

CHAPITRE 2

Propriétés intrinsèques du cristal de BCT

Le titanate de baryum est un matériau photoréfractif particulièrement intéressant en raison de ses coefficients électro-optiques élevés. Il a donc été très étudié et de nombreuses applications furent démontrées avec ce cristal. Cependant, le titanate de baryum ne peut être utilisé dans des applications commerciales car il présente une transition de phase destructrice à température ambiante vers 10° , qui détruit ses propriétés photoréfractives et même éventuellement le cristal lui-même.

C'est pourquoi de nombreuses recherches furent entreprises en vue de mettre au point un cristal aussi efficace que le titanate de baryum qui soit sans transition de phase aux alentours de la température ambiante. De nombreux dérivés du titanate de baryum furent ainsi étudiés comme $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ et $Ba_{1-x}Ca_xTiO_3$. Or, la composition congruente du titanate de baryum strontium correspond à des quantités de strontium très faibles (x inférieur à 0,02), ce qui a pour conséquence que les autres impuretés ont beaucoup d'influence sur la valeur appropriée de x , d'où des difficultés de croissance [Buse 97]. C'est donc le cristal de $Ba_{1-x}Ca_xTiO_3$ qui apparaît comme le plus prometteur et qu'a choisi de développer l'université d'Osnabrück.

I. Le cristal de $Ba_{0,77}Ca_{0,23}TiO_3$ (BCT)

Le cristal de BCT présente deux avantages par rapport au $BaTiO_3$. D'une part, l'ajout de calcium dans le cristal a pour conséquence de diminuer la température de la transition de phase vers la phase orthorhombique. D'autre part, la croissance de ce cristal est beaucoup plus simple que celle de $BaTiO_3$.

I.1. Réalisation des cristaux

I.1.a. Croissance de $BaTiO_3$

Il existe un problème majeur dans la croissance du $BaTiO_3$. La température minimale de croissance des cristaux à partir d'un mélange stoechiométrique est située autour de $1620^\circ C$ [Kuper 97 (2), DeVries 54], ce qui conduit à la réalisation de cristaux en phase hexagonale. Lors du refroidissement, le cristal subit une transition de phase de la phase hexagonale vers la phase cubique qui a lieu vers $1432^\circ C$ et qui a pour effet de détruire le cristal. C'est pour cette raison que les cristaux de $BaTiO_3$ sont réalisés à partir d'un mélange de BaO et de TiO_2 où le dernier composant est en excès. L'excès de TiO_2 a pour effet d'abaisser la température minimale de croissance sous la transition de phase et de permettre la croissance de cristaux directement en

phase cubique. L'inconvénient de cette technique est que la vitesse de croissance des cristaux est très lente. Pour BaTiO_3 , elle est de l'ordre de 0,01 mm/h [Rytz 90 (3)].

I.1.b. Croissance de BCT

La technique de croissance des cristaux de BaTiO_3 date des années 70. Avant cette date, d'autres moyens de faciliter l'obtention des cristaux furent étudiés. C'est avec cet objectif que le système $\text{BaTiO}_3\text{-CaTiO}_3$ fut étudié pour la première fois dans les années 50. DeVries et al. [DeVries 54] montrèrent qu'une fraction molaire de CaTiO_3 de $x = 0,27$ permettait d'obtenir des solutions de $\text{BaTiO}_3\text{-CaTiO}_3$ solides dans une composition congruente. Jusqu'en 1994, il n'existe quasiment aucune information sur la croissance de cristaux massifs. En 1994, Balakumar et al. [Balakumar 94] réalisèrent des cristaux de $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ sous flux de KF pour des compositions allant de $x = 0$ à 0,2. Enfin, en 1996, des chercheurs de l'université d'Osnabrück [Kuper 97 (1) et (2)] s'intéressèrent vraiment à ce cristal et déterminèrent une composition de croissance congruente pour une fraction molaire $x = 0,23$ en CaTiO_3 qui à la température de croissance stoechiométrique de 1590 °C donne des cristaux en phase cubique [Kuper 97 (2)].

Les cristaux de BCT étudiés dans cette thèse ont tous été synthétisés à l'université d'Osnabrück par la méthode de Czochralski. La méthode de croissance des cristaux est détaillée dans les références [Kuper 97 (1) et (2)]. La croissance se fait à partir d'un mélange de TiO_2 , BaCO_3 et CaCO_3 placé dans un creuset en platine et porté à la température de croissance de 1590° C. Un germe est ensuite mis en contact avec le mélange et le tirage s'effectue à une vitesse qui peut aller jusqu'à 3 mm/h, ce qui est beaucoup plus rapide que dans le cas de BaTiO_3 (0,15 mm/h). Les cristaux obtenus sont alors en phase cubique et ils sont refroidis jusqu'à température ambiante où ils sont en phase quadratique. Des échantillons sont alors taillés et polarisés pour obtenir des cristaux monodomaine. Pour cela, ils sont chauffés à 120 °C puis refroidis à la température ambiante avec un champ appliqué de 1,6 kV/cm suivant l'axe \vec{c} , ce qui les rend monodomaine [Veenhuis 00 (1)].

Dans cette partie, nous utilisons des cristaux dopés. Les cristaux dopés au rhodium (ou au fer) ont été réalisés en remplaçant une fraction de TiO_2 par la quantité voulue de Rh_2O_3 (ou Fe_2O_3) dans le mélange initial [Veenhuis 00 (1) et (2)].

Les avantages de pouvoir faire croître des cristaux à la composition stoechiométrique sont nombreux. Les cristaux ont une croissance plus rapide, ils sont a priori plus homogènes et il est plus aisé d'obtenir des cristaux de grande dimension.

I.2. Structure du cristal

Le cristal de BCT fait partie de la famille des ferroélectriques à octaèdre d'oxygène. Le cristal reste en phase quadratique de -120 °C (au moins) à 98 °C [Kuper 97 (1) et (2)] et à température ambiante, il possède une polarisation spontanée orientée suivant l'axe cristallographique \bar{c} . La symétrie du cristal dans cette phase est 4mm. Le tenseur des coefficients électro-optiques à température ambiante a donc la même forme que celui du titanate de baryum, à savoir qu'il comporte 3 coefficients électro-optiques non nuls qui sont $r_{13} = r_{23}$, r_{33} et $r_{42} = r_{51}$. BCT est un milieu uniaxe avec un axe optique orienté suivant l'axe \bar{c} . Ses indices de réfraction ont été mesurés par la méthode du minimum de déviation [Simon 97] et des ajustements par la formule de Sellmeyer permettent le calcul des indices à différentes longueurs d'onde :

$$n^2(\lambda) - 1 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} \quad (2-1)$$

Les paramètres obtenus pour les indices ordinaire et extraordinaire sont donnés dans le tableau 2-1 ainsi que les indices aux longueurs d'onde qui nous intéressent, à savoir 514 nm et 850 nm.

Tableau 2-1 : Indices de réfraction et paramètres de Sellmeyer pour le cristal de BCT [Simon 97].

	A	B	C (10 ⁻¹⁴ m ²)	n (514 nm)	n (850 nm)
n_o	2,212	2,058	7,654	2,47	2,35
n_e	2,061	2,056	6,810	2,41	2,31

Les premiers paramètres mesurés sur ce cristal ont été les constantes diélectriques $\epsilon_{11} = 1120$ et $\epsilon_{33} = 240$ [Kuper 97 (1)] et les coefficients électro-optiques $r_{13} = 36 \text{ pm.V}^{-1}$ et $r_{33} = 140 \text{ pm.V}^{-1}$ [Kuper 98].

La principale interrogation concerne le coefficient électro-optique r_{42} . En effet, dans le titanate de baryum, ce coefficient a une valeur très élevée qui est à l'origine de la bonne sensibilité holographique du cristal [Krätzig 80]. Or, les chercheurs de l'université d'Osnabrück pensaient que ce coefficient était nul ou proche de zéro dans BCT. Leur raisonnement était basé sur le fait que la transition vers la phase orthorhombique est rejetée très loin de la température ambiante dans le cristal de BCT. Comme la valeur élevée du coefficient r_{42} dans le titanate de baryum à température ambiante est attribuée à la proximité de la transition de phase de la phase quadratique vers la phase orthorhombique, cela laissait présager une faible valeur de ce coefficient dans BCT. Leur supposition était renforcée par une mesure de Kuper donnant un

coefficient r_{42} nul annoncée dans sa thèse [Kuper 97 (2)], mais qui ne fut pas reprise dans un article ultérieur.

Notre premier objectif a donc été d'évaluer les coefficients électro-optiques du BCT, aussi bien expérimentalement que théoriquement.

II. Première étude rapide par couplage deux ondes

L'objectif de cette partie est d'évaluer rapidement les valeurs des coefficients électro-optiques du cristal de BCT. Nous utilisons une méthode de mesure photoréfractive appelé le couplage deux ondes en faisant quelques approximations afin d'obtenir facilement un ordre de grandeur de ces paramètres. Pour cette partie et pour la suite, on trouvera des compléments détaillés dans la référence [Pauliat 00].

II.1. Présentation des techniques de mesures

II.1.a. Mesure du gain photoréfractif

L'effet photoréfractif

Le mécanisme physique responsable de l'effet photoréfractif est une modulation spatiale de l'indice de réfraction. Les matériaux photoréfractifs que nous étudions sont des matériaux isolants qui sont rendus photoconducteurs par la présence d'impuretés appelées pièges et présentes sous deux états de valence dans la bande interdite. Lorsque le matériau est illuminé par un système de franges d'interférences, l'absorption de photons dans les zones brillantes permet à une charge électrique d'être libérée d'un site occupé et de se recombiner dans un site vide dans les zones sombres. On obtient une redistribution spatiale contrôlée de charges électriques qui engendre un champ électrique modulé spatialement, dit champ de charge d'espace. Par effet électro-optique, ce champ produit une variation de l'indice de réfraction du matériau, ce réseau d'indice étant déphasé de $\pi/2$ par rapport au réseau d'illumination en l'absence de champ électrique extérieur. C'est ce déphasage qui est à l'origine du phénomène de couplage d'ondes photoréfractif.

Le couplage deux ondes

Lorsqu'on fait interférer deux faisceaux pompe P et sonde S dans un cristal photoréfractif, le réseau d'indice qui s'inscrit par effet photoréfractif permet aux deux faisceaux de diffracter : le faisceau P diffracte dans la direction du faisceau S et vice-versa (Figure 2-1). Cependant, ce

réseau d'indice étant un réseau de phase, le diffracté du faisceau P dans la direction de S est déphasé de $\pi/2$ par rapport au faisceau S transmis et réciproquement. De plus, le déphasage de $\pi/2$ du réseau d'indice par rapport au réseau d'illumination, caractéristique propre à l'effet photoréfractif, entraîne un déphasage supplémentaire de $+\pi/2$ sur l'un des faisceaux et de $-\pi/2$ sur l'autre. Si on considère que le déphasage est de $+\pi/2$ sur le faisceau P, on obtient :

- un déphasage de π entre les faisceaux P transmis et S diffracté, ce qui correspond à des interférences destructives et donc à une atténuation du faisceau total transmis dans cette direction.

- un déphasage de 0 entre les faisceaux S transmis et P diffracté, ce qui correspond à des interférences constructives et donc à une amplification du faisceau total .

Par conséquent, on a transfert d'énergie d'une onde vers l'autre [Pauliat 00].

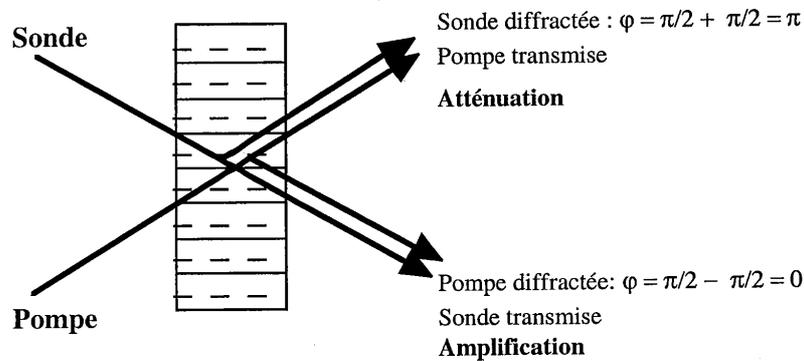


Figure 2-1 : Principe du couplage deux ondes.

Le gain photoréfractif

L'amplitude de ce transfert d'énergie permet de caractériser l'effet photoréfractif par l'intermédiaire d'un paramètre appelé gain photoréfractif Γ . Le gain d'amplification est défini comme le rapport entre l'intensité du signal lorsque le cristal est illuminé par le faisceau pompe et que le transfert d'énergie a lieu (I_{SP}) et l'intensité de ce signal sans faisceau pompe (I_S) et donc sans réseau.

On en déduit le gain photoréfractif, lorsque le faisceau signal est de faible intensité devant le faisceau signal :

$$\Gamma = \frac{1}{I} \ln \left(\frac{I_{SP}}{I_S} \right) \quad (2-2)$$

où l est la longueur d'interaction des deux faisceaux (qui est en général égale à l'épaisseur de cristal traversée).

Le signe du gain dépend du sens de l'axe optique du cristal et de la nature des porteurs (électrons ou trous). On peut donc passer très simplement d'un régime d'amplification à un régime d'atténuation en retournant le cristal de 180° . Cette inversion de signe n'existe que pour le gain photoréfractif et pas pour les autres phénomènes (tels l'absorption induite, les réseaux d'absorption,..) qui peuvent coexister avec l'effet photoréfractif. Grâce à cette propriété, on peut extraire par un calcul simple la valeur du gain de celles des effets parasites. Pour les résultats expérimentaux présentés ultérieurement, chaque point de mesure correspond à deux mesures : une pour chaque sens possible du transfert d'énergie. Cette technique nous permet d'obtenir le seul gain photoréfractif corrigé de toute autre contribution de type réseau d'absorption ou absorption induite.

Expression théorique du gain photoréfractif

L'écriture des équations qui régissent le couplage deux ondes dans un cristal photoréfractif fait apparaître l'expression du gain photoréfractif qui s'écrit :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda_0} n^3 r^{\text{eff}} E_{\text{sc}}(k_r, I) (\hat{e}_s \cdot \hat{e}_p) \quad (2-3)$$

où λ_0 est la longueur d'onde dans le vide, n l'indice de réfraction moyen, r^{eff} le coefficient électro-optique effectif (qui sera défini dans le paragraphe suivant), E_{sc} l'amplitude du champ de charge d'espace et $(\hat{e}_s \cdot \hat{e}_p)$ le produit scalaire entre les vecteurs unitaires parallèles au champ électrique de chaque faisceau. Ce produit scalaire $(\hat{e}_s \cdot \hat{e}_p)$ dépend uniquement de la polarisation et prend les valeurs 1 ou $\cos(2\theta)$ suivant que la lumière est polarisée ordinairement ou extraordinairement. (2θ) est l'angle entre les faisceaux à l'intérieur du cristal.

La dépendance du gain photoréfractif avec le vecteur réseau $k_r = 4\pi n \sin \theta / \lambda_0$ et l'intensité incidente vient du champ de charge d'espace qui est décrit dans la plupart des cas par la formule générale [Kukhtarev 79, Montemezzani 00]:

$$E_{\text{sc}}(k_r, I) = \frac{k_B T}{e} \eta(I) \frac{k_r}{1 + \frac{k_r^2}{k_0^2(I)}} \quad (2-4)$$

Dans l'expression précédente, $\eta(I)$ exprime la saturation du gain avec l'intensité, qui s'écrit en première approximation :

$$\eta(I) = \frac{1}{1 + \frac{I_{\text{sat}}}{I}} \quad (2-5)$$

La saturation du gain avec l'intensité exprimée par ce terme est reliée physiquement à une compétition entre l'excitation thermique et l'excitation optique et donc à l'amplitude respective de la photoconductivité et de la conductivité dans le noir. L'intensité de saturation I_{sat} est définie expérimentalement comme l'intensité pour laquelle le gain photoréfractif est divisé par 2. Ce paramètre nous permet de caractériser le rapport photoconductivité / conductivité dans le noir pour un cristal donné.

Le second terme dépendant de l'intensité dans l'équation 2-4 est le vecteur d'onde d'écran de Debye k_0 , qui s'exprime en fonction de la densité effective de pièges N_{eff} suivant la relation :

$$k_0^2(I) = \frac{e^2 N_{\text{eff}}(I)}{k_B T \epsilon_0 \epsilon^{\text{eff}}} \quad (2-6)$$

où ϵ^{eff} est la constante diélectrique effective (qui sera déterminée dans le paragraphe suivant). La densité effective de pièges nous renseigne sur la quantité de charges disponibles pour participer à l'effet photoréfractif. Elle est composée des impuretés involontairement présentes dans le cristal s'il est non dopé, et/ou des dopants ajoutés lors de la croissance s'il l'est. La dépendance de cette densité avec l'intensité est due à une redistribution des charges qui peut éventuellement avoir lieu entre différentes espèces photoréfractives.

II.1.b. Coefficients électro-optiques et constantes diélectriques effectifs

Les expressions théoriques (2-3) et (2-6) font intervenir un coefficient électro-optique et une constante diélectrique effectifs que nous allons maintenant définir.

Dans l'effet photoréfractif, un champ électrique appelé champ de charge d'espace est créé dans le cristal. Il agit sur l'ellipsoïde des indices par effet électro-optique et crée donc une variation d'indice. Cette variation d'indice dépend de la direction du champ et diffère pour l'indice ordinaire et l'indice extraordinaire. C'est pourquoi on définit un coefficient électro-optique effectif pour chaque polarisation propre, qui traduit l'effet du champ sur le cristal.

Cette variation de l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$[\Delta\eta]_{ij} = \left[\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right) \right]_{ij} = r_{ijk} n_k E_{\text{sc}} \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r}) \quad (2-7)$$

où r_{ijk} est le coefficient électro-optique à déformation nulle, $E = E_{sc} \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r})$ le champ de charge d'espace et n_k est la composante d'un vecteur unitaire parallèle à la direction du champ de charge d'espace. Nous définissons un repère lié aux axes cristallographiques et la configuration dans laquelle nous nous plaçons est déterminée par deux angles internes au cristal θ (défini précédemment) et β (qui est l'angle entre le vecteur réseau et l'axe \vec{c}) (Figure 2-2). Ainsi, le vecteur unitaire \vec{n} parallèle à la direction du champ de charge d'espace s'écrit :

$$\vec{n} = \begin{pmatrix} \sin\beta \\ 0 \\ \cos\beta \end{pmatrix} \quad (2-8)$$

Le coefficient électro-optique effectif est défini comme :

$$r^{eff} = \vec{d}_{pompe}^* \cdot [\Delta\eta] \cdot \vec{d}_{signal} \quad (2-9)$$

où \vec{d}_{pompe} et \vec{d}_{signal} sont des vecteurs propres définissant les polarisations respectives du faisceau pompe et du faisceau signal, qui sont des vecteurs unitaires parallèles au vecteur déplacement électrique.

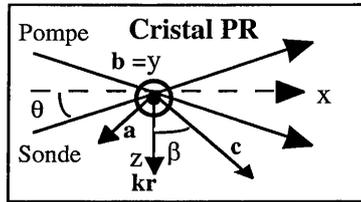


Figure 2-2 : Orientation des faisceaux incidents et de l'axe du cristal. L'axe c est dans le plan formé par les faisceaux incidents.

Les expressions analytiques de r^{eff} pour de la lumière polarisée soit ordinairement, soit extraordinairement sont respectivement :

$$r_0^{eff} = r_{13} \cos\beta \quad (2-10)$$

$$r_e^{eff} = \frac{1}{2} [r_{13}(\cos(2\theta) - \cos(2\beta)) + 4r_{42} \sin^2 \beta + r_{33}(\cos(2\theta) + \cos(2\beta))] \cos \beta \quad (2-11)$$

De la même façon, l'influence du champ électrique sur la permittivité diélectrique nous amène à définir une permittivité diélectrique effective :

$$\epsilon^{eff} = \bar{n}^t \cdot [\epsilon] \cdot \bar{n} = \epsilon_{ij} n_i n_j = \epsilon_{11} \sin^2 \beta + \epsilon_{33} \cos^2 \beta \quad (2-12)$$

II.2. Expériences classiques de caractérisation photoréfractive

Dans cette partie, nous allons présenter les expériences classiques qui sont utilisées pour caractériser les propriétés des cristaux photoréfractifs. Ces expériences seront illustrées par les mesures que nous avons réalisées sur un cristal de BCT. Ce cristal nous a été fourni par l'université d'Osnabrück par l'intermédiaire de la société F.E.E. GmbH. Il est dopé avec 100 ppm de rhodium insérés dans le bain de croissance et ses dimensions sont $a*b*c = 1,76 * 4,74 * 3,48$. Sa référence est B 69. Dans toutes les expériences présentées dans cette partie, nous utilisons un laser Nd-YAG doublé à 532 nm.

II.2.a. Dépendance du gain photoréfractif avec l'éclairement

Lorsqu'on réalise des mesures de couplage deux ondes pour déterminer les coefficients électro-optiques, il est nécessaire que le gain soit saturé en intensité.

La première expérience que nous avons réalisée consiste donc à mesurer la dépendance du gain photoréfractif avec la densité de puissance pour déterminer l'intensité de saturation. D'après les mesures reportées sur la figure 2-3, l'intensité de saturation I_{sat} (à $\Gamma/\Gamma_{\infty} = 0,5$) vaut 50 mW.cm⁻². Nous observons que le gain est constant dès que l'intensité incidente est supérieure à 500 mW.cm⁻² et nous choisissons donc une densité de puissance supérieure à cette valeur pour réaliser nos mesures, soit 1,2 W.cm⁻².

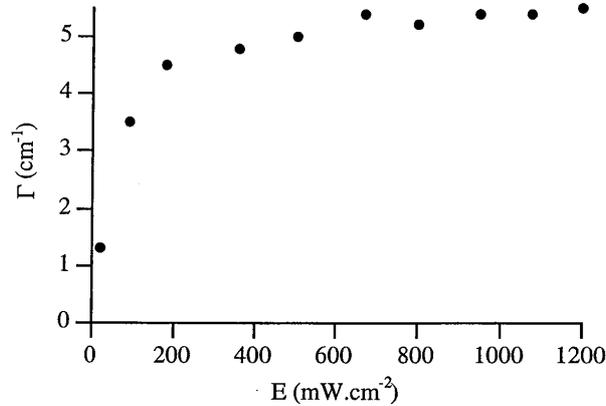


Figure 2-3 : Mesure de la variation du gain photoréfractif Γ en fonction de l'illumination pour un pas du réseau de $0,6 \mu\text{m}$ et un angle $\beta = 0$ en polarisation ordinaire.

II.2.b. Dépendance du gain photoréfractif avec le pas du réseau

Les mesures de la dépendance du gain avec le pas du réseau sont classiques pour déterminer les coefficients électro-optiques et la densité effective de pièges d'un cristal.

Cas où le vecteur réseau est parallèle à l'axe optique

Nous mesurons de façon classique la dépendance du gain photoréfractif avec le pas du réseau en faisant varier l'angle entre les deux faisceaux incidents. Les deux faisceaux ont des angles d'incidence symétriques par rapport à la normale à la face d'entrée, ce qui signifie que le vecteur réseau est parallèle à l'axe \vec{c} , ce qui revient à avoir $\beta = 0$.

Deux types de mesures sont réalisées. D'une part, en utilisant le montage de la figure 2-4.a, nous mesurons le gain en faisceaux copropageants avec un réseau fonctionnant en transmission. Dans cette configuration, pour $\beta = 0$, nous réalisons des mesures pour des valeurs faibles du vecteur réseau ($k_r^2 < k_0^2$). D'après les équations 2-3 et 2-4, nous sommes dans une situation où :

$$\Gamma \approx \frac{2\pi}{\lambda_0} n^3 \Gamma^{\text{eff}} \frac{k_B T}{e} k_r \quad (2-13)$$

La dépendance linéaire du gain avec le vecteur réseau nous permet de déterminer le coefficient électro-optique effectif mais ne nous donne pas une valeur précise pour le paramètre k_0^2 et donc

pour N_{eff} , qui correspond en fait à une déviation de la dépendance linéaire du gain avec le vecteur réseau pour des grandes valeurs de celui-ci.

Pour déterminer k_0^2 , nous réalisons une autre mesure dans la configuration présentée sur la figure 2-4.b, qui correspond à la situation contrepropageante. Nous gardons la même configuration où le vecteur réseau est parallèle à l'axe \vec{c} mais avec un angle θ de $\pi/2$. Dans cette configuration où le vecteur réseau est très grand ($k_r^2 > k_0^2$), le gain est dominé par le terme k_0^2 (Eq. 2-4).

Aucun point expérimental n'est donné entre 12 and 52 μm^{-1} parce que ces valeurs du vecteur réseau sont soit interdites par les lois de la réfraction (24-52 μm^{-1}) avec la coupe de cristal que nous utilisons (coupe à 0° , à savoir une coupe suivant les axes cristallographiques), soit elles correspondent à des angles très grands entre les faisceaux incidents, qui font que nous avons des difficultés pour assurer le recouvrement des faisceaux sur toute la longueur du cristal (12-24 μm^{-1}). Néanmoins, l'addition de mesures en géométrie copropageante ($k < 12\mu\text{m}^{-1}$) et contrepropageante ($k = 52\mu\text{m}^{-1}$) suffit pour déterminer précisément la densité effective de pièges [Delaye 97].

Nous réalisons ensuite simultanément un ajustement avec une fonction à deux paramètres sur les mesures copropageantes et contrepropageantes en utilisant une fonction du type

$$\Gamma = A r^{\text{eff}}(k_r) \frac{k_r}{1 + \frac{k_r^2}{k_0^2}} \quad (2-14)$$

où A est une constante connue qui vaut $\frac{2\pi}{\lambda_0} n^3 \frac{k_B T}{e}$. $r^{\text{eff}}(k_r)$ traduit une éventuelle dépendance de r^{eff} avec le demi-angle entre les faisceaux θ , réécrite ici en fonction de k_r , qui dépend lui-même de θ .

La configuration où le vecteur réseau est parallèle à l'axe \vec{c} donne l'expression la plus simple des coefficients électro-optiques. En effet, si $\beta = 0$, les coefficients électro-optiques effectifs s'écrivent, suivant la polarisation (2-10) et (2-11) :

$$r_0^{\text{eff}} = r_{13} \quad (2-15)$$

$$r_e^{\text{eff}} = \frac{1}{2} [r_{13}(\cos(2\theta) - 1) + r_{33}(\cos(2\theta) + 1)] \quad (2-16)$$

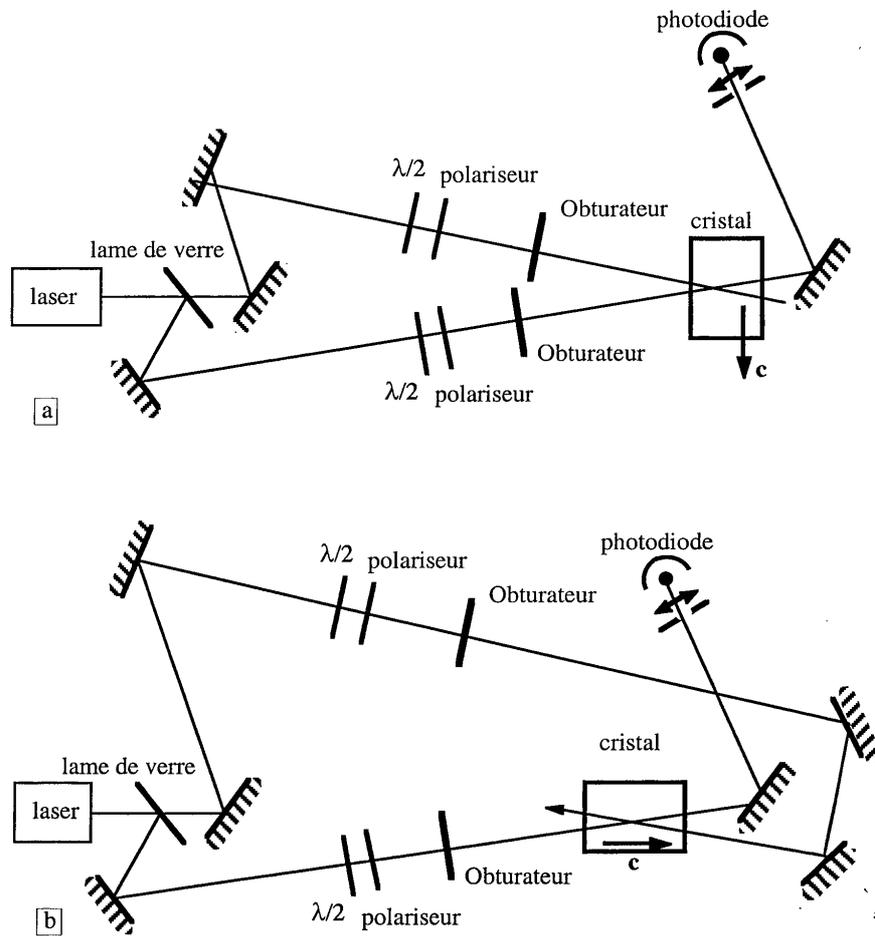


Figure 2-4 : Montage expérimental de couplage deux ondes : a. en géométrie copropageante. b. en géométrie contrepropageante.

Par conséquent, la dépendance du gain avec le pas du réseau en polarisation ordinaire nous permet d'obtenir par ajustement à deux paramètres avec la fonction (2-14) la valeur du coefficient électro-optique r_{13} (ainsi que celle du paramètre k_0^2). Un ajustement avec les mesures en polarisation extraordinaire nous permet d'obtenir la valeur de r_{33} en utilisant les valeurs précédemment déterminées en polarisation ordinaire pour k_0^2 et r_{13} .

Dans le cas du cristal B69, les données expérimentales (Figure 2-5) nous permettent de déduire les valeurs $r_{13} = (22 \pm 0,3) \text{ pm.V}^{-1}$ et $k_0 = 1,44 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ en polarisation ordinaire et $r_{33} = (55 \pm 0,6) \text{ pm.V}^{-1}$ en polarisation extraordinaire. Pour nous assurer de la compatibilité des mesures avec les deux polarisations, nous avons réalisé un ajustement de la courbe en extraordinaire en laissant les trois paramètres r_{13} , r_{33} et k_0^2 libres et nous avons trouvé des résultats quasiment identiques aux précédents.

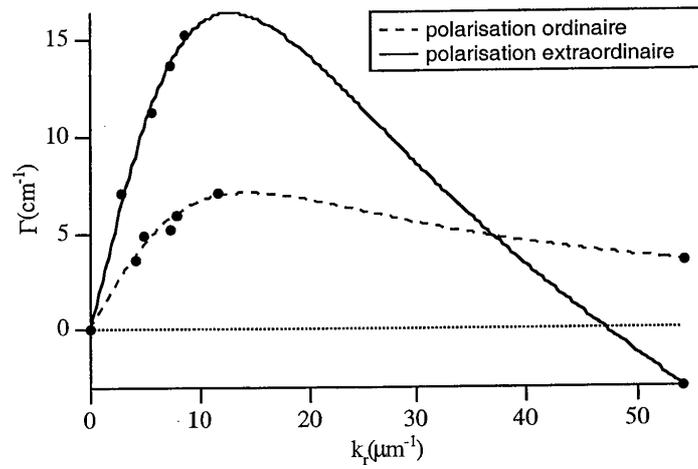


Figure 2-5 : Gain photoréfractif expérimental Γ en fonction du vecteur réseau en polarisation ordinaire et extraordinaire. Le changement de signe du point contrepropageant entre les deux polarisations provient du terme (\vec{e}_s, \vec{e}_p) intervenant dans l'expression du gain.

La détermination de la valeur de N_{eff} peut se faire à partir de k_0^2 d'après l'équation (2-6), sachant que la constante diélectrique qui intervient dans notre configuration est ϵ_{33} . En utilisant la valeur mesurée par Kuper [Kuper 97 (1)] et donnée au paragraphe I.2., on obtient $N_{\text{eff}} = 7,03 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$.

Détermination de r_{42}

D'après l'équation 2-11, nous voyons que le dernier coefficient électro-optique indéterminé à savoir $r_{131} = r_{51} = r_{42}$ contribue à l'expression du coefficient électro-optique effectif uniquement en polarisation extraordinaire et pour $\beta \neq 0$ et pour $\beta \neq \pi/2$. Afin de déterminer ce coefficient, nous devons réaliser des mesures de gain photoréfractif en polarisation extraordinaire et pour un angle β différent de 0, soit en configuration non symétrique. Lorsqu'on s'intéresse à la

dépendance du gain avec l'angle β (Eq. 2-11), on remarque que la pente à l'origine autour de $\beta=0$ est nulle alors que celle autour de $\beta = \pi/2$ est très importante et proportionnelle à $4r_{42}$.

Pour extraire la valeur du coefficient électro-optique de la mesure de la pente, nous devons tenir compte de la variation de la constante diélectrique effective qui passe de la valeur faible ϵ_{33} à la valeur élevée ϵ_{11} lorsque β passe de 0 à $\pi/2$ (Eq. 2-12), ce qui a pour effet de diminuer la valeur de k_0^2 . Nous utiliserons la valeur de ϵ_{11} mesurée par Kuper [Kuper 97] pour évaluer la nouvelle valeur de k_0^2 à partir de la valeur de N_{eff} déterminée précédemment. Pour que la valeur de ce paramètre ait peu d'influence sur le résultat, nous nous placerons dans une situation où $k_r^2 < k_0^2$.

Expérimentalement, nous avons réalisé des mesures du gain en fonction de β en polarisation extraordinaire aux alentours de $\pi/2$ en fixant le pas du réseau à $k_r = 4 \mu\text{m}^{-1}$. Nous sommes donc bien dans une situation où $k_r^2 < k_0^2$ et donc dans la zone de variation linéaire du gain en fonction du vecteur réseau. Une régression linéaire sur nos points expérimentaux (Figure 2-6) nous donne la pente qui vaut $-60,613 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{rad}^{-1}$, de laquelle on déduit $r_{42} = 250 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$.

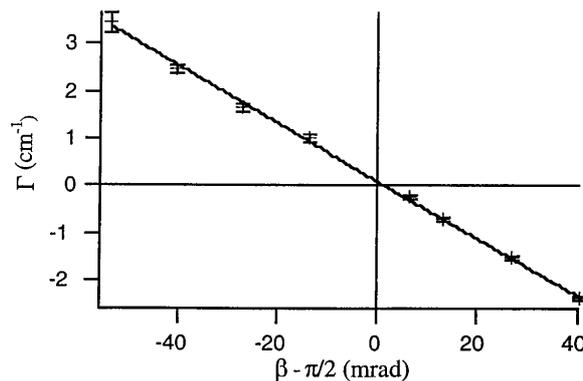


Figure 2-6 : Gain photoréfractif expérimental Γ en polarisation extraordinaire en fonction de l'angle β entre le vecteur réseau et l'axe \vec{c} autour de $(\beta = \pi/2)$.

II.3. Conclusion

Cette première étude rapide des coefficients électro-optiques nous a permis d'une part de démontrer que le cristal de BCT est photoréfractif et d'autre part que les valeurs de ses coefficients électro-optiques en font un cristal intéressant. En effet, nous constatons que les coefficients r_{13} et r_{33} sont du même ordre de grandeur dans BCT et BaTiO_3 . En ce qui concerne le coefficient électro-optique r_{42} dans BCT, il n'est pas nul contrairement à l'hypothèse de

Kuper et même s'il est de l'ordre de 5 fois plus petit que dans le titanate de baryum, sa valeur reste malgré tout du même ordre de grandeur que le coefficient le plus élevé des matériaux ferroélectriques les plus utilisés comme le niobate de potassium (KNbO_3) qui a un coefficient r_{42} de 360 pm.V^{-1} [Zgonik 93] ou le niobate de strontium et de baryum (SBN) dont le coefficient le plus élevé r_{33} vaut 235 pm.V^{-1} [Ducharme 87].

Les résultats ont été obtenus moyennant quelques approximations. D'une part, nous avons considéré un modèle simple de cristal sans compétition électron-trou où la conduction se fait avec un seul type de porteurs et donc dans lequel le champ de charge d'espace est maximum. D'autre part, nous avons fait dans cette partie l'hypothèse que le champ de charge d'espace agissait sur le matériau uniquement par l'effet électro-optique.

Aucune de ces approximations n'est vérifiable par les quelques mesures réalisées, compte tenu de l'état de connaissance limité que nous avons de BCT. Nous avons même de forts soupçons sur les limites de ces approximations. Ainsi, dans le cas de BaTiO_3 , il est connu que le champ de charge d'espace déforme le matériau, ce qui induit des contraintes internes qui induisent par effet élasto-optique un effet électro-optique indirect, apportant une correction à l'effet électro-optique direct considéré jusqu'à présent. En ce qui concerne BCT, aucune information n'existe à ce sujet dans la littérature et nous avons donc réalisé de nouvelles mesures pour tenter d'évaluer l'influence de ces effets électro-optiques indirects dans ce nouveau cristal. Ces mesures nous permettront d'accroître nos connaissances des propriétés photoréfractives de ce matériau.

III Étude plus approfondie des coefficients électro-optiques

III.1. Expériences en rotation

Les mesures classiques de couplage deux ondes présentées dans la partie précédente ne nous permettent pas d'évaluer l'importance des effets électro-optiques indirects.

C'est pourquoi nous avons entrepris une série de mesures du gain photoréfractif en fonction de l'angle entre le vecteur réseau et l'axe \bar{c} avec la même procédure expérimentale que Zgonik et al. [Zgonik 94]. Nous avons utilisé un laser argon à 514 nm dont l'intensité est suffisante pour saturer le gain. Deux faisceaux formant un angle de 2θ dans le matériau entrent symétriquement dans le cristal (Fig. 2-7). Celui-ci est alors tourné autour de la normale à sa face d'entrée (axe y). L'angle de rotation est appelé α . Les mesures sont effectuées en commençant par un angle α nul et ainsi l'axe \bar{c} est dans le plan (x,y) . β est défini comme l'angle entre l'axe \bar{c} et sa

projection sur le plan (z,x) . Les angles θ et β sont définis à l'intérieur du cristal. Nous mesurons alors le gain photoréfractif à partir de l'intensité du signal avec et sans faisceau pompe en fonction de l'angle de rotation α tous les 10° . Les mesures sont faites en polarisation ordinaire et extraordinaire, l'angle de polarisation suivant l'angle de rotation du cristal afin d'avoir toujours des polarisations propres.

Pour s'affranchir de la dépendance du champ de charge d'espace avec la constante diélectrique, nous nous sommes placés dans une configuration où le vecteur réseau est petit de telle sorte que l'on puisse faire l'approximation $k_r^2 < k_0^2$. Alors le gain est proportionnel au vecteur réseau et la dépendance du gain photoréfractif avec l'angle α traduit directement celle du coefficient électro-optique effectif.

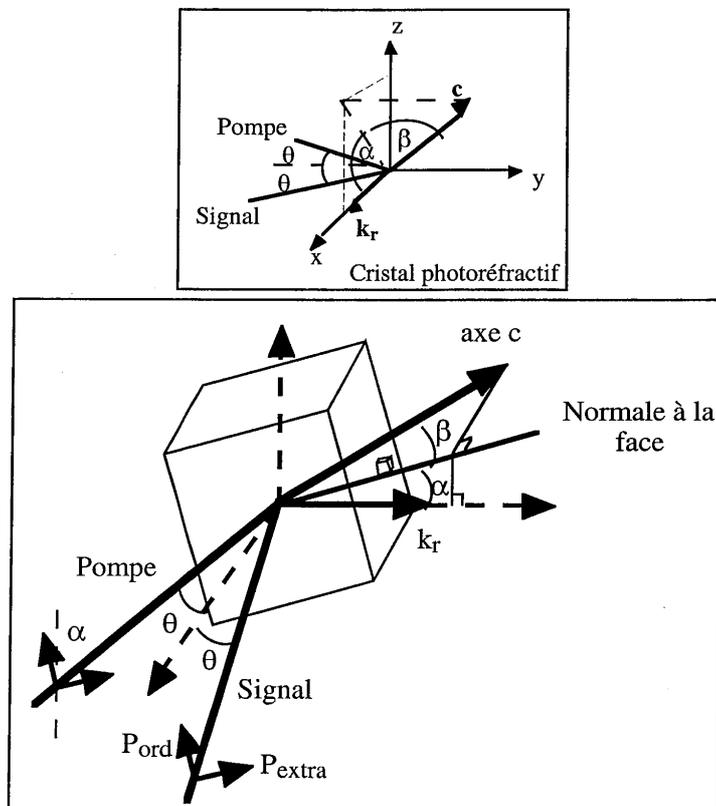


Figure 2-7 : Orientation des faisceaux incidents et des axes du cristal.

Les courbes obtenues devraient être parfaitement symétriques si nous ne mesurons que le gain photoréfractif. La légère dissymétrie observée expérimentalement est due à la présence de composantes d'absorption (réseaux d'absorption ou absorption induite) qui donnent un signal similaire au transfert d'énergie mais ne dépendant pas de α . Ces composantes sont faibles comparées au gain photoréfractif (< 15 %) (Figure 2-8). Elles ont été évaluées puis supprimées dans les courbes présentées par la suite qui ne concernent donc que le gain photoréfractif.

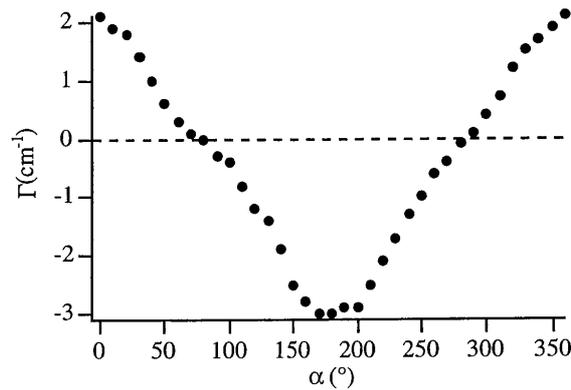


Figure 2-8 : Exemple de dissymétrie des courbes due à la présence d'une composante d'absorption. Cette courbe a été obtenue avec le cristal taillé à 45° en polarisation ordinaire.

III.1.a. Cristaux taillés à 0°

Le premier cristal étudié est celui de référence B 69 utilisé dans la première partie. Le vecteur réseau est fixé à $2,5 \mu\text{m}^{-1}$. Le cristal étant taillé à 0° , l'angle β est nul dans cette expérience puisque les faisceaux pénètrent le cristal de façon symétrique. Les courbes obtenues expérimentalement pour des polarisations ordinaire puis extraordinaire sont présentées sur les figures 2-9 et 2-10. La théorie prévoit des courbes sinusoïdales dans le cas où les effets électro-optiques indirects sont négligeables :

$$r^{\text{eff}}(\alpha) = r_{13} \cos \alpha \quad (2-17)$$

et

$$r^{\text{eff}}(\alpha) = \left(-r_{13} (\sin \theta)^2 + r_{33} (\cos \theta)^2 \right) \cos \alpha \quad (2-18)$$

en polarisation respectivement ordinaire et extraordinaire. Ceci n'est pas le cas des courbes des figures 2-9 et 2-10. L'allure de ces courbes confirme donc que les effets électro-optiques indirects doivent être pris en compte dans BCT.

Pour confirmer ce résultat, nous avons réalisé les mêmes mesures sur un second cristal de BCT dopé au rhodium à 1000 ppm et de référence B 76.10.1.2. Ses dimensions sont $a*b*c = 1,61 * 4 * 4,75 \text{ mm}^3$ et la longueur d'interaction dans les expériences de couplage deux ondes est de 1,61 mm. Les courbes obtenues pour ce cristal ont la même forme que celles obtenues pour le cristal précédent, avec une valeur du gain légèrement plus élevée (Figures 2-9 et 2-10).

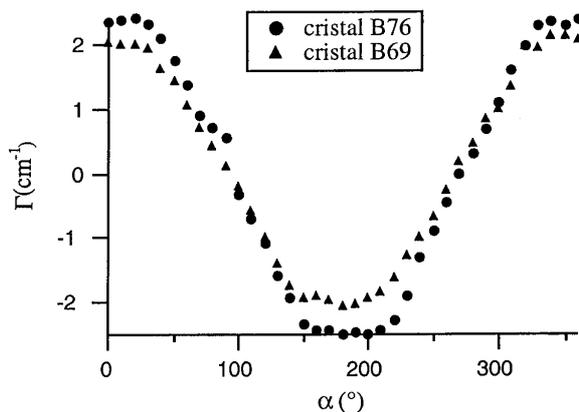


Figure 2-9 : Gain en fonction de l'angle de rotation α pour les cristaux B 69 et B 76 en polarisation ordinaire.

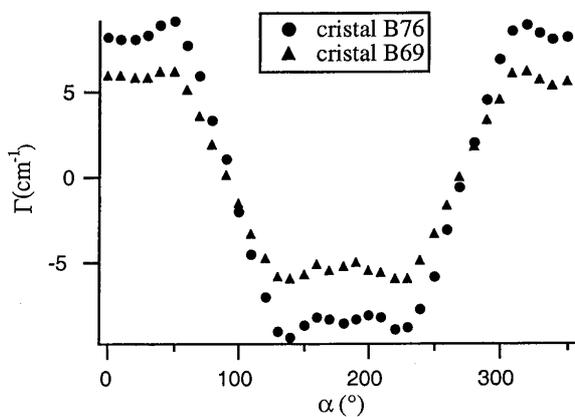


Figure 2-10 : Gain en fonction de l'angle de rotation α pour les cristaux B 69 et B 76 en polarisation extraordinaire.

III.1.b. Cristal taillé à 45°

La seconde expérience fut réalisée sur un cristal taillé à 45° (i.e. coupé suivant les faces (011) et $(01\bar{1})$) où, lorsque les deux faisceaux pompe et signal entrent dans le cristal de façon symétrique, nous sommes dans une configuration telle que $\beta = 45^\circ$. Cette coupe particulière est choisie pour permettre d'utiliser au mieux la valeur élevée du coefficient électro-optique r_{42} [Ford 89]. Le cristal étudié est dopé avec 2000 ppm de rhodium et 2000 ppm de sodium et sa référence est B 92. Son épaisseur est d'environ 4,1 mm. Le cristal est taillé en toit pour éviter les oscillations internes dues au gain élevé de cette configuration [Huot 97 (3)]. Malgré ces précautions, la présence de beam-fanning nous a empêché d'effectuer des mesures fiables en polarisation extraordinaire. En effet, nous observons une chute de l'amplification que nous avons attribuée à l'atténuation du faisceau pompe par le beam-fanning (Figure 2-11) [Huot 96]. Pour pouvoir effectuer ces mesures, il serait nécessaire d'utiliser un cristal plus mince. Nous avons donc limité nos mesures dans ce cristal à une mesure en polarisation ordinaire présentée sur la figure 2-12. Ici encore, l'écart à la sinusoïde est visible.

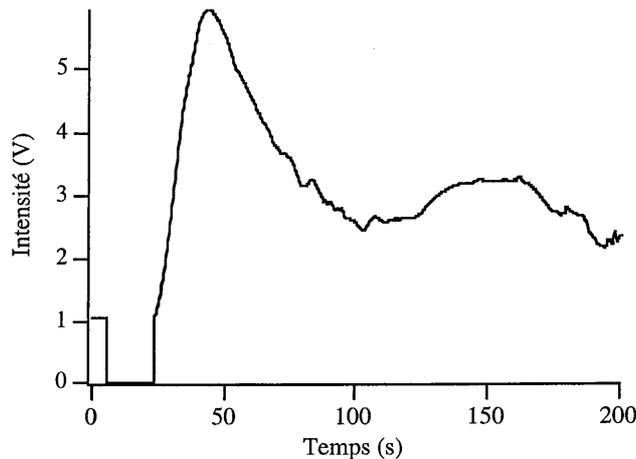


Figure 2-11 : Cinétique de transfert d'énergie observée en polarisation extraordinaire dans B 92.

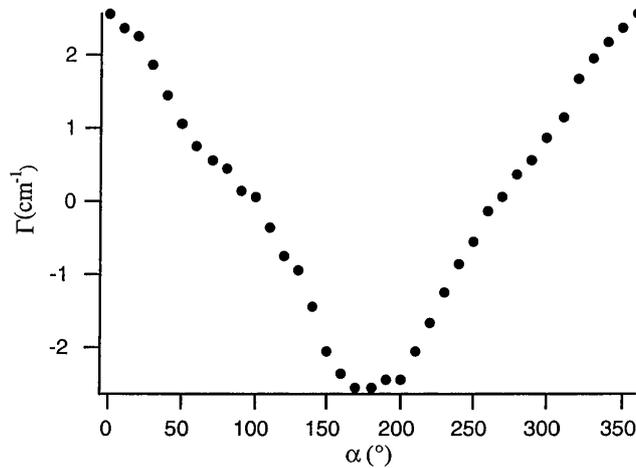


Figure 2-12 : Gain en fonction de α pour le cristal B 92 en polarisation ordinaire.

III.2. Les effets électro-optiques indirects

D'une manière générale, la valeur des coefficients électro-optiques et des constantes diélectriques dépend des conditions dans lesquelles ils sont mesurés et notamment de la fréquence du champ appliqué au cristal. Les coefficients dits "à contrainte nulle" correspondent à une zone de fréquence située sous les résonances piézo-mécaniques du matériau, ce qui a pour conséquence que le cristal est libre de se déformer de façon macroscopique, induisant ainsi un effet piézo-électrique qui vient s'ajouter à l'effet électro-optique. Les coefficients dits "à déformation nulle" correspondent à des gammes de fréquences du champ trop rapides pour lesquelles le cristal ne peut plus se déformer. Il subit alors des contraintes internes qui affectent l'effet électro-optique. Dans de nombreux articles, il a été question de savoir s'il faut utiliser les coefficients électro-optiques et les constantes diélectriques à contrainte nulle (indités T) ou à déformation nulle (indités S) pour modéliser l'effet photoréfractif [Günter 91]. Il est pertinent de se poser cette question puisque les valeurs de ces coefficients diffèrent de plus d'un facteur 2 dans le cas par exemple de BaTiO_3 [Zgonik 94].

Cependant, il a été montré dans le cas des réseaux photoréfractifs que le coefficient électro-optique approprié n'est ni le coefficient à déformation nulle, ni le coefficient à contrainte nulle mais un coefficient électro-optique dit "effectif" qui doit être calculé en fonction de la symétrie et de l'orientation du cristal [Günter 91, Pauliat 91]. En effet, contrairement aux mesures électro-optiques classiques où le champ appliqué est uniforme et où l'état du cristal se traduit par des

conditions aux limites définissant si le cristal est libre de se déformer ou contraint, dans les mesures photoréfractives, le champ est modulé spatialement et est alternativement positif ou négatif, ce qui peut induire des déformations opposées et donc impossibles. Les conditions aux limites sont ici définies à l'échelle du pas du réseau, supposé petit devant les dimensions du cristal, et deviennent une condition cyclique liée à la périodicité du champ. Ce type de comportement peut se rapprocher de celui observé sur des couches minces électro-optiques épitaxiées sur un substrat non électro-optique. Le cristal n'est donc ni contraint, ni tout-à-fait libre de se déformer, d'où la nécessité de définir un coefficient électro-optique effectif qui, dans le cas général, ne sera ni le coefficient à contrainte nulle, ni le coefficient à déformation nulle. Nous allons maintenant déterminer l'expression de ce coefficient électro-optique effectif dans le cas où les effets électro-optiques indirects sont pris en compte.

Le champ électrique agit sur l'indice de réfraction par effet électro-optique linéaire mais aussi par l'intermédiaire des contributions élasto-optiques. La variation induite par le champ électrique sur l'ellipsoïde des indices s'écrit comme la somme de ces deux contributions [Günter 91, Pauliat 91] :

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} = r_{ijk}^S E_k + p'_{ijkl} E_k \quad (2-19)$$

avec

$$p'_{ijkl} = p_{ijkl}^E + p_{ij(kl)}^E \quad (2-20)$$

où r_{ijk}^S est le coefficient électro-optique à déformation nulle, u_{kl} la matrice de déformation induite par l'effet piézo-électrique, p_{ijkl}^E les coefficients élasto-optiques à champ électrique constant et $p_{ij(kl)}^E$ les coefficients qui expriment l'effet rotooptique. Dans BaTiO_3 , l'effet rotooptique est très faible [Zgonik 95] car la biréfringence du cristal est faible et par conséquent, $[p'^E]$ peut être assimilé à $[p^E]$ dans ce cristal [Pauliat 00]. Nous faisons la même approximation pour le cristal de BCT, qui est proche du BaTiO_3 .

Après avoir calculé la déformation u_{kl} induite par le champ de charge d'espace $E = E_{sc} \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r})$, nous avons [Zgonik 94] :

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} = r_{ij}^{eff} E_{sc} \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r}) = (r_{ijk}^S n_k + p_{ijkl}^E n_l A_{km}^{-1} B_m) E_{sc} \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r}) \quad (2-21)$$

avec

$$A_{ik} = c_{ijkl}^E n_j n_l \text{ et } B_i = e_{kij} n_k n_j \quad (2-22)$$

où les coefficients c_{ijkl}^E représentent les constantes élastiques à champ constant et e_{ijk} le coefficient piézo-électrique de contrainte. \vec{n} est un vecteur unitaire parallèle à la direction du champ de charge d'espace (et donc de \vec{k}_r) qui s'écrit dans un repère lié aux axes cristallographiques (a,b,c) :

$$\vec{n} = \begin{pmatrix} n_1 \\ n_2 \\ n_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \alpha \sin \beta \\ \sin \alpha \\ \cos \alpha \cos \beta \end{pmatrix} \quad (2-23)$$

Ainsi, nous pouvons calculer les expressions analytiques de r^{eff} pour de la lumière polarisée soit ordinairement, soit extraordinairement, qui sont respectivement [Zgonik 95] :

$$r_0^{eff} = r_{22}^{eff}(\alpha, \beta) \quad (2-24)$$

$$r_e^{eff} = \frac{1}{2} [r_{11}^{eff}(\alpha, \beta)(\cos(2\theta) - \cos(2\beta)) + 2r_{13}^{eff}(\alpha, \beta)\sin(2\beta) + r_{33}^{eff}(\alpha, \beta)(\cos(2\theta) + \cos(2\beta))] \quad (2-25)$$

Ces expressions ressemblent à celles obtenues sans l'effet électro-optique indirect (Eq. 2-10 et 2-11) en remplaçant simplement $r_{13} \cos \beta$ par $r_{22}^{eff}(\alpha, \beta)$ dans r_0^{eff} et $r_{13} \cos \beta$ par $r_{11}^{eff}(\alpha, \beta)$, $r_{42} \sin \beta$ par $r_{13}^{eff}(\alpha, \beta)$ et $r_{33} \cos \beta$ par $r_{33}^{eff}(\alpha, \beta)$ dans r_e^{eff} . Les dépendances plus complexes avec les angles des paramètres r_{ij}^{eff} rendront compte des écarts à la sinusoïde observés expérimentalement. Les paramètres déterminés expérimentalement dans l'étude rapide (II.1.) restent valables, seule leur expression avec les paramètres du cristal variera. Au lieu de r_{13} , on aura déterminé $r_{22}^{eff}(0,0) = r_{11}^{eff}(0,0)$ ainsi que $r_{33}^{eff}(0,0)$ au lieu de r_{33} , tandis que $r_{13}^{eff}(0, \frac{\pi}{2})$ remplace r_{42} . Nous reviendrons plus loin sur ces expressions.

On définit aussi une constante diélectrique effective $\epsilon^{eff}(\alpha, \beta)$ qui peut être calculée à partir des constantes diélectriques à déformation nulle ϵ_{ij}^S en tenant compte des contributions élastiques et piézo-électriques comme pour r^{eff} , puisque l'effet piézo-électrique influence également la constante diélectrique [Zgonik 95]

$$\epsilon^{eff}(\alpha, \beta) = \epsilon_{ij}^S n_i n_j + \epsilon_0^{-1} e_{ijk} e_{mnl} n_i n_j n_m n_n A_{kl}^{-1} \quad (2-26)$$

Le deuxième terme traduit la déformation de la maille cristalline.

Comme le montrent ces équations, le calcul de ces effets électro-optiques indirects fait intervenir un grand nombre de paramètres qui sont tous inconnus dans BCT. Afin de réduire le nombre de

paramètres inconnus, nous avons développé un modèle qui permet de calculer, à partir des coefficients de la phase cubique, les effets électro-optiques indirects.

III.3. Détermination théorique des contributions électro-optiques indirectes

BCT et BaTiO_3 sont des cristaux ferroélectriques de la famille des perovskites à octaèdres d'oxygène. Au dessus de 100°C , ils sont en phase cubique (symétrie $m\bar{3}m$) et lorsque la température décroît, ils passent en phase quadratique ($4mm$) (jusqu'à 10° pour BaTiO_3 et au moins -120° pour BCT). Sur la figure 2-13, la maille cristalline de BaTiO_3 est représentée en phase cubique et quadratique. La structure de BCT diffère uniquement du fait que certains des atomes de baryum ont été remplacés par des atomes de calcium. Comme le montre la figure 2-13, lors du changement de phase, une polarisation spontanée P_s apparaît dans ces cristaux du fait du déplacement des atomes de titane vers l'une des faces du cube et cette nature polaire est à l'origine de nombre de propriétés comme l'effet piézo-électrique ou l'effet électro-optique. En effet, l'apparition de cette polarisation spontanée transforme les effets du troisième ordre (comme l'effet Kerr et l'électrostriction) en effets du second ordre (comme l'effet Pockels et l'effet piézo-électrique, respectivement) [Devonshire 51].

Le passage des effets du troisième ordre à ceux du second ordre fait intervenir les constantes diélectriques. Or, elles sont très différentes dans BCT et BaTiO_3 [Kuper 97, Zgonik 94]. Il est donc probable que les effets du second ordre soient également différents dans ces deux cristaux. Par contre, à haute température en phase cubique, les deux cristaux sont probablement plus proches. En effet, il a été montré que les coefficients Kerr de la phase cubique sont les mêmes dans tous les cristaux du type ferroélectrique à octaèdre d'oxygène. On peut donc imaginer que les autres paramètres de la phase cubique seront proches dans BCT et BaTiO_3 . C'est pourquoi nous avons développé un modèle qui nous permet de calculer les effets du second ordre à partir de ceux de l'ordre supérieur.

Dans cette partie, nous allons d'abord présenter les bases théoriques du modèle. Ensuite, nous l'appliquerons au titanate de baryum, pour lequel les paramètres des phases cubique et quadratique sont connus, afin de le valider et enfin nous l'appliquerons à BCT.

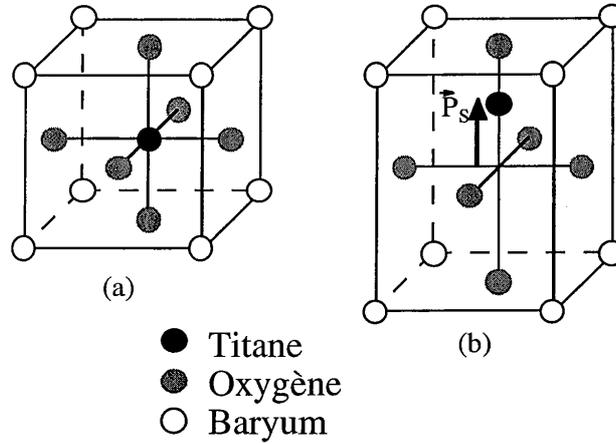


Figure 2-13 : Maille cristalline de BaTiO_3 en phase cubique (a) et en phase quadratique (b).

III.3.a. Détermination des paramètres de la phase quadratique à partir de ceux de la phase cubique

Effet électro-optique

L'effet électro-optique provient de la dépendance de la constante diélectrique avec le champ électrique. Les coefficients électro-optiques linéaires existant en phase quadratique sont reliés aux coefficients Kerr de la phase cubique par la susceptibilité linéaire et par la polarisation spontanée. Or il a été montré que dans les ferroélectriques à octaèdre d'oxygène, cet effet Kerr est une propriété intrinsèque liée à la nature de l'octaèdre d'oxygène. On peut donc calculer dans tous ces composés les coefficients Pockels à partir des coefficients Kerr dans la phase cubique, connaissant la polarisation spontanée et les constantes diélectriques [DiDomenico 69]. Dans toute cette partie, on utilisera les notations contractées [Nye 57], sauf quand il sera précisé que la notation tensorielle sera utilisée.

Si on considère les changements induits par une force électrique et mécanique sur le tenseur de permittivité, on obtient les équations suivantes entre les coefficients électro-optiques à déformation nulle r_{ij}^s et les coefficients Kerr à déformation nulle g_{ij}^s [DiDomenico 69, Bernasconi 95] pour une polarisation spontanée parallèle à l'axe \bar{c} du cristal :

$$\begin{cases} r_{13}^s = r_{23}^s = 2g_{12}^s \epsilon_0 (\epsilon_{33}^s - 1) P_s \\ r_{33}^s = 2g_{11}^s \epsilon_0 (\epsilon_{33}^s - 1) P_s \\ r_{42}^s = r_{51}^s = g_{44}^s \epsilon_0 (\epsilon_{11}^s - 1) P_s \end{cases} \quad (2-27)$$

Sachant que la biréfringence totale Δn_t est en fait la somme d'une biréfringence induite par la polarisation et d'un terme dépendant de la phase à haute température Δn_0 [DiDomenico 69], nous pouvons en déduire la valeur de la polarisation spontanée :

$$\Delta n_t = -\frac{1}{2} n^3 (g_{11}^s - g_{12}^s) P_s^2 + \Delta n_0(T) \quad (2-28)$$

Le terme $\Delta n_0(T)$ est négligeable pour BaTiO_3 [DiDomenico 69] et nous considérerons donc qu'il l'est aussi pour BCT.

Coefficients piézo-électriques et constantes élastiques

L'effet piézo-électrique direct se traduit par un moment électrique qui apparaît lorsque le cristal est sous contrainte. De la même façon, un effet piézo-électrique inverse apparaît dans un cristal soumis à un champ électrique sous la forme d'une déformation de ce cristal. Ainsi, l'effet piézo-électrique inverse correspond à la dépendance linéaire de la déformation avec le champ et il peut donc se calculer à partir des coefficients d'électrostriction qui traduisent la dépendance quadratique de la déformation avec le champ. Par un raisonnement identique à celui utilisé par DiDomenico et al. [DiDomenico 69], on peut donc déduire les coefficients piézo-électriques du tenseur d'électrostriction [Devonshire 51].

Pour ce raisonnement, on ne tient pas compte des effets thermo-élastiques ou électro-thermiques dans le cristal. Les seules forces appliquées au cristal sont donc la contrainte σ et le champ électrique \vec{E} .

Les résultantes directes de ces forces sont la polarisation P et la déformation τ . Nous considérons les 9 composantes σ_{ij} et la polarisation P_i comme des variables indépendantes. Ainsi, on peut écrire, en notation tensorielle pour BaTiO_3 (ou BCT) en phase cubique :

$$\tau_{ij} = s_{ijkl}^P \sigma_{kl} + Q_{ijkl}^\sigma P_k P_l \quad (2-29)$$

avec (s_{ijkl}^P) le tenseur d'élasticité à polarisation nulle et (Q_{ijkl}^σ) le tenseur des coefficients d'électrostriction à contrainte nulle.

Une polarisation spontanée apparaît dans la phase quadratique et introduit un effet piézo-électrique du premier ordre. Si on considère que la polarisation spontanée est suivant l'axe z , on

doit alors remplacer P_3 par $(P_3 + P_s)$ et négliger tous les termes en P_1^2 , P_2^2 , P_3^2 et P_s^2 dans le développement. On obtient ainsi en notation tensorielle :

$$\tau_{ij} = s_{ijkl}^p \sigma_{kl} + b_{kij} P_k \quad (2-30)$$

Par comparaison des équations 2-29 et 2-30, on trouve les expressions des coefficients piézo-électriques b_{ij} en phase quadratique :

$$\begin{cases} b_{31} = b_{32} = 2Q_{12}P_s \\ b_{33} = 2Q_{11}P_s \\ b_{24} = b_{15} = Q_{44}P_s \end{cases} \quad (2-31)$$

On en déduit les coefficients piézo-électriques directs d_{ij} , sachant que $d_{ij} = \epsilon_0(\epsilon_i^T - 1)b_{kj}$:

$$\begin{cases} d_{31} = d_{32} = 2\epsilon_0(\epsilon_{33}^T - 1)Q_{12}P_s \\ d_{33} = 2\epsilon_0(\epsilon_{33}^T - 1)Q_{11}P_s \\ d_{15} = d_{24} = \epsilon_0(\epsilon_{11}^T - 1)Q_{44}P_s \end{cases} \quad (2-32)$$

A partir des coefficients piézo-électriques b_{ij} et d_{ij} et du tenseur d'élasticité à polarisation nulle (s_{ij}^p) (qui sont des paramètres de la phase cubique) et de celui à champ nul (s_{ij}^E), on calcule les constantes élastiques à champ constant c_{ij}^E en utilisant les relations suivantes [Nye 57, Zgonik 94] :

$$s_{ij}^E = s_{ij}^p + b_{ki} d_{kj} \quad (2-33)$$

$$\tau_i = c_{ij}^E \sigma_j \quad \text{et} \quad \sigma_i = s_{ij}^E \tau_j \quad (2-34)$$

On peut enfin déterminer le tenseur piézo-électrique de contrainte (e_{ij}) :

$$e_{ij} = d_{ik} c_{kj}^E \quad (2-35)$$

Nous sommes donc en mesure de calculer tous les paramètres intervenant dans l'évaluation des coefficients électro-optiques effectifs.

Au passage, on obtient la relation entre les constantes diélectriques à déformation nulle ϵ_{ii}^S et à contrainte nulle ϵ_{ii}^T [Zgonik 94], en notation tensorielle :

$$\epsilon_0 \epsilon_{ii}^S = \epsilon_0 \epsilon_{ii}^T - e_{ilm} d_{ilm} \quad (2-36)$$

Les coefficients électro-optiques à déformation nulle sont quant à eux reliés aux coefficients à contrainte nulle par la relation suivante [Zgonik 94] (en notation tensorielle) en utilisant le coefficient élasto-optique à champ nul p_{ijlm}^E :

$$r_{ijk}^T = r_{ijk}^S + p_{ijlm}^E d_{klm} \quad (2-37)$$

Effet élasto-optique

Le changement de l'indice de réfraction dû aux contraintes dans le cristal est appelé l'effet photo-élastique. Celui-ci se caractérise notamment par les coefficients élasto-optiques. Par un raisonnement analogue à celui effectué pour les coefficients électro-optiques, on trouve que les coefficients élasto-optiques à champ nul dépendent des coefficients électro-optiques quadratiques g_{ij}^S , piézo-électrique e_{ij} et des coefficients élasto-optiques à polarisation nulle p_{ijmn}^P (définis dans la phase cubique), ainsi que de la polarisation spontanée P_s toujours orientée suivant l'axe \bar{c} d'après l'équation suivante [Bernasconi 95], en notation tensorielle :

$$p_{ijmn}^E = p_{ijmn}^P + 2(g_{ij3k}^S P_s) \cdot e_{kmn} \quad (2-38)$$

Toutes ces équations vont nous permettre de calculer les paramètres du matériau en phase quadratique à partir de ceux en phase cubique.

III.3.b. Valeurs théoriques de ces paramètres

Les paramètres de la phase cubique nécessaires pour calculer les paramètres en phase quadratique sont présentés dans le tableau 2-2.

Validation du modèle : cas de BaTiO₃

Pour valider le modèle présenté ci-dessus, nous commençons par calculer les paramètres de la phase quadratique du titanate de baryum et nous les comparerons avec ceux de la littérature. Pour BaTiO₃, nous avons établi la liste des paramètres de la phase cubique nécessaires au calcul

dans la première colonne du tableau 2-2, ainsi que les références dans lesquelles nous avons trouvé ces valeurs.

Tableau 2-2 : Paramètres de la phase cubique pour $BaTiO_3$ et valeurs choisies pour BCT.

Paramètres	Valeurs $BaTiO_3$	Références	Valeurs BCT	Remarques
g_{11}^S ($10^{-2}m^4.C^{-2}$)	15 ± 3	[Bernasconi 95]	15 ± 3	Identiques pour toutes les perovskites
g_{12}^S ($10^{-2}m^4.C^{-2}$)	$3,8 \pm 0,6$	[Bernasconi 95]	$3,8 \pm 0,6$	
g_{44}^S ($10^{-2}m^4.C^{-2}$)	$7 \pm 1,5$	[Bernasconi 95]	$7 \pm 1,5$	
p_{11}^P	$0,37 \pm 0,03$	[Bernasconi 95]	$0,37 \pm 0,03$	valeurs de $BaTiO_3$
p_{12}^P	$0,11 \pm 0,01$	[Bernasconi 95]	$0,11 \pm 0,01$	
p_{66}^P	$-0,30 \pm 0,15$	[Bernasconi 95]	$-0,30 \pm 0,15$	
s_{11}^P ($10^{-12}m^2.N^{-1}$)	8,7	[Huibregtse 59]	8,7	
s_{12}^P ($10^{-12}m^2.N^{-1}$)	-3,35	[Huibregtse 59]	-3,35	
s_{66}^P ($10^{-12}m^2.N^{-1}$)	8,9	[Huibregtse 59]	8,9	
Q_{11} ($m^4.C^{-2}$)	0,09	[Didomenico 69, Jona 62]	0,09	
Q_{12} ($m^4.C^{-2}$)	-0,04	[Didomenico 69, Jona 62]	-0,04	
Q_{44} ($m^4.C^{-2}$)	0,06	[Didomenico 69, Jona 62]	0,06	
Δn	0,07	[Buse 93]	0,05	
n	2,49	[Buse 93]	2,46	[Simon 97]
ϵ_{11}^T	4450 ± 400	[Zgonik 94]	1120 ± 30	[Kuper 97]
ϵ_{33}^T	129 ± 5	[Zgonik 94]	240 ± 10	[Kuper 97]

Le tableau 2-3 présente les valeurs théoriques trouvées en appliquant notre modèle ainsi que les valeurs expérimentales données par Zgonik et al. [Zgonik 94]. On remarque que les valeurs calculées sont pour la plupart en accord avec celles qui ont été publiées pour $BaTiO_3$.

Le principal écart se situe au niveau de la valeur de la constante diélectrique à déformation nulle ϵ_{33}^S pour laquelle la valeur théorique est deux fois plus grande (ce qui est certainement dû au fait que la valeur de d_{33} calculée est plus faible que celle mesurée par Zgonik et al.). Cet écart se répercute sur les coefficients électro-optiques r_{13}^S et r_{33}^S qui sont directement proportionnels à ϵ_{33}^S . Si on augmentait la valeur de Q_{11} (qui gouverne d_{33} (Eq. 2-32)) à $0,16 m^4.C^{-2}$, on obtiendrait une meilleure adéquation entre les valeurs calculées et les valeurs expérimentales.

Notre modèle étant donc validé par cet exemple du titanate de baryum, nous allons maintenant l'appliquer à BCT.

Tableau 2-3 : Paramètres de la phase quadratique mesurés et calculés pour BaTiO₃ et BCT. Les valeurs expérimentales sur le BaTiO₃ sont tirées de la référence [Zgonik 94] tandis que celles sur le BCT sont issues de la référence [Kuper 98].

	Mesure BaTiO ₃	Calcul BaTiO ₃	Mesure BCT	Calcul BCT
Polarisation spontanée (C.m ⁻²) P _s	0,28	0,28		0,26
Coefficients élastiques à champ constant (10 ¹⁰ N.m ⁻²)				
C ₁₁ ^E	22,3 ± 1	22,1		22,1
C ₃₃ ^E	15,1 ± 0,7	20,1		19,4
C ₁₂ ^E	10,9 ± 1,8	13,8		13,8
C ₁₃ ^E	11,1 ± 0,8	14,3		14,5
C ₄₄ ^E	5,9 ± 0,3	5,0		8,9
C ₆₆ ^E	13,2 ± 1,1	11,2		11,2
Coefficients piézo-électriques directs (pm.V ⁻¹)				
d ₃₁	-33,4 ± 2	-25,2		-43
d ₃₃	90 ± 4	57		97
d ₁₅	580 ± 20	658		151
Coefficients piézo-électriques de contrainte (C.m ⁻²)				
e ₃₁	-0,70 ± 0,6	-0,90		-1,36
e ₃₃	6,60 ± 0,3	4,20		6,25
e ₁₅	34,6 ± 1,5	33		13,5
Coefficients élasto-optiques à champ constant				
P ₁₁ ^E	0,50 ± 0,04	0,35		0,34
P ₁₂ ^E	0,106 ± 0,01	0,09		0,08
P ₁₃ ^E	0,20 ± 0,01	0,20		0,23
P ₃₁ ^E	0,07 ± 0,006	0,03		0,01
P ₃₃ ^E	0,77 ± 0,04	0,72		0,85
P ₄₄ ^E	0,98 ± 0,16	0,99		0,18
P ₆₆ ^E	-	-0,30		-0,30
Constantes diélectriques à déformation nulle				
ε ₁₁ ^S	2174 ± 100	1986		888
ε ₃₃ ^S	56,4 ± 3	97		158

Coefficients électro-optiques à contrainte nulle (pm.V ⁻¹)				
r_{13}^T	8 ± 2	18,5	36 ± 3	30
r_{33}^T	105 ± 10	112,5	140 ± 5	181
r_{42}^T	1300 ± 100	1025		159
Coefficients électro-optiques à déformation nulle (pm.V ⁻¹)				
r_{13}^S	10,2 ± 0,6	18		27
r_{33}^S	40,4 ± 2	70,8		106
r_{42}^S	730 ± 100	342,3		140

Application du modèle : cas de BCT

Parmi tous les paramètres dont nous avons besoin pour déterminer le jeu complet, certains sont connus pour le BCT comme l'indice de réfraction n et la biréfringence totale Δn_T [Simon 97] ou les constantes diélectriques à contrainte nulle ϵ_{ij}^T [Kuper 97]. En effet, même si la référence [Kuper 97] ne précise pas lesquelles des constantes diélectriques (S ou T) sont mesurées, les conditions expérimentales indiquent que ce sont les constantes diélectriques à contrainte nulle. Mais les autres paramètres n'ont pas été mesurés pour le cristal de BCT. Nous nous inspirons donc des résultats publiés sur les matériaux de la même famille. Tout d'abord, les coefficients Kerr g_{ij}^S sont connus pour être les mêmes dans tous les matériaux du type ferroélectrique à octaèdre d'oxygène, comme nous l'avons déjà souligné [Didomenico 69, Bernasconi 95]. Ensuite, pour les autres paramètres, nous supposons que BaTiO₃ et BCT sont proches en phase cubique et nous utilisons les paramètres du BaTiO₃. Le tableau 2-2, colonne 3, résume les valeurs que nous avons utilisées pour nos calculs. Le jeu complet de paramètres calculés pour BCT est présenté dans le tableau 2-3, colonne 4.

En comparant les paramètres calculés du titanate de baryum et ceux de BCT, il apparaît des différences, notamment au niveau du coefficient piézo-électrique e_{24} qui intervient dans les relations entre coefficients à déformation et à contrainte nulle (Eq. 2-36 et 2-37). Ces différences trouvent leur origine dans l'écart entre les constantes diélectriques des deux cristaux. Ainsi r_{42} est plus faible dans BCT que dans BaTiO₃ car la constante diélectrique ϵ_{11} est plus faible et les coefficients r_{13} et r_{33} sont plus élevés du fait que la constante diélectrique ϵ_{33} est plus élevée.

Bien que le modèle présenté comporte de nombreuses approximations (de nombreux paramètres ont été choisis de façon empirique), il nous permet d'avoir une première évaluation des effets électro-optiques indirects dans le BCT. Nous allons l'utiliser maintenant pour simuler la

dépendance du gain avec l'angle de rotation α dans les différentes configurations étudiées expérimentalement dans la partie III.1.

III.4. Confrontation du modèle avec les résultats expérimentaux

Afin de tester la validité de notre modèle, nous calculons la forme des courbes théoriques correspondant aux expériences de la partie III.1.

III.4.a. Premiers ajustements : présence d'un facteur de réduction

Pour calculer la dépendance du gain avec α , nous avons, en théorie, besoin de connaître la densité effective de pièges des cristaux étudiés. En fait, cette densité effective de pièges a peu d'influence sur les courbes simulées car nous avons réalisé nos mesures de couplage deux ondes avec une faible valeur du vecteur réseau et donc nous sommes dans une situation où la valeur de k_0^2 et donc de N_{eff} a peu d'influence sur le gain photoréfractif (II.2.b). C'est pourquoi, en utilisant les valeurs du tableau 2-3, nous avons recalculé l'expression de la constante diélectrique effective qui intervient dans le calcul de N_{eff} (Eq. 2-6) à partir de la valeur de k_0^2 déterminée dans la première étude rapide (II.1). Nous obtenons $N_{\text{eff}} = 5,3 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ et nous utilisons cette valeur pour les 3 cristaux étudiés dans cette partie.

Un premier calcul montre que les courbes théoriques obtenues ont une forme qui correspond à celle des courbes expérimentales mais avec une amplitude plus élevée (Figure 2-14 et 15). Cela indique que le jeu de paramètres proposés précédemment (tableau 2-3, colonne 4) s'approche du jeu de paramètres réels. De plus, on remarque que la différence d'amplitude est la même pour les deux polarisations de chaque cristal. Par contre, la différence d'amplitude diffère d'un cristal à l'autre (Figures 2-9 et 10). Ainsi, pour ajuster les courbes simulées aux points expérimentaux, il faut commencer par ajouter un facteur de réduction, le même sur chaque polarisation. Ils valent respectivement 0,7 et 0,5 pour les cristaux B 76 et B 69.

Ce facteur de réduction n'est pas surprenant même si son origine exacte n'est pas encore déterminée. En effet, il pourrait s'agir de l'interférence d'une conduction due aux électrons dans la bande de conduction appelée compétition électron-trou, qui provoquerait une diminution du gain et qui se traduirait au niveau des équations par la multiplication par un coefficient ξ_0 [Strohkendl 86] dans l'expression du champ de charge d'espace (Eq. 2-4). Il pourrait aussi s'agir d'un facteur de réduction $\eta(I)$ dû à une dépendance en intensité rendue complexe par la présence de défauts secondaires [Tayebati 91]. Cette hypothèse est peu probable puisque, dans nos conditions expérimentales, le gain est saturé en intensité (à moins de considérer que nous avons seulement atteint un plateau secondaire). Enfin, cette réduction peut être causée par la

présence de domaines ferroélectriques tournés à 180° dus à une polarisation imparfaite du cristal [Zgonik 95]. Cette réduction du gain peut aussi résulter de ces différents effets combinés. En conclusion, des mesures complémentaires (comme par exemple d'effectuer des mesures à une longueur d'onde différente) sont nécessaires pour déterminer l'origine de cette réduction.

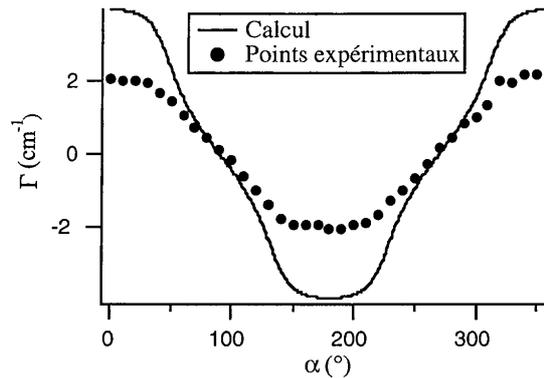


Figure 2-14 : Comparaison entre les simulations (courbes) et les résultats expérimentaux (points) pour le cristal B 69 en polarisation ordinaire.

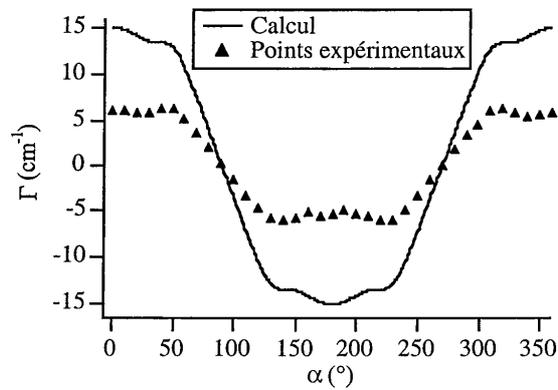


Figure 2-15 : Comparaison entre les simulations (courbes) et les résultats expérimentaux (points) pour le cristal B 69 en polarisation extraordinaire.

III.4.b. Ajustement des courbes : réévaluation des coefficients Kerr

Dans la suite, nous tenons compte de cette réduction dans nos calculs en introduisant un facteur de réduction sur le champ de charge d'espace. Ainsi, nous réalisons un premier ajustement des courbes théoriques et expérimentales. Par la suite, nous avons changé les paramètres du matériau utilisés dans les simulations afin d'améliorer le concordance avec les points expérimentaux. Compte tenu du nombre important de paramètres libres, l'ajustement fut réalisé de façon manuelle et qualitative en veillant d'une part, à ne changer que légèrement la valeur des différents coefficients et d'autre part, à en changer le moins possible. Nous avons obtenu la meilleure adéquation entre expériences et simulations en changeant seulement légèrement les deux paramètres initiaux g_{11}^s et g_{12}^s .

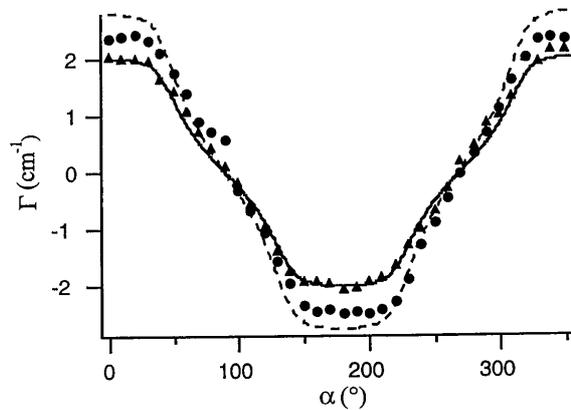


Figure 2-16 : Comparaison entre les points expérimentaux et les courbes calculées avec le jeu de paramètres optimisé en polarisation ordinaire.

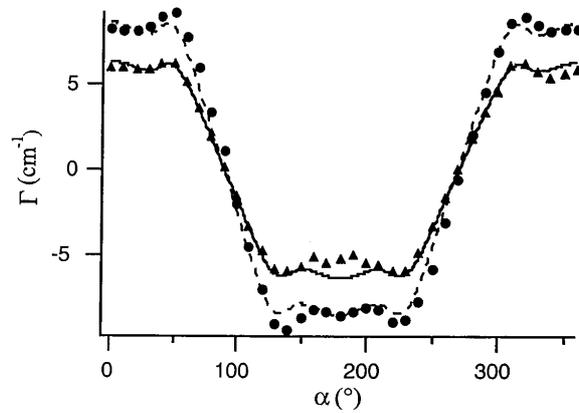


Figure 2-17 : Comparaison entre les points expérimentaux et les courbes calculées avec le jeu de paramètres optimisé en polarisation extraordinaire.

Les valeurs finales retenues sont $g_{11}^s = 0,11 \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$ (au lieu de $0,15 \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$) et $g_{12}^s = 0,035 \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$ (au lieu de $0,38 \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$) (Figures 2-16 et 2-17). Ces nouvelles valeurs entrent quasiment dans les barres d'incertitudes données par Bernasconi et al. [Bernasconi 95]. Par ailleurs, il faut noter que, mis à part ces deux paramètres, seuls p_{11}^p , s_{11}^p et Q_{12} ont une influence notable sur la forme des courbes (Figure 2-18). Nous ne les avons pas changés dans notre jeu de paramètres final car les modifications qu'ils induisent éloignent les courbes théoriques des courbes expérimentales. Mais il faut souligner qu'en raison du grand nombre de paramètres, la variation de l'un d'eux peut être compensée par la variation d'un autre. C'est pourquoi nous réalisons nos ajustements en changeant un minimum de paramètres (le jeu de paramètres que nous trouvons n'est certainement pas unique et d'autres données seront donc nécessaires pour le confirmer ou le préciser).

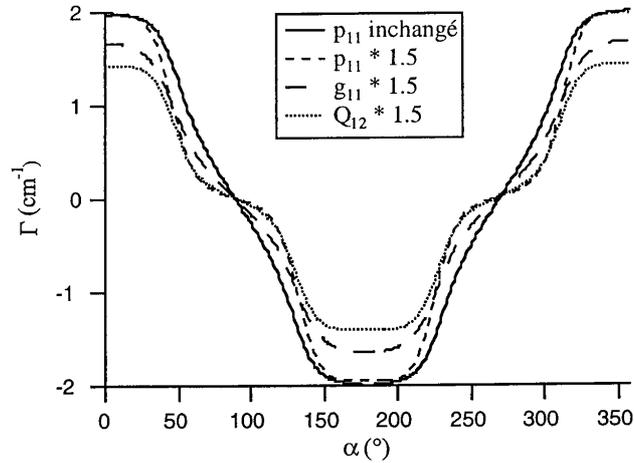


Figure 2-18 : Influence des paramètres les plus significatifs sur la forme de la courbe (calcul).

III.4.c. Validation des paramètres : cristal à 45°

Les paramètres ainsi déterminés sont utilisés pour calculer le gain photoréfractif dans le cristal taillé à 45° . Sans changer aucun paramètre, on obtient un bon accord entre calcul et expériences avec un facteur de réduction du champ de charge d'espace de 52 % (Figure 2-19).

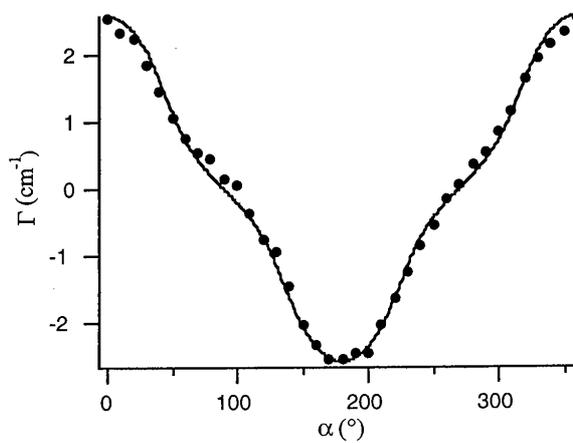


Figure 2-19 : Comparaison entre expériences et simulations pour le cristal B 92 taillé à 45° .

III.4.d. Évaluation de r_{42}^T

Nous n'avons aucune information sur la valeur du paramètre g_{44}^S qui gouverne la valeur du coefficient électro-optique r_{42} en raison de l'impossibilité de réaliser une mesure en polarisation extraordinaire dans le cristal coupé à 45° .

Cependant, nous pouvons malgré tout tirer des informations des mesures effectuées dans le cristal B 69 à 532 nm autour de $\beta = \pi/2$ et présentées dans la partie précédente. En effet, nous avons dû faire une approximation pour extraire la valeur de r_{42} de ces mesures puisque nous ne connaissions pas les valeurs des paramètres élasto-optiques, piézo-électriques et élastiques qui intervenaient dans le calcul de la pente. C'est pourquoi, nous avons fait l'approximation que la pente était proportionnelle à $4 \times r_{42}^T$ (sans différencier à ce stade entre les coefficients électro-optiques à déformation nulle et à contrainte nulle).

En utilisant les paramètres déterminés précédemment, nous pouvons maintenant ajuster la courbe du gain en fonction de β (Figure 2-6) avec les paramètres de la phase cubique, de la même façon que pour les courbes de variation avec α .

Pour réaliser ce calcul, nous avons tenu compte du coefficient de réduction de 50 % du champ de charge d'espace qui existe dans ce cristal (B 69) et qui a été mis en évidence grâce aux mesures en fonction de l'angle α . Ainsi, en ajustant la valeur du coefficient g_{44}^S , nous avons pu obtenir une bonne adéquation entre les courbes théoriques et expérimentales pour une valeur de $g_{44}^S = 0,135 \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$ (Figure 2-20).

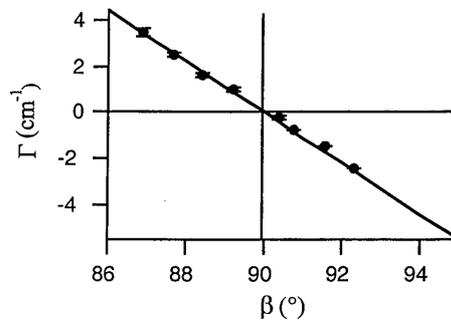


Figure 2-20 : Gain photoréfractif mesuré expérimentalement en fonction de l'angle β entre le vecteur réseau et l'axe \bar{c} autour de $\pi/2$. Comparaison avec les simulations.

III.4.e. Jeu de paramètres final de la phase cubique de BCT

Le jeu de paramètres en phase cubique du cristal de BCT qui permet d'ajuster au mieux nos résultats expérimentaux avec un facteur de réduction du gain est présenté dans le tableau 2-4.

Tableau 2-4 : Jeu de paramètres final déterminé pour BCT à partir des mesures en rotation, les paramètres changeant par rapport au premier jeu de paramètres étant indiqués en gras.

	Valeur BCT		Valeur BCT
g_{11}^S ($10^{-2} \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	11	Q_{11} ($\text{m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	0,09
g_{12}^S ($10^{-2} \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	3,5	Q_{12} ($\text{m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	-0,04
g_{44}^S ($10^{-2} \text{ m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	13,5	Q_{44} ($\text{m}^4 \cdot \text{C}^{-2}$)	0,06
P_{11}^P	$0,37 \pm 0,03$	Δn	0,05
P_{12}^P	$0,11 \pm 0,01$	n	2,46
P_{66}^P	$-0,30 \pm 0,15$	ϵ_{11}^T	1120 ± 30
s_{11}^P ($10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$)	8,7	ϵ_{33}^T	240 ± 10
s_{12}^P ($10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$)	-3,35		
s_{66}^P ($10^{-12} \text{ m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$)	8,9		

III.4.f. Jeu de paramètres final de la phase quadratique de BCT

Bien que nous n'ayons changé que les coefficients Kerr, nous sommes obligés de recalculer le jeu complet de paramètres de la phase quadratique. En effet, les coefficients Kerr interviennent dans le calcul de la polarisation spontanée, qui, elle-même, apparaît dans le calcul de tous les coefficients. Les changements sont légers pour la plupart des paramètres et le nouveau jeu est présenté dans le tableau 2-5.

Tableau 2-5 : Paramètres de la phase quadratique obtenus à partir de ceux de la phase cubique du tableau 2-4 pour BCT.

Polarisation spontanée ($\text{C} \cdot \text{m}^{-2}$) P_S	0,30	Coefficients élasto-optiques à champ constant	
Coefficients élastiques à champ constant ($10^{10} \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$)		P_{11}^E	0,34
C_{11}^E	22	P_{12}^E	0,08
C_{33}^E	18,7	P_{13}^E	0,25
C_{12}^E	13,7	P_{31}^E	0,02

C_{13}^E	14,6	P_{33}^E	0,80
C_{44}^E	8,3	P_{44}^E	0,89
C_{66}^E	11,2	P_{66}^E	-0,30
Coefficients piézo-électriques directs (pm.V ⁻¹)		Coefficients piézo-électriques de contrainte (C.m ⁻²)	
d_{31}	-51	e_{31}	-1,42
d_{33}	114	e_{33}	6,52
d_{15}	178	e_{15}	14,7
Coefficients électro-optiques à contrainte nulle (pm.V ⁻¹)		Coefficients électro-optiques à déformation nulle (pm.V ⁻¹)	
r_{13}^T	33	r_{13}^S	26
r_{33}^T	170	r_{33}^S	81
r_{42}^T	453	r_{42}^S	295
Constantes diélectriques à déformation nulle			
ϵ_{11}^S	824	ϵ_{33}^S	140

III.5. Évaluation des coefficients électro-optiques

Nous sommes maintenant en mesure de calculer les valeurs théoriques des coefficients électro-optiques effectifs déterminés dans la partie II.

Dans les configurations particulières où nous nous étions placés, l'expression des coefficients électro-optiques effectifs se simplifie et les contributions des effets électro-optiques directs et indirects peuvent être séparées. Nous allons examiner en détail quelles contributions nous avons effectivement mesurées dans nos expériences.

III.5.a. Cas où $\beta = 0$

Dans cette configuration, r_0^{eff} et r_c^{eff} dépendent seulement de $r_{ii}^{\text{eff}}(0,0)$ qui vaut (Eq. 2-21) [Zgonik 94] :

$$r_{ii}^{\text{eff}}(0,0) = r_{i3}^S + \frac{P_{i3}^E e_{33}}{C_{33}^E} \quad (2-39)$$

où les indices i vont de 1 à 3. Avec cette orientation, la constante diélectrique (Eq. 2-26) se simplifie et s'exprime comme :

$$\epsilon^{\text{eff}}(0,0) = \epsilon_{33}^S + \frac{c_{33}^2}{c_{33}^E \epsilon_0} \quad (2-40)$$

Ensuite, dans le cas où les deux faisceaux incidents sont polarisés ordinairement, on mesure $r_{22}^{\text{eff}}(0,0)$, qui se relie simplement au coefficient électro-optique à déformation nulle r_{23}^S :

$$r_{22}^{\text{eff}}(0,0) = r_{23}^S + \frac{p_{23}^E c_{33}}{c_{33}^E} \quad (2-41)$$

Et comme $r_{23}^S = r_{13}^S$ et $p_{23}^E = p_{13}^E$ pour des raisons de symétrie du cristal, nous avons :

$$r_{22}^{\text{eff}}(0,0) = r_{23}^S + \frac{p_{23}^E c_{33}}{c_{33}^E} = r_{13}^S + \frac{p_{13}^E c_{33}}{c_{33}^E} = r_{11}^{\text{eff}}(0,0) \quad (2-42)$$

Si les faisceaux sont polarisés extraordinairement, le coefficient électro-optique effectif s'écrit (à partir de l'équation 2-25) :

$$r_e^{\text{eff}} = (\cos(2\theta) - 1)r_{11}^{\text{eff}}(0,0) + (\cos(2\theta) + 1)r_{33}^{\text{eff}}(0,0) \quad (2-43)$$

Ainsi, notre mesure en polarisation ordinaire nous a donné $r_{22}^{\text{eff}}(0,0) = r_{11}^{\text{eff}}(0,0)$ et celle en polarisation extraordinaire, la valeur du coefficient électro-optique effectif $r_{33}^{\text{eff}}(0,0)$.

$$r_{33}^{\text{eff}}(0,0) = r_{33}^S + \frac{p_{33}^E c_{33}}{c_{33}^E} \quad (2-44)$$

Ainsi, nous voyons que les coefficients que nous avons assimilés dans un premier temps à r_{13} et r_{33} , sans préciser plus avant la nature exacte de ces coefficients électro-optiques, ne correspondent ni aux coefficients à contrainte nulle, ni aux coefficients à déformation nulle, mais à un paramètre intermédiaire entre ces deux extrêmes.

Les valeurs expérimentales obtenues ainsi (II.2.b), corrigées du facteur de réduction de 50% existant dans ce cristal, sont $r_{22}^{\text{eff}}(0,0) = 44 \text{ pm.V}^{-1}$ et $r_{33}^{\text{eff}}(0,0) = 110 \text{ pm.V}^{-1}$ alors que les valeurs calculées à partir des paramètres du tableau 2-5 sont $r_{22}^{\text{eff}}(0,0) = 34 \text{ pm.V}^{-1}$ et $r_{33}^{\text{eff}}(0,0) = 107 \text{ pm.V}^{-1}$. Ainsi, l'accord entre théorie et expérience est satisfaisant.

III.5.b. Mesure autour de $\beta = \frac{\pi}{2}$

Dans cette configuration, en tenant compte des effets électro-optiques indirects, on montre que :

$$\varepsilon^{\text{eff}}\left(0, \frac{\pi}{2}\right) = \varepsilon_{11}^{\text{T}} \quad (2-45)$$

alors que la pente de la courbe de variation est donnée par $4(r_{42}^{\text{T}} + \delta_r)$, avec δ_r qui est une correction due aux effets électro-optiques indirects et qui était négligée dans la première mesure. Nous savons donc maintenant que la valeur de $r_{42} = 250 \text{ pm.V}^{-1}$ correspond au terme $(r_{42}^{\text{T}} + \delta_r)$, sans oublier qu'il existe un facteur de réduction de 0,5 dans le cristal B 69. En tenant compte de ces corrections, nous arrivons à la valeur de 453 pm.V^{-1} donnée dans le tableau 2-5.

III.6. Détermination de la configuration qui permet d'obtenir le gain optimum

Grâce à ces connaissances sur les effets électro-optiques directs et indirects dans BCT, nous sommes en mesure de calculer pour quelle configuration le gain maximum sera obtenu. Cette information est très importante puisque nous envisageons d'utiliser ce cristal notamment pour réaliser de la double conjugaison de phase. Or, afin d'utiliser au mieux les performances du cristal en terme de gain, il est judicieux de choisir la coupe du cristal la mieux adaptée. Les coupes classiques sont la coupe à 0° et la coupe à 45° . Afin de pouvoir choisir entre ces deux coupes, nous allons calculer la variation du gain en fonction de l'angle β entre le vecteur réseau et l'axe \vec{c} du cristal et avec l'angle θ entre les faisceaux (sachant que $\alpha = 0$ est l'angle optimal et le plus simple d'utilisation).

A partir du jeu de paramètres final obtenu au paragraphe précédent (tableau 2-5), nous obtenons que le gain maximum est obtenu pour un angle β autour de 45° (Figure 2-21a).

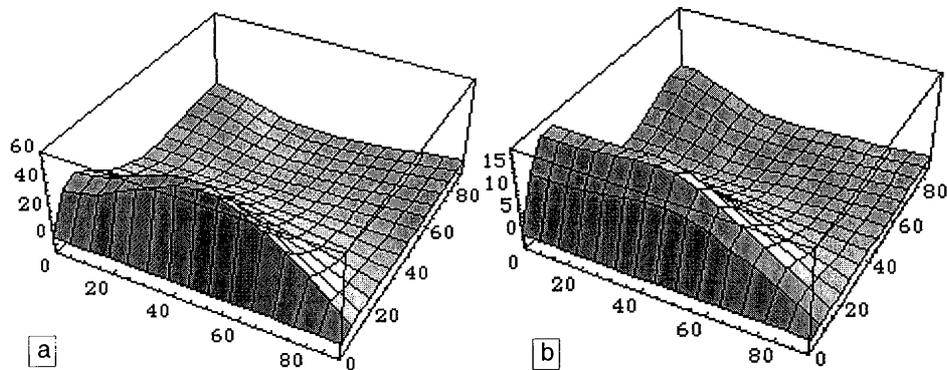


Figure 2-21 : Représentation 3D du gain en fonction de θ et β pour le jeu de paramètres.
a : final b : initial

Ce calcul montre également l'importance des mesures en rotation effectuées dans cette partie. En effet, en utilisant simplement le premier jeu de paramètres obtenu à partir des paramètres en phase cubique du titanate de baryum (tableau 2-2, colonne 2), l'optimum de gain était obtenu pour un angle β de 0° (Figure 2-21b). Cette différence s'explique par le poids respectif des coefficients r_{42}^s et r_{33}^s . Ainsi, la coupe à 45° est toujours la plus favorable quand le coefficient r_{42}^s est grand devant r_{33}^s et r_{13}^s , ce qui est le cas pour notre jeu de paramètres final puisque nous avons $r_{42}^s = 295 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ et $r_{33}^s = 81 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$.

Ce résultat est confirmé par le fait que nous n'avons pas observé de beam-fanning dans le cristal B 69 taillé à 0° à 514 nm alors que nous n'avons pas pu faire de mesures fiables en polarisation extraordinaire avec le cristal B 92 taillé à 45° à cause, justement, du beam-fanning.

Cependant, certains des paramètres des effets électro-optiques indirects qui interviennent dans le calcul du gain tels que s_{44} et p_{44} n'ont pas pu être déterminés dans le chapitre 2 puisque le beam-fanning empêchait les mesures en polarisation extraordinaire dans le cristal coupé à 45° . Nous avons donc testé l'influence de ces paramètres sur la configuration optimale. Si on multiplie par exemple p_{44} par 2, le gain maximum est obtenu pour un couple (β, θ) de $(43^\circ, 9^\circ)$. Et si on multiplie s_{44} par 2, les angles pour lesquels le gain est maximum sont $(43^\circ, 8,5^\circ)$. Par conséquent, l'influence de ces paramètres sur la configuration qui maximise le gain photoréfractif est insignifiante.

IV Conclusion

Les résultats présentés dans ce chapitre sont intéressants à deux titres. D'une part, ils apportent des connaissances fondamentales sur ce cristal nouveau qu'est le BCT. Ils ont permis de mettre en évidence les différences qui existent entre le titanate de baryum et son dérivé, le BCT. Nous avons pu notamment montrer que la différence entre les constantes diélectriques des deux cristaux a un impact direct sur leurs coefficients électro-optiques. Ainsi, r_{13}^T et r_{33}^T sont plus élevés dans BCT comme l'est ϵ_{33}^T alors que r_{42}^T est plus faible comme ϵ_{11}^T . D'autre part, ces résultats apportent de nombreuses informations sur les paramètres de ce nouveau cristal, ce qui sera notamment très utile pour déterminer les configurations intéressantes en fonction des applications envisagées.

Nos résultats concernant les coefficients électro-optiques sont en accord avec d'autres valeurs publiées, sauf en ce qui concerne r_{42}^T . En effet, nous avons obtenu $r_{13}^T = 33 \text{ pm.V}^{-1}$ et $r_{33}^T = 170 \text{ pm.V}^{-1}$ par nos mesures. Les valeurs expérimentales publiées par Kuper et al. [Kuper 98] sont : $r_{13}^T = 36 \text{ pm.V}^{-1}$ and $r_{33}^T = 140 \text{ pm.V}^{-1}$. Cependant, nous avons trouvé $r_{42}^T = 453 \text{ pm.V}^{-1}$ alors que la valeur publiée dans [Neumann 99] est plus faible: ($r_{42}^T = 190 \text{ pm.V}^{-1}$). Cette dernière valeur semble trop faible, notamment si on considère les résultats que nous avons pu obtenir dans le cristal taillé à 45° en polarisation extraordinaire. En effet, même si nous n'avons pas de résultats suffisamment fiables pour en déduire une valeur précise du paramètre r_{42}^T , nous avons observé des facteurs d'amplification du signal par couplage deux ondes qui indiquent que la valeur de r_{42}^T est très élevée. L'observation de beam-fanning dans le cristal taillé à 45° (alors que nous n'en avons pas observé dans le cristal à 0°) est une preuve supplémentaire que le coefficient r_{42}^T est plus fort que r_{33}^T .

Ces mesures restent cependant des mesures partielles en raison du grand nombre de paramètres libres. L'ajustement que nous avons réalisé nous semble correct mais il est possible d'ajuster les résultats expérimentaux de façon totalement différente (par exemple, sans introduire de facteur de réduction sur le champ de charges d'espace). Pour confirmer le choix que nous avons fait, des mesures photoréfractives complémentaires sont nécessaires, par exemple avec d'autres orientations de cristaux. De plus, il serait intéressant de confronter nos résultats avec des mesures annexes directes et spécifiques des différents coefficients (électro-optiques, piézo-électriques, élastiques,...), ce qui nous permettrait, par exemple, de confirmer (ou d'infirmier) la présence du facteur de réduction et éventuellement d'en identifier l'origine.