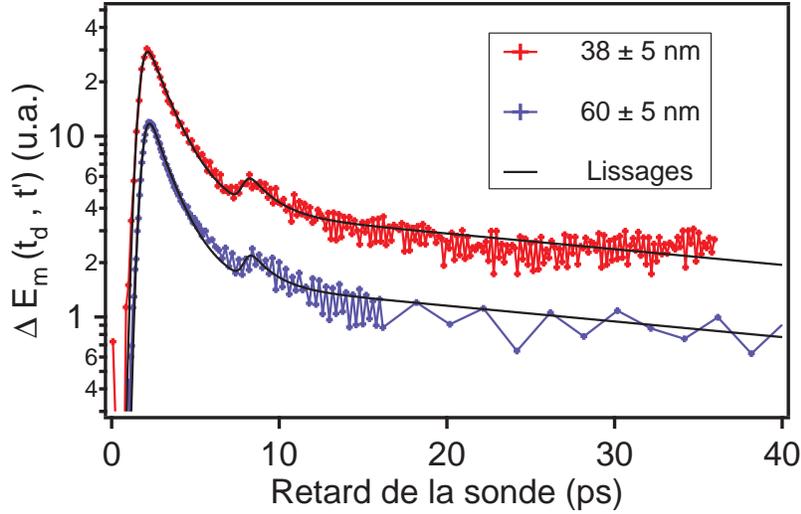


FIGURE 4.9 – Influence de l'épaisseur de la couche de YBCO sur la variation du champ électrique transmis ($\Delta E_m(t)$). Le substrat utilisé est Al_2O_3 . La courbe en rouge est pour une épaisseur de 38 nm ($T = 50$ K) et la courbe en bleue de 60 nm ($T = 30$ K). La puissance d'excitation est de 8 mW.

courbe bleue. Un détail **important** distingue les deux mesures : la couche de 38 nm a été étudiée à 49 K et celle à 60 nm, autour de 30 K. Le comportement du temps de relaxation rapide τ_{r1} et du plus lent τ_{r2} semble identique. Des lissages bi-exponentiels (courbes noires) confirment que $\tau_{r1} = 1.45$ ps et que $\tau_{r2} = 50$ ps. À noter que τ_{r2} contient le comportement de τ_{es} , car la plage de temps n'est pas assez grande pour bien évaluer ce dernier. De plus, le temps de montée extrait τ_{rl} de 0.5 ps est le même pour les deux. Par ailleurs, nous notons qu'en changeant l'épaisseur de 38 nm à 60 nm, $\Delta E_m(t_d, t')$ diminue d'un facteur 2.56. En étant plus épaisse, la couche de 60 nm absorbe plus la radiation térahertz incidente. S'il y avait un quelconque effet thermique à tenir en compte lorsque l'épaisseur change, nous devrions observer un changement sur τ_{r2} . Ce résultat est en opposition aux observations rapportées par Hegmann et Preston [4] qui observent une augmentation du temps lent avec l'épaisseur de la couche mince. Toutefois, dans leur cas, les couches minces étaient beaucoup plus épaisses. Leur interprétation est que la conductivité thermique de la couche mince doit être prise en compte pour évaluer τ_{r2} . Dans notre cas, nous concluons que l'épaisseur n'intervient pas, ou faiblement, dans la diffusion de la chaleur et n'affecte pas le court temps de relaxation.

Le résultat le plus surprenant est le changement de $\Delta E_m(t_d, t')$ avec l'épaisseur. Même

si la couche de 60 nm absorbe environ 40 % plus d'énergie de la pompe visible que la couche à 38 nm, $\Delta E_m(t_d, t')$ est plus important pour la couche à 38 nm. Par contre, l'amplitude de la transmission va dépendre de la conductivité de la couche mince. À la section 3.1.1, nous avons calculé que la conductivité CC de la couche de 38 nm est 2,5 fois plus faible que celle de la couche de 60 nm. D'après ces observations et en utilisant l'approximation de faible perturbation pour calculer le rapport des amplitudes de transmission (R_d) (Voir éq. C.4 à l'annexe C) ⁶, nous obtenons $R_d = 2.8$ pour un rapport d'absorption d'énergie de la pompe de 0,71 ($P_1/P_2 = 1/1.4$). Cette observation se rapproche du ratio observé de 2,5 .

Dans cette section, nous avons montré que τ_{r1} est identique pour les deux échantillons de YBCO d'épaisseurs différentes. Or, lors de la présentation des caractéristiques des antennes (sec. 4.6 et fig. 3.18 et sec. 3.1.4 et fig. 3.21), les temps de relaxation extraits différaient d'un facteur 2. Les temps de relaxation plus lents τ_{r2} sont identiques et trop courts pour que des effets d'accumulation soient envisagés à très basse température. De plus, il est difficile d'invoquer que la qualité des grains est différente puisque nous mesurons des propriétés temporelles identiques. Donc, nous pouvons envisager que nous sommes en présence de jonctions de grains de mauvaise qualité qui affectent d'une façon complexe le champ térahertz émis par l'antenne ⁷. Cependant, peut-être que la relaxation des quasiparticules (τ_{r1}) ne change pas beaucoup pour la distribution de T_c observée. De toute évidence, les propriétés de la couche mince de l'antenne supraconductrice doivent être homogènes, peu importe l'origine, pour que les caractéristiques de l'antenne soient optimales et correspondent à la nature intrinsèque de la relaxation des porteurs dans le YBCO.

4.6 Effets de la température

La particularité avec la technique pompe-sonde comparativement à la modélisation du spectre des antennes d'émission supraconductrices, c'est que l'état normal peut être sondé près de la température critique lorsque la conductivité de la partie normale devient comparable à celle de la partie supraconductrice ($\sigma_n \gg \sigma_s$). Les figures 4.10 (a) et (b) montrent quelques courbes en fonction de la température de la variation de l'amplitude

⁶À l'annexe C, nous considérons P_1 et P_2 identiques.

⁷Un microscope à effet tunnel pourrait mettre en évidence la qualité des jonctions de grains de l'échantillon.

du maximum de la sonde térahertz ($\Delta E_m(t_d, t')$) en fonction du temps. En **(a)**, l'emphase est mise sur les courts temps de relaxation τ_{r1} et τ_{r2} . Les courbes en rouge sont les lissages des données à partir desquels nous extrayons τ_{r1} et τ_{r2} avec le modèle bi-exponentiel (équ. 1.87). Idéalement, il faudrait effectuer le lissage en utilisant trois exponentielles (voir fig. 4.2), mais nous voulons comparer les valeurs de τ_{r1} et τ_{r2} avec un autre échantillon dont la plage de mesures est restreinte à 0-40 ps. Nous y reviendrons plus loin dans cette section. Nous observons que le lissage bi-exponentiel est très bon jusqu'à 25 ps, par la suite, la relaxation diminue selon un temps de relaxation lent (τ_{es}). En **(b)**, seulement le temps de relaxation lent (τ_{es}) est lissé. Le lissage effectué entre 25 ps et 160 ps est très bon sur toute la plage de température.

Afin d'y voir plus clair sur le comportement avec la température des temps de relaxation et de leur amplitude respective, nous avons porté sur les figures 4.11 et 4.12 le comportement des temps de relaxation et des amplitudes des exponentielles respectives tels qu'obtenus grâce au lissage avec le modèle bi-exponentiel et exponentiel. L'amplitude A_1 est associée à τ_{r1} , A_2 est associée à τ_{r2} et A_3 est associée à τ_{es} . Notons que nous n'avons pas pris de mesures en-dessous de 50 K en raison de problèmes de thermalisation, le thermomètre du cryostat de Oxford indiquant une différence de température de 19 K par rapport à la vraie valeur de température de l'échantillon. Un thermomètre placé directement sur l'échantillon nous a permis d'effectuer la correction. Donc, τ_{r1} varie de 1.2 ps à 50 K jusqu'à 3 ps autour de 80 K et descend ensuite à 1 ps à 87 K. Quant à τ_{r2} , celui-ci passe de 21 ps à 50 K à 275 ps près de T_c . Le temps de relaxation long varie de 360 ps à basse température à 1.2 ns au-dessus de la température critique. Le comportement de τ_{es} est qualitativement semblable aux données rapportées par Bluzer et du même ordre de grandeur [5].

Dans le modèle à deux températures à l'équation 1.72, le long temps de relaxation est relié au temps de transfert de la chaleur vers le substrat (τ_{es}) via l'interface formée de la couche mince de YBCO et du substrat de saphir. Or, selon Hegmann et Preston [4], τ_{es} devrait être presque constant et même augmenter lorsque la température diminue : nous observons le contraire et sa variation avec l'augmentation de la température est d'un facteur 3. Est-ce que τ_{es} est uniquement lié au temps typique de transfert de chaleur vers le substrat (τ_{es}) ou bien possède-t-il une contribution provenant d'un processus de relaxation électronique lent relié à la supraconductivité? La figure 4.12 permet de répondre en partie à cette question. Nous observons que les amplitudes A_1 et A_2 des termes exponentiels à temps court (τ_{r1} et τ_{r2}) diminuent en approchant de la température

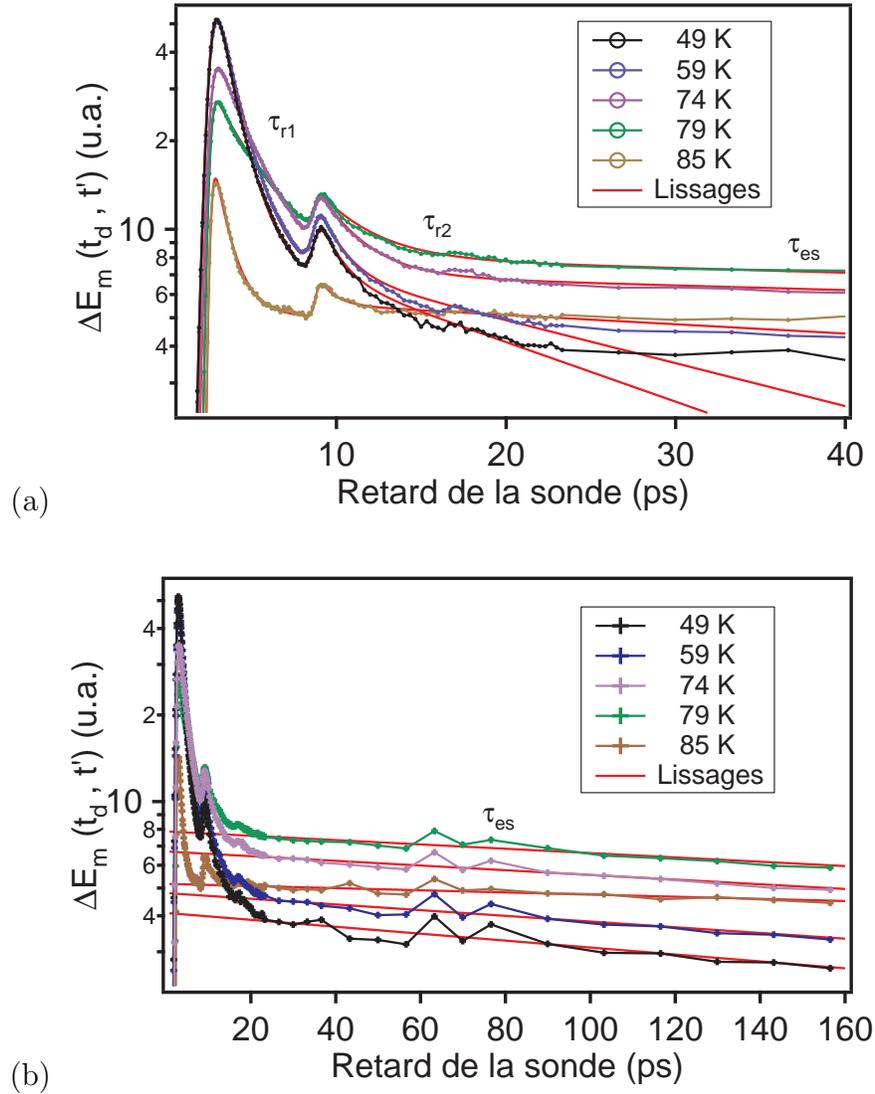


FIGURE 4.10 – Variation de l’amplitude du maximum de la sonde térahertz $\Delta E_m(t_d, t')$ en fonction du retard de la sonde t' par rapport à l’excitation par le faisceau laser pour diverses températures. (a) un zoom sur la relaxation rapide de 0-40 ps. (b) Données complètes : l’emphase est mise sur le temps de relaxation lent τ_{es} . La couche mince de YBCO de 38 nm sur saphir est excitée avec un faisceau pompe d’une puissance de 8 mW.

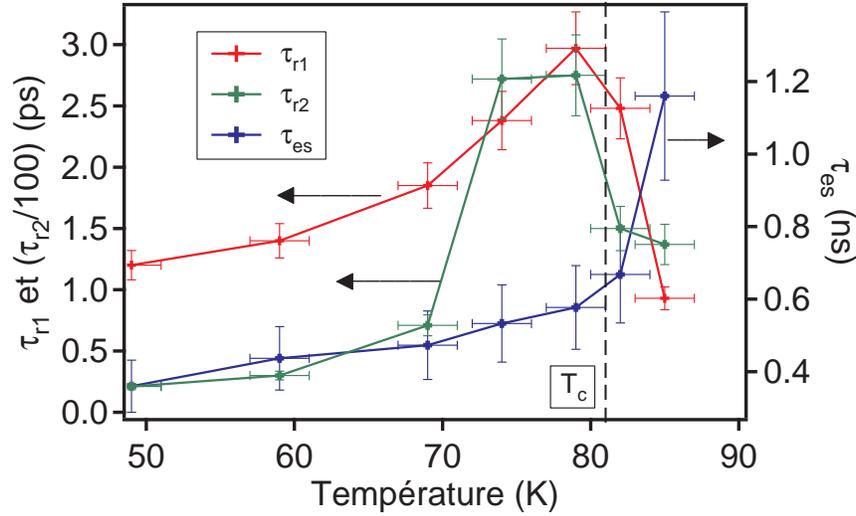


FIGURE 4.11 – Les temps de relaxation courts τ_{r1} et τ_{r2} et le temps de relaxation lent τ_{es} en fonction de la température pour une couche mince de YBCO de 38 nm sur saphir. τ_{r2} a été divisé par 100. La couche mince est excitée avec un faisceau pompe d’une puissance de 8 mW. La température critique T_c est de 81.2 K.

critique T_c . Par contre, l’amplitude A_3 du terme exponentiel à temps long (τ_{es}) augmente en s’approchant de T_c et chute ensuite.

Analysons le comportement en température de A_1 , A_2 et A_3 à partir du modèle à deux températures (éq. 1.71 et 1.72). Tout d’abord, A_1 et A_2 se comportent qualitativement de la bonne façon puisqu’ils diminuent avec la température et que la chaleur spécifique électronique (C_e) augmente avec la température. Par contre, A_3 augmente alors que la chaleur spécifique phononique (C_p) augmente avec la température. De plus, A_3 diminue abruptement près de T_c d’un facteur 3.5 alors que la chaleur spécifique varie de quelques % près de T_c [67]. Quant à l’analyse du rapport de A_1 sur A_3 , nous savons que le rapport de C_p sur C_e est estimé à 40 près de T_c [4], mais il faudrait connaître le comportement en température de la conductivité térahertz à l’équilibre et hors-équilibre de YBCO pour estimer correctement le rapport des amplitudes. Néanmoins, dans le scénario du modèle à deux températures, le rapport des amplitudes devrait diminuer à basse température et non l’inverse. Ces observations renforcent le fait que τ_{es} ne semble pas correspondre uniquement au taux de transfert de l’énergie vers le substrat et que certains porteurs de l’échantillon pourraient relaxer pendant un temps très long qui n’est pas de nature

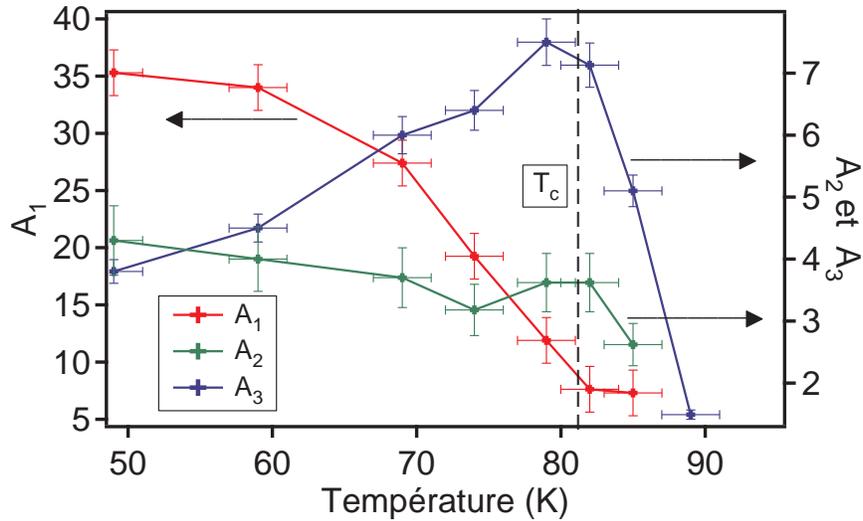


FIGURE 4.12 – Amplitudes A_1 et A_2 de l’exponentielle respective aux temps de relaxation rapides τ_{r1} et τ_{r2} et le temps de relaxation lent τ_{es} en fonction de la température pour une couche mince de YBCO de 38 nm sur saphir. La couche mince est excitée avec un faisceau pompe d’une puissance de 8 mW.

phononique, mais électronique ⁸.

Nous pouvons difficilement invoquer que les comportements inexplicés de τ_{es} et A_3 proviennent uniquement d’effets d’accumulation de chaleur puisque le taux de répétition du laser est faible, soit de 1 kHz, dans le montage de pompe-sonde. Puisque τ_{r1} , τ_{r2} et τ_{es} ont sensiblement le même comportement avec la température, il est raisonnable de penser que la relaxation des quasiparticules s’effectue sur de courts et de long temps. À notre connaissance, aucun auteur n’a mentionné que la relaxation des quasiparticules d’origine électronique dans YBCO pouvait se produire sur un temps aussi long que 1 ns. Notre travail met donc en évidence pour la première fois une relaxation de nature électronique influencée par la supraconductivité sur des échelles de temps gigantesques de l’ordre de la nanoseconde.

À la figure 4.13 (a), l’échantillon de YBCO de 60 nm déposé sur un substrat de LAO et dont la température critique est d’environ 84-85 K a les mêmes comportements qualitatifs avec la température des temps de relaxation que l’échantillon de 38 nm. Les temps de relaxation τ_{r1} et τ_{r2} ont été extraits à partir des courbes de variation de l’amplitude de transmission de l’impulsion sonde à l’aide du modèle bi-exponentiel. Par contre, à la

⁸Si nous mettons de côté l’hypothèse qu’un état métastable est possible [25, 68]

figure 4.13 (b), les amplitudes des termes exponentiels des temps courts diffèrent : ils augmentent en s’approchant de la température critique. Aux figures 4.13 (a) et (b), nous observons que le comportement des amplitudes avec la température est cohérent avec celui attendu selon l’équation 1.86 dans l’approximation de faible perturbation et faible température décrivant la variation de l’amplitude de transmission. Dans cette approximation, la variation du champ électrique mesuré va comme l’inverse du carré de la densité de paire qui tend vers 0 près de la température critique. Par contre, si nous analysons A_1 et A_2 de l’échantillon de 30 nm ayant une distribution de T_c (fig. 4.12), elles ne suivent pas le comportement attendu. Cette anomalie pourrait être expliquée par une distribution de T_c : en devenant normales, certaines régions contribuent moins à la variation de transmission. Mais pourquoi est-ce que A_3 n’a pas le même comportement ? Il est difficile de répondre à cette question en ne connaissant pas l’origine du long temps. Il aurait été intéressant d’étudier le comportement en température de A_3 sur l’échantillon de 60 nm d’épaisseur, mais nous n’avons pas mesuré la variation de transmission sur cette plage de temps par manque de temps.

4.7 Discussion

4.7.1 Comparaison de τ_r

La figure 4.14 résume les résultats clés de cette thèse en comparant les temps de relaxation extraits des mesures obtenues à l’aide des antennes térahertz et de la technique pompe-sonde. La courbe bleue correspond au comportement en température du temps de relaxation extrait à l’aide de la modélisation du spectre de radiation térahertz émis par l’antenne supraconductrice. Cette antenne a été fabriquée à partir de l’échantillon de YBCO de 60 nm déposé sur un substrat de saphir noté YA 60 nm (voir fig. 3.19). Les autres temps de relaxation sont déduits des mesures pompe-sonde. L’étude de l’échantillon YA 60 nm en balayage 1D en pompe-sonde révèle un temps de relaxation plus grand de 0.5 ps à 30 K (courbe en mauve). En étudiant plus en détails cet échantillon en utilisant le mode de balayage 2D, nous avons observé à 50 K que le temps de relaxation mesuré dépendait de la fréquence de la sonde. Le temps de relaxation varie de 2 ps à 1 ps selon la fréquence à laquelle la cinétique a été analysée. Le temps est plus court à hautes fréquences. Un comportement similaire en fonction de la fréquence de la sonde a été observé autour de 50 K avec l’échantillon plus mince de 38 nm noté YA 38 nm (courbe en

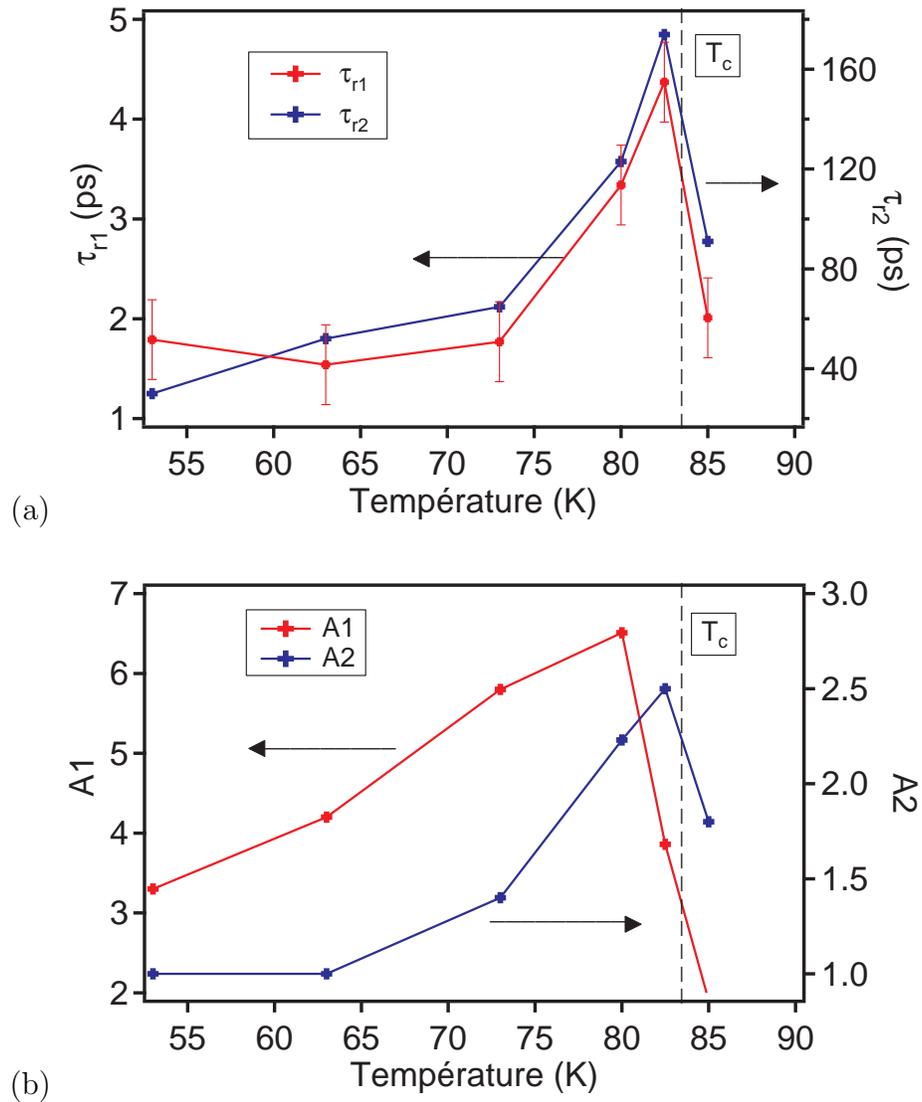


FIGURE 4.13 – (a) les temps de relaxation court et lent extraient à partir des données de $\Delta E_m(t_d, t')$ en fonction de la température de l'échantillon 080729YLa de 60 nm. En (b), les amplitudes respectives des exponentielles obtenues lors du lissage sont présentées. La couche mince de YBCO sur LAO est excitée avec un faisceau pompe d'une puissance de 8 mW.

rouge). Dans ce cas, la variation du temps de relaxation passe de 1.5 ps à 1 ps lorsque la fréquence passe de 0.2 GHz à environ 1 THz. Cette dépendance du temps de relaxation vis-à-vis de la fréquence de la sonde ne serait pas intrinsèque au matériau et pourrait être un artéfact si un déphasage est introduit lors de la transmission de la sonde et que celui-ci est une fonction du retard entre la sonde et la pompe (t'). Cependant, si aucun déphasage de l'impulsion sonde n'est introduit, alors la dépendance avec la fréquence du temps de relaxation pourrait être intrinsèque. Dans ce scénario et pour expliquer un cas simple qui pourrait se produire, le temps entre chaque collision de la partie normale (τ_n) pourrait changer avec t' , ce qui aurait pour effet d'affecter différemment la relaxation de la conductivité pour une fréquence donnée. Si la réponse des quasiparticules ou des paires est une fonction du retard entre la pompe et la sonde, alors nous n'avons pas directement accès à la relaxation intrinsèque des porteurs et un écart du temps de relaxation mesuré (τ_r) peut être observé entre les deux techniques. En effet, il faudrait connaître l'énergie moyenne des quasiparticules hors-équilibre dans le supraconducteur YBCO ainsi que son évolution avec la température. Donc, il ne suffit pas de prendre la moyenne pondérée des temps de relaxation en pompe-sonde pour extraire le temps de relaxation moyen ou réel du système.

Puisque nous avons observé une dépendance du temps de relaxation avec la fréquence de la sonde à 50 K, nous pourrions simplement augmenter la barre d'incertitude sur les valeurs extraites de τ_r du balayage 1D. On note toutefois que le comportement de τ_r (T) pour les trois échantillons, en incluant la couche mince de YBCO de 60 nm déposée sur un substrat de LAO notée YL 60 nm (courbe en vert), augmente avec la température et a sensiblement la même valeur près de la température critique. De plus, les temps de relaxation extraits des mesures sur les antennes présentent un comportement avec la température similaire à celui observé sur les résultats tirés des mesures pompe-sonde. Maintenant que nous sommes confiants que le modèle de lissage du spectre des antennes est valide, nous pouvons aller plus loin dans l'analyse en lissant le comportement en température du temps de relaxation (τ_r).

4.7.2 Dépendance en température de τ_r

Lorsque nous avons présenté la solution temporelle du nombre de quasiparticules en surplus ($\Delta N_n(t)$), nous avons supposé que les phonons hors-équilibre n'influençaient pas de façon appréciable la relaxation des quasiparticules en surplus (τ_r). Si leur effet était

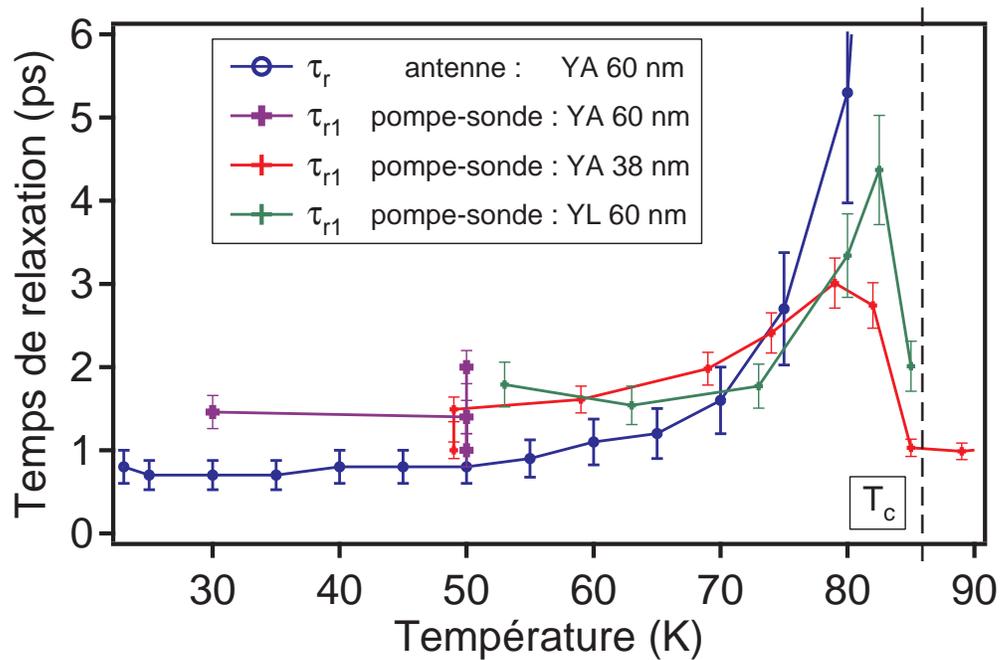


FIGURE 4.14 – Comportement en température des temps de relaxation extraits des mesures de spectroscopie sur l’antenne térahertz (τ_r) et de la technique pompe-sonde (τ_{r1}). La courbe bleue et la courbe mauve correspondent aux propriétés temporelles de la couche mince de YBCO de 60 nm sur substrat de saphir extraites respectivement à partir de la spectroscopie d’une antenne térahertz et de la technique pompe-sonde. Les courbes rouge et verte correspondent aux propriétés temporelles de YBCO de 38 nm sur saphir et YBCO de 60 nm sur LAO. La technique pompe-sonde a été utilisée. À noter que la température critique se situe environ entre 80 K et 85 K pour les différents échantillons.

présent, τ_r devrait augmenter comme l'inverse du gap supraconducteur ($1/\Delta(T)$) près de la température critique [26]. La courbe noire à la figure 4.15 présente un lissage de type $1/\Delta(T)$. Afin d'utiliser une forme adéquate de $\Delta(T)$, nous avons d'abord extrait $N_{so}(T)$ des mesures de la longueur de pénétration de Hosseini et *al.* [60] en utilisant la forme

$$N_{so}(T) = N \sqrt{1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^\alpha} \quad (4.1)$$

où l'exposant α s'avère être de 1.26. $\Delta(T)$ est obtenu en utilisant la relation suivante : $\Delta(T) \propto \sqrt{N_{so}(T)}$. Nous observons que le temps de relaxation (τ_r) ne suit pas le comportement attendu : τ_r augmente beaucoup trop rapidement près de la température critique.

En admettant que la relaxation soit seulement d'origine électronique et qu'il n'y ait pas d'effet d'entonnoir des phonons hors-équilibre, la courbe bleue à la figure 4.15 présente un lissage en température du temps de relaxation extrait lorsque les quasiparticules thermalisent avec les quasiparticules à l'équilibre thermique (voir éq. 1.21). Le meilleur lissage est une dépendance de τ_r en $1/(\beta(T)N_{no}(T))$ où $\beta(T)$ (le taux de recombinaison bimoléculaire) va comme $\Delta^5(T)$. En tenant compte des barres d'erreur, $\beta(T)$ peut aller comme $\Delta^4(T)$ ou $\Delta^6(T)$. En se basant sur les mesures de Pimenov et *al.* [45], nous déduisons que la densité de quasiparticules à l'équilibre thermique n'est pas nulle à basse température pour YBCO près du dopage optimal. Selon la conductivité haute fréquence, le ratio de la densité de paires sur la densité de quasiparticules est de 2. Une fois les densités normalisées au nombre total de porteurs ($N = 1$), nous obtenons la relation suivante : $N_{no}(T) = 1 - 0.66 * N_{so}(T)$.

Nous n'avons pas trouvé de modèle pour les supraconducteurs à haute température critique permettant de décrire la dépendance en température du taux de recombinaison ($\beta(T)$) que nous observons. Cependant, nous avons trouvé un modèle pour les supraconducteurs conventionnels ayant **un gap anisotrope** qui s'approche de la dépendance en température que nous observons. Selon Clarke (réf. [25], chap. 13), les quasiparticules peuvent relaxer de façon élastique via une recombinaison électron-trou dans un supraconducteur avec un gap anisotrope⁹. La dépendance de $\beta(T)$ pourrait alors dépendre de la température comme $\Delta^4(T)$. Une confirmation d'une relaxation principalement élastique des quasiparticules à court temps aurait des implications majeures pour la description de l'antenne supraconductrice. En effet, les collisions élastiques ne relaxent pas l'énergie

⁹Ce processus est élastique, car l'énergie est conservée. C'est la quantité de mouvement qui relaxe.

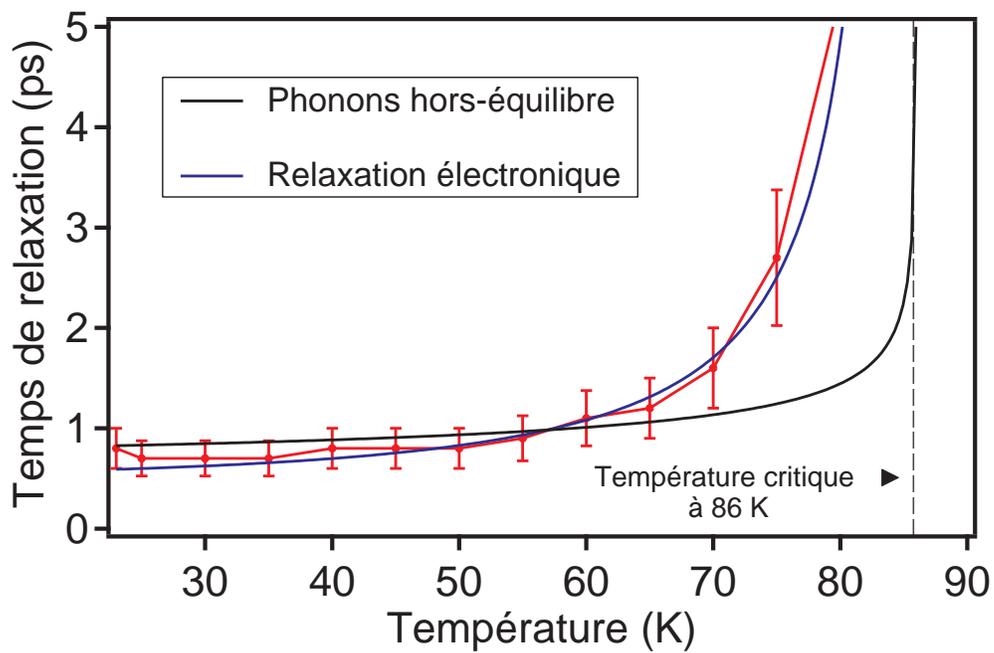


FIGURE 4.15 – Temps de relaxation extraits de la technique de lissage du spectre de l'antenne térahertz de 080723YA (60 nm). La courbe noire représente le lissage en utilisant le modèle des phonons hors-équilibre dans l'approximation de haute température ($\propto 1/\Delta$). La courbe bleue est le lissage en utilisant la relaxation des quasiparticules en surplus sans l'influence des phonons hors-équilibres.

des quasiparticules, c'est la quantité de mouvement qui relaxe. De plus, pour revenir à l'équilibre, il faut ultimement que se produisent des collisions inélastiques avec les phonons ou quasiparticules qui suivraient les collisions élastiques. Dans un tel scénario, les collisions inélastiques se produiraient après plusieurs dizaines ou centaines de picosecondes.

Dans ce chapitre, nous avons montré que nous pouvions relier le temps de relaxation extrait à partir de la spectroscopie des antennes térahertz avec celui extrait en pompe-sonde. La variation de transmission du champ électrique de l'impulsion sonde au travers de l'échantillon de GaAs : H⁺ en balayage 1D permet une mesure directe du temps de relaxation, car il n'y a pas de dépendance du temps de relaxation avec la fréquence. Par contre, la variation de transmission du champ électrique de l'impulsion sonde au travers des échantillons de YBCO en balayage 1D ne permet pas d'obtenir une mesure directe. En effet, la mesure du temps de relaxation est fonction de la fréquence de la sonde. Nous ne pouvons pas confirmer si l'origine de cette dépendance est intrinsèque ou extrinsèque. Cependant, une telle dépendance peut survenir si la réponse des porteurs dépend du retard entre la pompe et la sonde (t'). Un changement du temps entre chaque collision (τ) ou de la masse effective des électrons (m^*) avec t' pourrait expliquer la dépendance du temps de relaxation avec la fréquence. En tenant compte de la dépendance du temps de relaxation avec la fréquence de la sonde, nous pouvons faire correspondre le temps de relaxation rapide avec les deux techniques de mesure pour le supraconducteur YBCO. En examinant la dépendance en température du temps de relaxation le plus court, elle semble être principalement de nature électronique et peu affectée par les phonons hors-équilibre. De plus, le comportement similaire avec la température du temps de relaxation lent de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes avec les temps courts suggère que la relaxation de la densité de quasiparticules en surplus pourrait elle-même dépendre du retard entre la pompe et la sonde ($\tau_r(t')$). Une telle dépendance signifie que la relaxation dépend de l'énergie des quasiparticules en surplus.

Conclusion

Dans cette thèse, nous avons caractérisé le spectre d'antennes térahertz supraconductrices à base de $YBa_2Cu_3O_7$ pour divers paramètres de fonctionnement : le courant appliqué, la puissance d'excitation du faisceau laser et la température d'opération. Le montage de spectroscopie dans le domaine temporel a permis de mesurer le transient du champ électrique émis ($E_{THz}(t)$) par l'antenne supraconductrice à l'aide d'une antenne térahertz de détection à base de GaAs bombardé aux protons multi-énergies (GaAs : H+). Le courant mesuré au détecteur ($I_M(t)$) lors de la mesure du champ électrique émis est affecté par la réponse non-instantanée du détecteur : la largeur de la porte d'intégration temporelle créée dans le GaAs : H+ va dépendre du profil du faisceau d'excitation et des propriétés intrinsèques de relaxation. Les propriétés intrinsèques de relaxation à une perturbation par un faisceau optique dépendent d'un temps de montée τ_c et d'un temps de relaxation τ_r . Donc, le spectre qui est obtenu en effectuant la transformée de Fourier de la réponse au détecteur ($I_M(t)$) n'est pas directement relié à l'antenne supraconductrice.

En calibrant la réponse du détecteur à l'aide d'une antenne d'émission à base de GaAs bombardé aux protons multi-énergies dont les propriétés de relaxation sont considérées les mêmes, nous avons pu dégager le spectre propre à $E_{THz}(t)$ aux bornes de l'antenne de détection. Toutefois, dégager $E_{THz}(t)$ de la réponse du détecteur ne signifie pas pour autant que celui-ci est directement relié aux seules propriétés dynamiques des porteurs dans l'antenne supraconductrice. En effet, lors de la propagation de $E_{THz}(t)$ au travers des éléments du montage de spectroscopie, ce champ peut être affecté. La caractérisation de l'amplitude de transmission d'un champ électrique térahertz sonde au travers de substrats de GaAs, de $LaAlO_3$, de saphir et de silicium, et de la fenêtre de Teflon du cryostat, nous permet de conclure que $E_{THz}(t)$ n'est pas appréciablement affecté au niveau de son contenu spectral. Cependant, nous avons observé que l'allure temporelle de $E_{THz}(t)$ n'est pas celle attendue : deux minima sont présents et le transient du champ électrique est trop court par rapport aux **propriétés de relaxation attendues**

des antennes térahertz. Ces deux observations suggèrent que $E_{THz}(t)$ subit l'équivalent d'une différentiation temporelle qui proviendrait d'un filtrage basse fréquence (facteur ω supplémentaire). Nous croyons que l'origine la plus probable du filtrage basse fréquence est la largeur des électrodes du détecteur qui est environ 3 fois plus petite que la longueur d'onde de la fréquence de coupure du spectre mesuré ¹⁰. Cette dépendance en fréquence a été rapportée dans la littérature [38].

Nous avons développé un modèle pour extraire les propriétés intrinsèques de relaxation à partir du lissage du spectre. Cependant, la validation de ce modèle nécessite de connaître les propriétés intrinsèques des matériaux qui composent les antennes térahertz. La technique pompe-sonde est utilisée pour mesurer les propriétés intrinsèques d'un matériau, mais dans le cas de $YBa_2Cu_3O_7$, les valeurs de temps de relaxation (τ_r) rapportées dans la littérature diffèrent trop pour conclure sur la validité du modèle. De plus, les propriétés intrinsèques du détecteur de GaAs : H+ dépendent des paramètres de bombardement aux protons et de recuit thermique, donc aucune comparaison directe ne peut être faite avec des valeurs de τ_r rapportées dans la littérature. La solution a été de mesurer en pompe-visible et sonde-térahertz en mode transmission les propriétés intrinsèques des **mêmes** échantillons utilisés pour les antennes.

La technique pompe-visible et sonde-térahertz en mode balayage 1D a permis d'extraire un temps de relaxation de 1.1 ps pour le GaAs : H+ à la température ambiante qui concorde avec celui extrait des antennes térahertz de 0.9 ps. L'écart de 0.2 ps est facilement attribuable à l'incertitude sur les valeurs mesurées par les deux techniques. Par ailleurs, cette aussi bonne concordance est possible seulement à très basse puissance d'excitation pour les deux techniques. Dans le cas de YBCO à une température de 30 K, le temps de relaxation extrait est de 1.5 ps en mode balayage 1D, ce qui ne concorde pas avec la valeur de 0.7-0.8 ps extraite de l'antenne supraconductrice à la même température, car l'écart est 4 fois plus important que dans le cas du GaAs : H+. Un facteur 2 différenciant τ_r extrait avec chaque technique pour le YBCO est considérable et mérite d'être expliqué. Nous ne pouvons pas remettre en cause le modèle de lissage du spectre des antennes, car les traces temporelles du GaAs : H+ et de YBCO caractérisées avec le même détecteur sont pratiquement identiques et nous confirmons à l'aide de la technique pompe-sonde que les propriétés intrinsèques du GaAs : H+ concordent.

Le mode de balayage 2D de la technique pompe-sonde permet d'observer que τ_r est

¹⁰Par manque de temps, nous n'avons pas fabriqué de détecteur avec une largeur entre les électrodes différente.

fonction de la fréquence de la sonde. À basse fréquence, autour de 200 GHz, le temps de relaxation extrait est de 1.5-2.0 ps, tandis qu'il est de 0.9-1.0 ps à haute fréquence autour de 1.0-1.3 THz. La valeur du temps de relaxation extraite à hautes fréquences avec la technique pompe-visible et sonde-térahertz concorde davantage avec celle extraite à partir du spectre des antennes térahertz. Nous pouvons expliquer cette dépendance en fréquence de deux façons. La première explication possible est que le faisceau sonde pourrait subir un changement de phase, ce qui pourrait provoquer un artéfact de mesure si celle-ci est une fonction du temps. Dans ce cas, la mesure du temps de relaxation à haute fréquence permettrait la correspondance entre les deux techniques. Par contre, si la dépendance du temps de relaxation avec la fréquence de la sonde n'est pas un artéfact de mesure, alors la deuxième explication serait que la réponse des paires et/ou des quasiparticules au champ électrique de la sonde est une fonction du retard entre la pompe et la sonde (t'). La conséquence est que nous n'aurions pas directement accès à la relaxation de la densité de porteurs et par conséquent, il y aurait une différence entre les temps de relaxation τ_r extrait avec les deux techniques.

De plus, nous avons soulevé que τ_r pouvait être une fonction de l'énergie ou du retard entre la pompe et la sonde, car le comportement avec la température du temps de relaxation lent (τ_{r2}) de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes est similaire à τ_r . En plus, le lissage en température du court temps de relaxation extrait des antennes supraconductrices indique que la dépendance va en $1/(N_{no}(T)\Delta^5(T))$ et non en $1/\Delta(T)$ si la relaxation dépendait des phonons hors-équilibre. Nos observations indiquent que la relaxation des quasiparticules serait principalement de nature électronique, dont le comportement en température n'est pas encore décrit par une théorie hors-équilibre des supraconducteurs à haute température critique.

En-dessous de la densité de courant critique (J_c), l'amplitude d'émission est maximale et linéaire. Au-dessus de celle-ci, l'amplitude d'émission chute ainsi que la largeur du spectre d'émission. Nous avons observé avec la technique de résistivité temporelle que suite à l'éclairage de l'antenne par les impulsions laser, une différence de potentiel apparaissait après un retard important. Nous pensons que l'origine de cet effet pourrait provenir de l'accumulation de chaleur à cause des processus de relaxation très lent. Près de la température critique, τ_{es} diverge et est de l'ordre de la **nanoseconde**. L'utilisation d'un laser avec un haut taux de répétition nécessite une bonne compréhension de l'origine des processus de relaxation lents pour éviter ou de tirer avantage des effets d'accumulation de chaleur. Finalement, nous avons montré que la largeur du spectre de l'antenne est

plus importante à de faibles puissances d'excitation et température d'opération. Pour la caractérisation de matériaux inconnus, ces conditions sont idéales si l'antenne térahertz supraconductrice est intégrée dans un spectromètre dans le domaine temporel.

En terminant, nous avons montré qu'en lissant le spectre d'émission d'une antenne térahertz supraconductrice en fonction de la température, nous pouvions statuer sur la faible contribution des phonons hors-équilibre sur la relaxation des quasiparticules en surplus. Cependant, la compréhension plus complète d'une antenne supraconductrice devra passer par une analyse plus détaillée et par l'explication des mécanismes de relaxation des quasiparticules. Pour y arriver, il faudrait mesurer la variation de la conductivité jusqu'à une dizaine de nanosecondes pour éclaircir l'origine du temps de relaxation très lent (τ_{es}) afin de bien soustraire le temps de transfert de la chaleur vers le substrat et de mieux dégager le comportement en température des temps de relaxation courts τ_{r1} et τ_{r2} . En plus, les temps de relaxation devront être mesurés sur une plus grande plage de température et pour un plus grand nombre de points. Le lissage en température des temps de relaxation pour différentes fréquences de la sonde permettrait peut-être d'éclaircir le fonctionnement de l'antenne et possiblement de mieux comprendre les processus de relaxation hors-équilibre des supraconducteurs à haute température critique. Parallèlement à ce travail, on devra vérifier si les comportements attendus en température des processus de relaxation de charges élastiques et inélastiques pour un supraconducteur à haute-température critique avec une symétrie de gap *d-wave* s'approchent de ceux développés dans le cadre de la théorie BCS pour un gap anisotrope de type *s-wave* [25] ou permettent de décrire le comportement en température du temps de relaxation des quasiparticules en surplus qui va comme l'inverse de la densité de quasiparticules et de l'énergie du gap supraconducteur avec un exposant 5 ($1/(N_{no}(T)\Delta^5(T))$).

Par ailleurs, il faudrait :

1. Extraire des mesures pompe-sonde de $\Delta E_{THz}/E_{THz}$ l'amplitude et la phase afin d'obtenir la dépendance exacte de la densité de paires brisées ($\Delta N_s(t)$) et la densité de quasiparticules en surplus ($\Delta N_n(t)$),
2. S'affranchir des problèmes d'alignement du montage térahertz pour obtenir plus de précision sur le temps de montée τ_c afin de mieux comprendre son origine. Rappelons que τ_c définit la limite hautes fréquences des antennes térahertz. Une façon d'augmenter l'amplitude des hautes fréquences est de diminuer la distance entre les électrodes de l'antenne de détection. De même, nous pourrions changer la distance entre les électrodes pour augmenter la précision sur l'évaluation du temps

de relaxation court τ_r .

3. Mesurer la polarité du champ électrique de l'antenne supraconductrice par rapport à une antenne semiconductrice afin de valider le modèle le plus adéquat pour décrire l'antenne supraconductrice. En effet, le comportement en température de l'amplitude du champ électrique émis indiquent que le modèle $J \neq \text{cte}$ et le modèle **cas $J = \text{cte}$ avec** influence des quasiparticules sont plausibles. Cette mesure permettrait de mettre un terme à un débat dans le domaine à propos de l'origine du fonctionnement de l'antenne supraconductrice.

Annexe A

Calculs de la perturbation de YBCO

Dans cette annexe, nous évaluons le nombre de quasiparticules en surplus créées initialement $\Delta N_n(0)$ dans le supraconducteur YBCO par le faisceau d'excitation visible de la technique pompe-sonde. À partir de $\Delta N_n(0)$, nous pourrions déterminer la grandeur de la conductivité hors-équilibre $\sigma_s(\omega, t')$. Nous utilisons les paramètres présentés au tableau A.1 pour le calcul. Dans un premier temps, nous voulons déterminer le nombre de photons absorbés par YBCO par impulsion. Pour une épaisseur \mathbf{d} de 38 nm et sans réflexion du faisceau pompe, la puissance lumineuse absorbée est

$$P_{abs} = P_o(1 - e^{-\alpha_{opt}d}) = 2.53 \text{ mW} \quad (\text{A.1})$$

Étant donné que la fréquence du laser \mathbf{F} est de 1 kHz, nous obtenons l'intensité absorbée par impulsion I_{abs} selon la relation

$$I_{abs}/impulsion = \frac{P_{abs}}{F} = 2.53 \mu\text{J} (impulsion)^{-1} \quad (\text{A.2})$$

| Paramètres | Valeur |
|---|----------------------------|
| Puissance laser (P_o) | 8 mW |
| Fréquence du laser (F) | 1 kHz |
| Longueur d'onde (λ) | 820 nm |
| Rayon de la surface éclairée (R) | 3.75 mm |
| Coefficient d'absorption optique près de T_c (α_{opt}) | $1 * 10^5 \text{ cm}^{-1}$ |
| Épaisseur bombardée (d) | 38 nm |

TABLEAU A.1 – Paramètres utilisés pour le calcul du nombre de quasiparticules en surplus initialement dans la couche mince de YBCO.

En utilisant une surface circulaire de rayon $R = 3.75$ mm, nous obtenons la densité d'énergie absorbée par impulsion D_{abs} pour la couche mince de YBCO

$$D_{abs} = \frac{I_{abs}/impulsion}{\pi R^2} = 57.3 \text{ mJ } (m)^{-2} (impulsion)^{-1} \quad (\text{A.3})$$

En divisant l'équation A.3 par \mathbf{d} , nous obtenons la densité volumique d'énergie absorbée V_{abs}

$$V_{abs} = \frac{D_{abs}}{d} = 1.51 \text{ MJ } (m)^{-3} (impulsion)^{-1} \quad (\text{A.4})$$

Finalement, pour calculer la variation de la densité de quasiparticules en surplus ($\Delta N_n(0)$), il faut faire une hypothèse que nous n'avons pas à faire pour le GaAs, car ce dernier a un gap d'énergie important. La densité d'électrons de haute énergie initialement excités qui est proportionnelle au nombre de photons absorbés $N_{photons}$ (voir éq. 1.18) vont thermaliser en brisant des paires. Supposons que le facteur multiplicatif soit de 30 pour chaque électron de 1.5 eV (820 nm) qui brise des paires d'une énergie près de $2\Delta = 40\text{-}50$ meV après la thermalisation initiale (τ_c), alors $\Delta N_n(0)$ s'obtient en divisant l'équation A.4 par l'énergie des photons de la pompe et multipliant par $2*30$

$$\Delta N_n(0) = \frac{V_{abs} 2 * 30}{h\nu} = \frac{V_{abs} \lambda 60}{hc} = 3.74 * 10^{26} \text{ quasiparticules } (m)^{-3} (impulsion)^{-1} \quad (\text{A.5})$$

Où c est la vitesse de la lumière.

Annexe B

Calcul de la conductivité en CC de YBCO

La résistance R d'un échantillon permet de déterminer la résistivité ρ si nous connaissons l'épaisseur d , la largeur w et la longueur l de l'échantillon, donc

$$\rho = \frac{Rdw}{l} \quad (\text{B.1})$$

La conductivité σ en courant continu (CC) est l'inverse de ρ

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = \frac{l}{Rdw} \quad (\text{B.2})$$

Dans notre cas, le mesure de la résistance de l'antenne R inclut la résistance des électrodes R_{el} et du micro-pont R_{pont} . Voici la relation à partir de laquelle, nous pouvons extraire ρ

$$R = 2R_{el} + R_{pont} = 2\frac{l_1\rho}{w_1d} + \frac{l_2\rho}{w_2d} \quad (\text{B.3})$$

l_1 et w_1 sont reliées à la longueur et la largeur de l'électrode et l_2 et w_2 sont reliées à la longueur et la largeur du micro-pont.

Pour un micro-pont d'une résistance R de $3 \text{ k}\Omega$ dont les dimensions font $27.6 \text{ }\mu\text{m}$ de large, 60 nm d'épaisseur et $400 \text{ }\mu\text{m}$ de long pour le micro-pont, et les électrodes de $199 \text{ }\mu\text{m}$ de large et 1.36 mm de long, σ est de $0.152 * 10^6 (\Omega\text{m})^{-1}$.

Annexe C

Rapport des amplitudes de transmission

C.1 Effet de l'épaisseur

Dans l'approximation de faible perturbation induite par le faisceau laser et dans la limite de faible température, la variation du champ électrique transmis à l'équation 1.82 s'écrit :

$$\Delta E_m(\omega, t') \approx A'(\omega) \left(\frac{1}{\sigma_s(\omega, t')} - \frac{1}{\sigma_s(\omega)} \right) \quad (\text{C.1})$$

La densité de paires de la conductivité hors-équilibre ($\sigma_s(\omega, t')$) dépend de la différence de la densité de paires à l'équilibre thermique (N_{so}) et de la densité de paires brisées (ΔN_s). En supposant que la conductivité hors-équilibre tout juste après la perturbation ($\sigma_s(\omega, t' = 0)$) est proportionnelle (P) à la conductivité à l'équilibre ($\sigma_s(\omega)$)

$$\sigma_s(\omega, t' = 0) = \frac{e^2 \Delta N_s(0)}{\omega m^*} = P \sigma_s(\omega) \quad (\text{C.2})$$

L'équation C.1 se réécrit dans l'approximation de faible perturbation comme

$$\Delta E_m(\omega, t') \approx A'(\omega) \left(\frac{P}{\sigma_s(\omega)} \right) \quad (\text{C.3})$$

Dans ces approximation, si nous calculons le rapport de variation de transmission du

champ électrique (R_d) pour un échantillon 1 et un échantillon 2, nous obtenons

$$R_d \approx \frac{d_2 \sigma_{s2}(\omega) P_1}{d_1 \sigma_{s1}(\omega) P_2} \quad (\text{C.4})$$

où $d_1 = 38$ nm et $d_2 = 60$ nm. Les indices 1 et 2 indiquent les conductivités supraconductrices à l'équilibre thermique et la perturbation du faisceau laser propre à chacune des couches.

Annexe D

Spectres et lissages des antennes de YBCO

Voici les données de l'antenne 070823YA (60 nm) à partir desquelles le temps de relaxation en fonction de la température a été extrait.

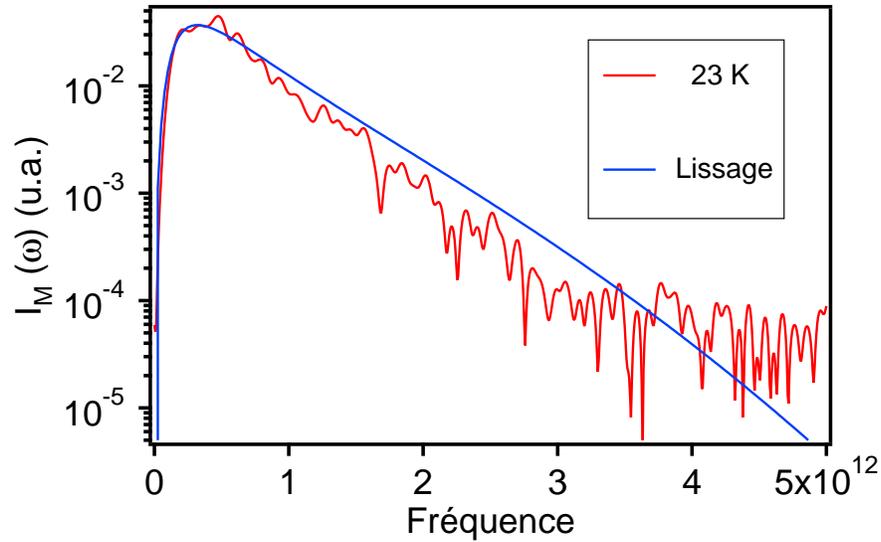


FIGURE D.1 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 23 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW. Le temps de montée de l'antenne d'émission τ_c de 187 fs a été extrait à partir de ce spectre.

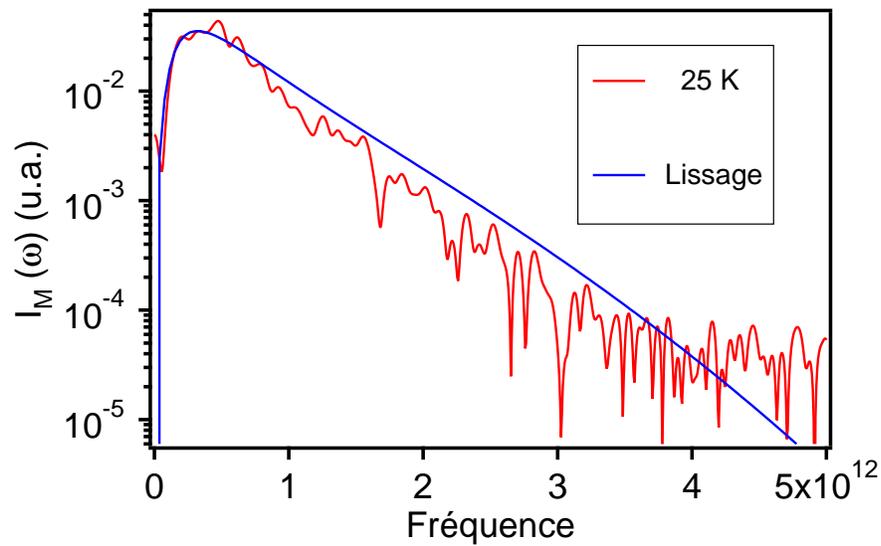


FIGURE D.2 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 25 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

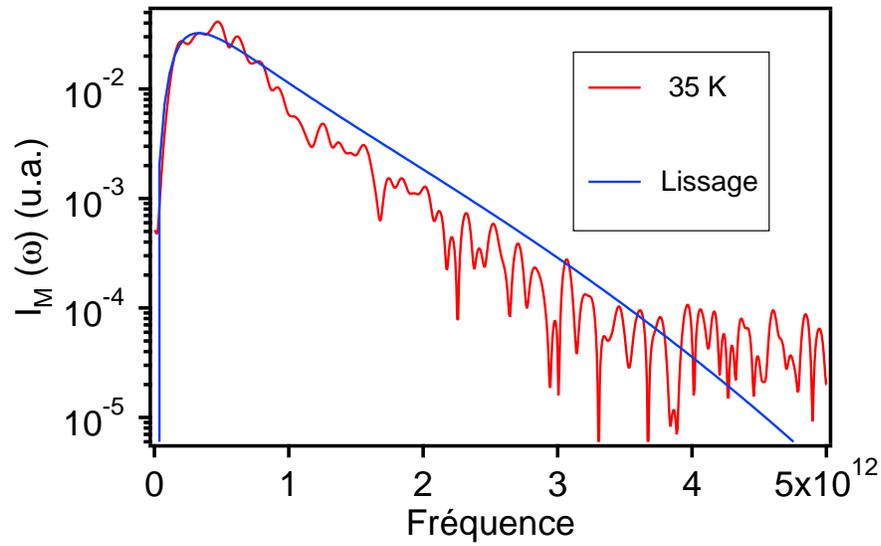


FIGURE D.3 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 35 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

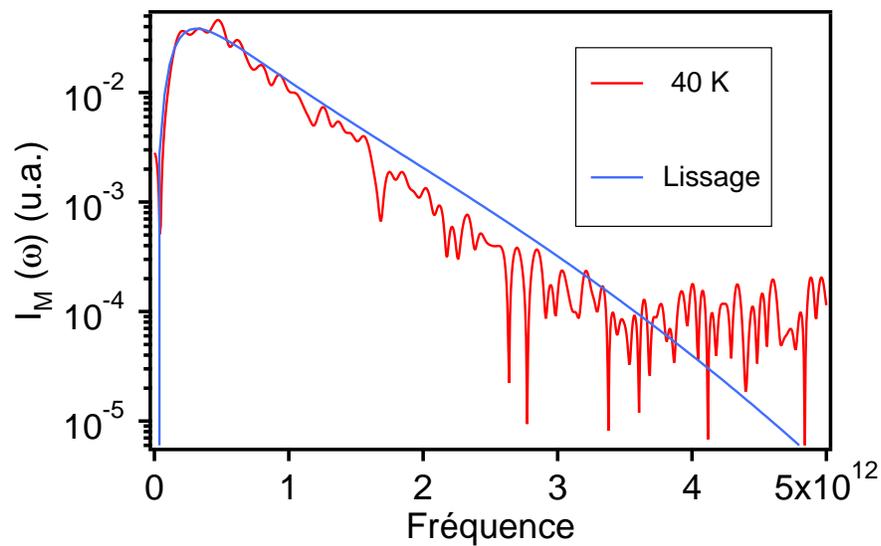


FIGURE D.4 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 40 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

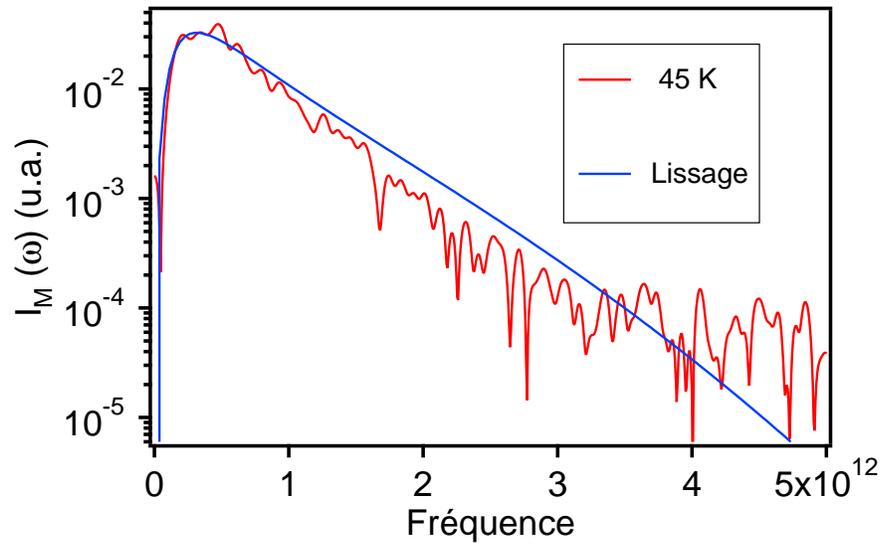


FIGURE D.5 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 45 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

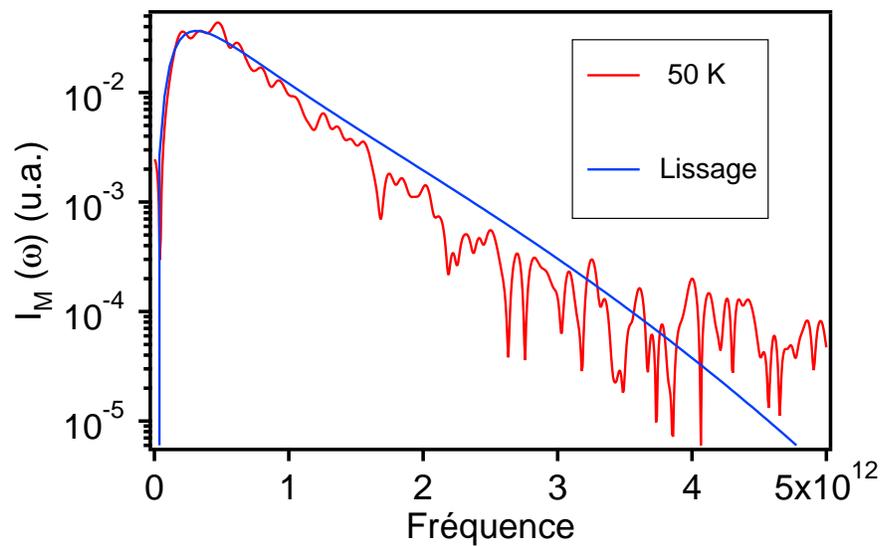


FIGURE D.6 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 50 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

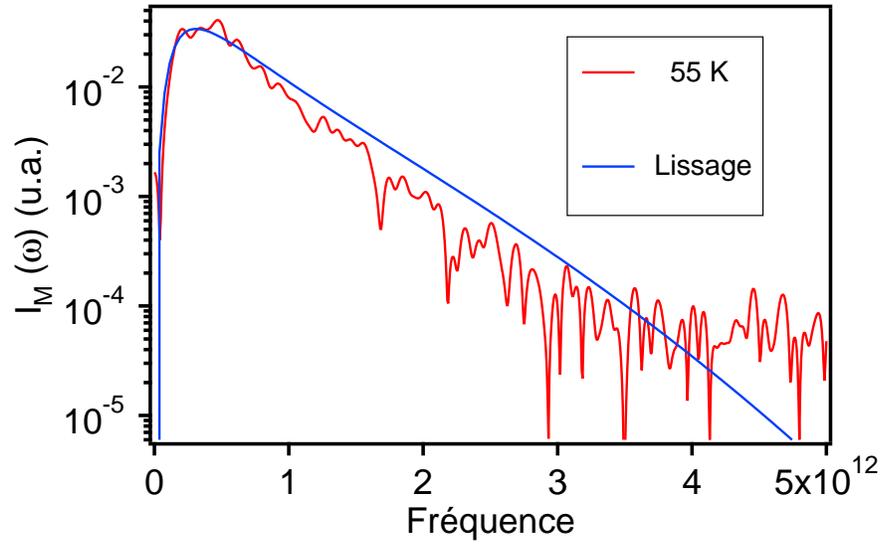


FIGURE D.7 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 55 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

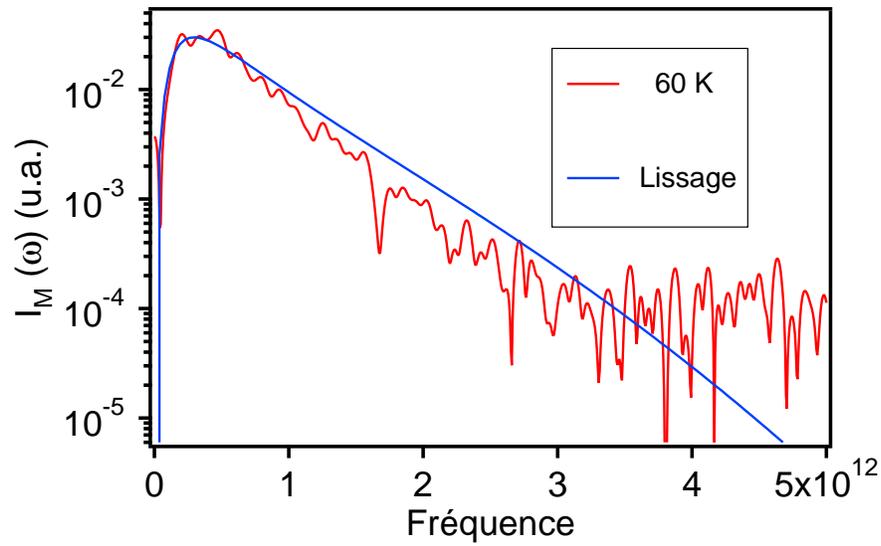


FIGURE D.8 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 60 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

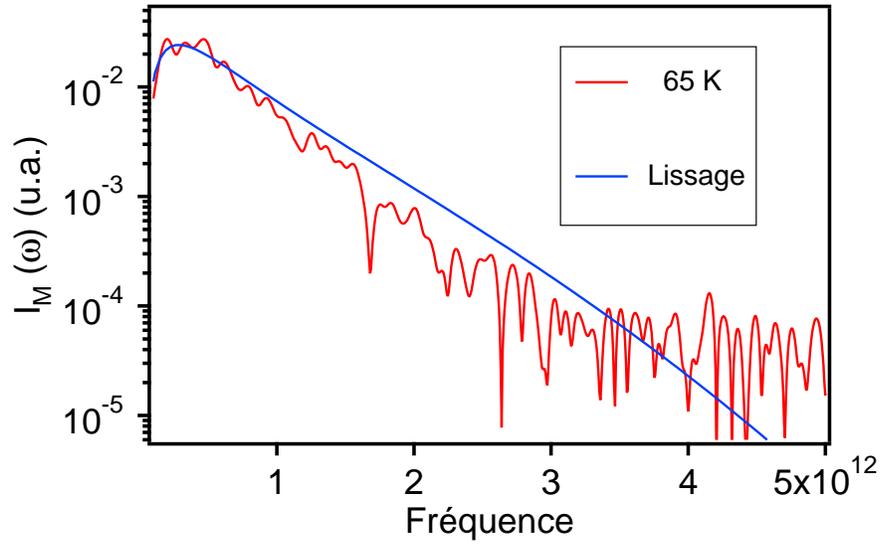


FIGURE D.9 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 65 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

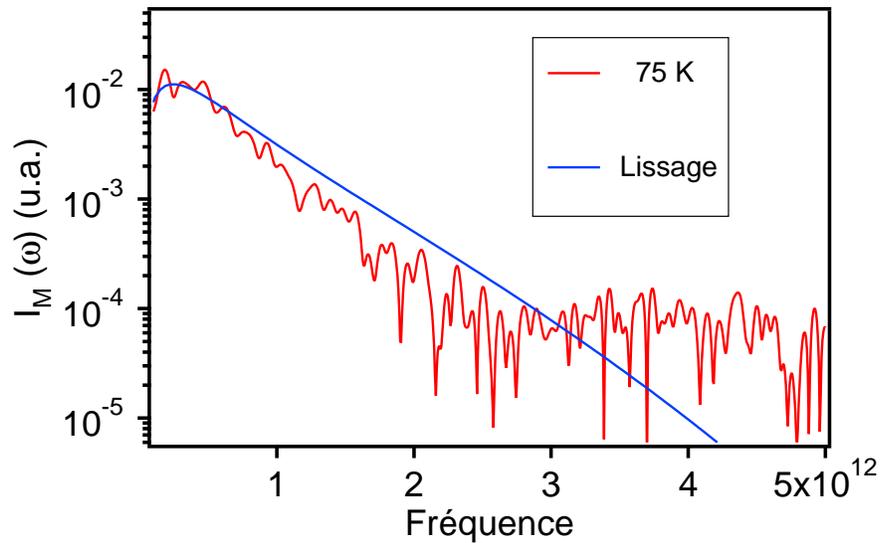


FIGURE D.10 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 75 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

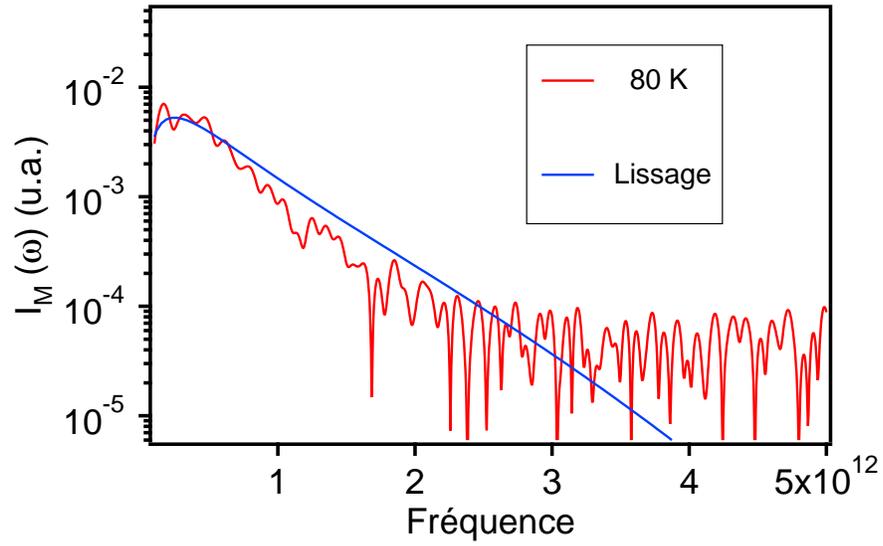


FIGURE D.11 – TF de la trace térahertz $I_M(\omega)$ à 80 K de l'antenne 070823YA (60 nm) pour une puissance d'excitation de 9 mW.

Bibliographie

- [1] D. H. Auston, K. P. Cheung, et P. R. Smith. *Appl. Phys. Lett.* **45**(3), 284 (1995).
- [2] Ch. Fattinger et D. Grischkowski. *Appl. Phys. Letters* **53**(16), 1480 (1988).
- [3] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, et S. Nakashima. *Appl. Phys. Lett.* **69**(14), 2122 (1996).
- [4] F. A. Hegmann et J. S. Preston. *Physical Review B* **48**(21), 16023 (1993).
- [5] N. Bluzer. *Physical Review B* **44**(18), 10 222 (1991).
- [6] Martin van Exter, Ch. Fattinger, et D. Grischkowski. *Appl. Phys. Lett.* **55**(4), 337 (1989).
- [7] P. Uhd Jepsen, R. H. Jacobsen, et S. R. Keiding. *J. Opt. Soc. Am. B* **13**(11), 2424 (1996).
- [8] Allen Rothwarf et B. N. Taylor. *Physical Review Letters* **19**, 27 (1967).
- [9] N. Perrin et C. Vanneste. *Physical Review B* **28**(9), 5150 (1983).
- [10] D. M. Ginsberg. *Physical Review Letters* **8**, 204 (1962).
- [11] S. B. Kaplan, C. C. Chi, D. N. Langenberg, J. J. Chang, S. Jafarey, et D. J. Scalapino. *Physical Review B* **14**(11), 4854 (1976).
- [12] N. Gedik, P. Blake, R. C. Spitzer, J. Orenstein, Ruixing Liang, D. A. Bonn, et W. N. Hardy. *Physical Review B* **70**, 014504 (2004).
- [13] Masayoshi Tonouchi, Masahiko Tani, Zhen Wang, Kiyomi Sakai, Seiji Tomozawa, Masanori Hangyo, Yoshishige Murakami, et Shin-ichi Nakashima. *Jpn J. Appl. Phys.* **35**(Part 1, no 5A), 2624 (1996).
- [14] Po-Iem Lin, Chih-Wei Luo, Hsin-Shan Liu, Shyh-Feng Chen, Kaung-Hsiung Wu, Jenh-Yih Juang, Tseng-Ming Uen, Yih-Shung Gou, et Jiunn-Yuan Lin. *Journal of Applied Physics* **95**(12), 8046 (2004).
- [15] R. D. Averitt, G. Rodriguez, A. I. Lobad, J. L. W. Siders, S. A. Trugman, et A. J. Taylor. *Physical Review B* **63**, 140502 (2001).
- [16] C. Jaekel, H. G. Roskos, et H. Kurz. *Physical Review B* **54**, R6889 (1996).
- [17] A. V. Sergeev et M. YU. Reizer. *International Journal of Modern Physics B* **10**(6), 635 (1996).

- [18] A. D. Semenov, R. S. Nebosis, Yu. P. Gousev, M. A. Heusinger, et K. F. Renk. *Physical Review B* **52**(1), 581 (1995).
- [19] Bassem Salem, D Morris, V Aimez, J Beauvais, et D Houde. *Semicond. Sci. Technol.* **21**, 283 (2006).
- [20] D. Grischkowski et N. Katzenellenbogen. *OSA Proceedings on Picosecond Electronics and Optoelectronics* **9**, 9 (1995).
- [21] John Frederick Corson. *Advances in Terahertz Spectroscopy of High-Tc Superconductors, thèse de doctorat, University of California at Berkeley, U.S.A* (2000).
- [22] W.E. Pickett. *Rev. Mod. Phys.* **61**(2), 433 (1989).
- [23] I. Fugol, V. Samovarov, A. Ratner, V. Zhuravlev, G. Saemann-Ischenko, B. Holzappel, et O. Meyer. *Solid State Communications* **86**(6), 385 (1993).
- [24] Nuh Gedik. *Recombination and Propagation of Quasiparticules in Cuprate Superconductors, thèse de doctorat, University of California at Berkeley, U.S.A* (2004).
- [25] Kenneth E. Gray. *Nonequilibrium Superconductivity, Phonons, and Kapitza Boundaries, Plenum Press - New York and London* (1981).
- [26] V. V. Kabanov, J. Demsar, B. Podobnik, et D. Mihailovic. *Physical Review B* **59**(2), 1497 (1999).
- [27] John David Jackson. *Classical Electrodynamics, Academic Press, Third Edition* (1999).
- [28] M. Tonouchi et H. Saijo. *Journal of Superconductivity : Incorporing Novel Magnetism* **16**(5), 867 (2003).
- [29] Hitoshi Saijo, Masahiko Morimoto, Toshihiko Kiwa, et Masayoshi Tonouchi. *Physica C* **362**, 319 (2001).
- [30] Masahiko Tani, Masayoshi Tonouchi, Zhen Wang, Kiyomi Sakai, Masanori Hangyo, Seiji Tomozawa, et Yoshishige Murakami. *Jpn J. Appl. Phys.* **35**(Part 2, no 9B), L1184 (1996).
- [31] Masayoshi Tonouchi, Masahiko Tani, Zhen Wang, Kiyomi Sakai, Noboru Wada, et Masanori Hangyo. *Jpn J. Appl. Phys.* **35**(Part 2, no 12A), L1578 (1996).
- [32] Han-Kwang Nienhuys et Villy Sundström. *Physical Review B* **71**, 235110 (2005).
- [33] A. Frenkel. *Physical Review B* **54**(2), 1355 (1996).
- [34] Michael Tinkham. *Introduction to Superconductivity, Dover Publications, Second Edition* (1996).
- [35] Gino Paolo Segrè. *Pump-Probe Spectroscopy of Quasiparticule Dynamics in Cuprate Superconductors, thèse de doctorat, University of California at Berkeley, U.S.A* (2001).
- [36] R. A. Kaindl et al. *Physical Review B* **72**, 060510 (2005).
- [37] P. L. Kapitza. *J. Phys. USSR* **4**, 181 (1941).

- [38] Soren Rud Keiding. *THz-Pulses, thèse de doctorat, University of Aarhus, Denmark* (1998).
- [39] D. Grischkowski et Soren Keiding. *Appl. Phys. Letters* **57**(10), 1055 (1990).
- [40] J. Du, S. Gnanarajan, et A Bendavid. *Physica C* **400**, 143 (2004).
- [41] Stéphane Savard. *Fabrication et étude de composants micro-ondes planaires supraconducteurs, mémoire de maîtrise, Université de Sherbrooke, Canada* (2004).
- [42] Yacoubou Salissou. *Détecteurs de radiation térahertz pulsée, mémoire de maîtrise, Université de Sherbrooke, Canada* (2006).
- [43] D. N. Basov et T. Timusk. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 721 (2005).
- [44] A. V. Sergeev, A. D. Semenov, P. Kouminov, V. Trifonov, I. G. Goghidze, B. S. Karasik, G. N. Gol'tsman, et E. M. Gershenzon. *Physical Review B* **49**(13), 9091 (1994).
- [45] A. Pimenov, A. Loidl, G. Jakob, et H. Adrian. *Physical Review B* **59**(6), 4390 (1999).
- [46] S. G. Han, Z. V. Vardeny, K. S. Wong, O. G. Symko, et G. Koren. *Physical Review Letters* **65**(21), 2708 (1990).
- [47] J. Demsar, R. D. Averitt, et A. J. Taylor. *Journal of Superconductivity : Incorporating Novel Magnetism* **17**(1), 143 (2004).
- [48] J. Demsar, B. Podobnik, V. V. Kabanov, Th. Wolf, et D. Mihailovic. *Physical Review Letters* **82**(24), 4918 (1999).
- [49] A. G. Zaitsev, R. Kutzner, et R. Wördenweber. *Appl. Phys. Lett.* **67**(18), 2723 (1995).
- [50] Jr. Charles P. Poole, Farach Horacio A., et Richard J. Creswick. *Superconductivity, Academic Press* (1995).
- [51] M. Chandra Shekar et V. Hari Babu. *Journal of Materials Science Letters* **3**, 600 (1984).
- [52] Hironaru Murakami, Yukihiro Tominari, Masayoshi Tonouchi, Tetsuji Uchiyama, Ienari Iguchi, et Zhen Wang. *Jpn J. Appl. Phys.* **44**(5A), 2998 (2005).
- [53] Hironaru Murakami, Yukihiro Tominari, et Masayoshi Tonouchi. *Physica C* **460-462**, 1493 (2007).
- [54] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, et K. Sakai. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **7**(2), 2909 (1997).
- [55] M. L. Schneider, J. Demsar, Y. Glinka, A. Klimov, A. Krapf, S. Rast, Y. H. Ren, Weidong Si, Y. Xu, X. H. Zeng, I. Bozovic, G. Lüpke, R. Manzke, R. Sobolewski, A. T. Taylor, N. H. Tolk, X. X. Xi, R. Joynt, et M. Onellion. *Europhys. Lett.* **60**(3), 460 (2002).
- [56] B. Field, C. Thomsen, et M. Cardona. *Physical Review Letters* **65**(7), 915 (1990).
- [57] A. Gaugue, C. Ulysse, A. Adam, G. Beaudin, et A. Kreisler. *Physica C* **372-376**, 383 (2002).

- [58] M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, M. Hangyo, N. Wada, et Y. Murakami. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **7**(2), 2913 (1997).
- [59] H. Wald, C. Steigmeier, P. Seidel, S. Nashima, M. Tonouchi, et M. Hangyo. *Physica C* **341-348**, 1899 (2000).
- [60] A. Hosseini, R. Harris, Saeid Kamal, P. Dosanjh, J. Preston, Ruixing Liang, W. N. Hardy, et D. A. Bonn. *Physical Review B* **60**(2), 1349 (1999).
- [61] Takahiro Yoshimura, Toshihiko Kiwa, et Masayoshi Tonouchi. *Physica C* **362**, 329 (2001).
- [62] N. Tanichi, N. Wada, T. Nagashima, M. Tonouchi, M. Hangyo, M. Tani, et K. Sakai. *Physica C* **293**, 229 (1997).
- [63] T. Kondo, M. Tonouchi, et M. Hangyo. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **11**(1), 3166 (2001).
- [64] W. Schnelle, R. Fischer, et E. Gmelin. *J. Phys. D : Appl. Phys.* **34**, 846 (2001).
- [65] S. G. Han, Z. V. Vardeny, O. G. Symko, et G. Koren. *Physical Review Letters* **67**, 1053 (1991).
- [66] Matthew C. Beard, M. Turner, et Charles A. Schmuttenmaer. *Physical Review B* **62**, 15764 (2000).
- [67] Tooru Atake, Akio Honda, et Hitoshi Kawaji. *Physica C* **170**, 70 (1991).
- [68] André-Marie Tremblay. *Applications of Quantum Field Theoretical Methods to Some Problems in the Nonequilibrium Statistical Mechanics of Conductors*, thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, U.S.A (1978).