l'étude de l'uniformité de l'amplification dans l'échantillon sous champs carrés ou sinusoïdaux. Elle se poursuit par l'amplification et l'analyse de la résolution la meilleure. Des amplifications d'images ainsi que les résolutions atteintes seront alors présentées dans des cristaux de BGO:Nd et BGO:Cu.

O - Présentation de l'effet photoréfractif.

1. Propriétés générales.

L'effet photoréfractif a été découvert en 1966 par Ashkin et al. aux laboratoires Bell lors d'expériences d'optique non-linéaire (doublement de fréquence) dans des cristaux de LiNbO₃ et LiTaO₃. Ils remarquèrent en effet une lente altération photoinduite du front d'onde des faisceaux se propageant dans ces cristaux. Ce phénomène induit une dérive des performances des doubleurs optiques. Il fut donc appelé "dommage optique". On s'aperçut plus tard de son intérêt pour réaliser des dispositifs optiques non-linéaires. Lorsqu'il est utilisé pour ces réalisations, il prend alors le nom d'effet photoréfractif. Cet effet est présent dans des cristaux ferroélectriques tels que LiNbO₃, LiTaO₃, KNbO₃, BaTiO₃, dans des cristaux paraélectriques comme Bi₁₂SiO₂₀ (BSO), Bi₁₂GeO₂₀ (BGO), Bi₁₂TiO₂₀ (BTO), dans certains semi-conducteurs tels que GaAs, InP [1].

Un cristal photoréfractif possède deux propriétés importantes :

- Il est photoconducteur : illuminé dans sa bande de transparence, des électrons (ou des trous) sont excités, à partir de niveaux donneurs situés dans la bande interdite, vers la bande de conduction (ou de valence). De cette photoexcitation des porteurs de charge à partir d'une figure d'interférence, il résulte une modulation spatiale de la densité des porteurs de charge et des niveaux donneurs. Sous l'effet de la diffusion et d'un éventuel champ électrique, ces porteurs libres migrent avant de se recombiner dans les niveaux situés dans la bande interdite. Il se crée ainsi un réseau de charge d'espace lié au réseau d'ions.
- Il est électrooptique. Le champ électrique associé au réseau de charge d'espace appelé champ de charge d'espace engendre par effet électrooptique un réseau d'indice de réfraction.

Les principales caractéristiques du phénomène sont les suivantes.

- Sa sensibilité à l'énergie reçue et non à la puissance crête. On peut utiliser cet effet dans des expériences d'optique non-linéaire avec des lasers continus et de faible puissance.
- ⇒ Il est non local. La modulation d'indice est déphasée par rapport au réseau d'illumination. Nous montrerons que cela permet un transfert d'énergie entre deux faisceaux cohérents par couplage d'onde. Le sens du transfert est indépendant des intensités respectives des faisceaux mais dépend de la direction de propagation et des polarisations des ondes par rapport aux axes cristallographiques.
- ⇒ Sa réversibilité. Un réseau inscrit dans le matériau est effacé par une illumination uniforme.
- Son effet mémoire. Le cristal étant isolant ou semi-isolant dans le noir, la distribution de charges est figée et un réseau construit persiste. Cette durée de mémorisation est fonction du temps de relaxation diélectrique du cristal. Elle peut aller de quelques microsecondes pour les semi-conducteurs jusqu'à plusieurs années pour les isolants.

Ces propriétés confèrent à ces matériaux un intérêt particulier en ce qui concerne leurs applications pour le contrôle holographique de matériaux en temps réel [2], le stockage optique de l'information [3], les fonctions logiques [4-6], les cavités auto-oscillantes [7-10], l'amplification optique [1].

2. Modèle théorique.

Le modèle d'évolution temporelle du champ de charge d'espace rendant compte des résultats présentés dans ce mémoire est le modèle de transport de bande avec le développement proposé par Kukhtarev [11]. Nous étendrons ce développement au second ordre pour rendre compte des résultats obtenus sur des cristaux de BGO. Le phénomène de couplage à deux ondes sera ensuite décrit.

a) Cinétique du champ de charge d'espace.

Suivant les matériaux, différentes hypothèses doivent être retenues pour décrire l'évolution temporelle du champ de charge d'espace. Nous prenons ici celles qui s'appliquent aux cristaux de sillénites que nous avons employés. Le modèle adopté ne fait donc intervenir qu'un seul type de porteurs de charge libres, les électrons, excités à partir de centres ionisables situés dans la bande interdite du matériau. Nous noterons n la densité d'électrons libres, $N_D - N_D^i$ celle des centres ionisables où N_D est la densité de ces centres. L'existence des centres ionisés N_D^i en l'absence d'illumination est due à la présence de pièges de densité N_A au voisinage de la bande de valence. Sans illumination, on a $N_D^i = N_A$ (neutralité électrique). Les centres de densité N_A n'interviennent pas dans l'effet photoréfractif.

L'équation de génération des donneurs ionisés s'écrit :

$$\frac{\partial N_D^i}{\partial t} = sI \left(N_D - N_D^i \right) - \gamma_R \ n N_D^i \tag{1}$$

s étant la section efficace de photoionisation des centres, *I* l'intensité lumineuse définie comme la puissance par unité de surface et γ_R le taux de recombinaison des électrons dans la bande de conduction.

Les électrons dans la bande de conduction peuvent se recombiner dans les centres N_D^i avec une constante de temps :

$$\tau_{R} = \frac{I}{\gamma_{R} \ N_{D}^{i}}.$$
 (2)

Sous l'effet d'un champ électrique \vec{E} et par diffusion, les charges migrent. Suivant la loi d'Ohm, l'équation de transport est :

$$\vec{j} = e \ n \ \mu \vec{E} + \mu \ k_{\rm B} T \ grad \ n \tag{3}$$

 μ et *e* sont les valeurs absolues de la mobilité et de la charge de l'électron, k_B est la constante de Boltzmann, *T* la température absolue. Le champ électrique \vec{E} est la somme d'un éventuel champ appliqué dont la valeur interne est \vec{E}_o et du champ de charge d'espace \vec{E}_{sc} . L'effet photovoltaïque [1] est négligé car très faible dans les matériaux auquels nous nous intéressons expérimentalement. L'équation de conservation de la charge s'écrit :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{div}{e} \frac{j}{t} + \frac{\partial}{\partial t} \frac{N_D^i}{\partial t}$$
(4)

et l'équation de Poisson :

$$\varepsilon_0 div \left(\varepsilon^s \vec{E}\right) = -e \left(n + N_A - N_D^i\right)$$
 (5)

 ε_0 est la permittivité du vide, ε ^s est la constante diélectrique statique du matériau.

Le cristal sera dorénavant supposé être illuminé par une figure d'interférence de taux de modulation *m* et de vecteur d'onde \vec{K} (le pas est $\Lambda = \frac{2\pi}{K}$), de plus \vec{E}_o est dans la direction de \vec{K} . Lorsque le taux de modulation est faible devant 1, les équations (1) à (5) sont linéarisables. Les grandeurs N_D^i , *n*, *j*, *E* peuvent être développées au premier ordre en fréquences spatiales et en *m* sous la forme :

$$A(y,t) = A_0(t) + \frac{1}{2} [A_1(t) \ e^{jKy} + c.c.]$$
(6)

où y est la coordonnée selon la direction du vecteur réseau.

Les conditions expérimentales seront telles que toutes les grandeurs non modulées spatialement $A_0(t)$ seront indépendantes du temps sauf \vec{E}_0 . L'illumination sera faible ce qui a pour conséquence que peu de charges seront excitées: $n_0(t)$ sera très petit devant $N_{D0}^i(t)$. On obtient alors :

$$n_{I}(t) = -n_{0} \left(E_{I}(t) + \frac{\varepsilon_{0} \varepsilon^{s}}{e \mu \ n_{0}} \ \frac{\partial E_{I}}{\partial t} \right) \frac{1}{E_{0} + j \ E_{D}}$$
(7)

pour la distribution de charges libres.

$$E_D = \frac{k_B T K}{e}$$
 est le champ de diffusion.

L'équation (7) sera utile au paragraphe **1**.2.b. où sera étudiée l'influence du réseau électronique.

L'équation d'évolution du champ de charge d'espace est [12] :

$$\frac{\partial^{2} E_{I}(t)}{\partial t^{2}} + \frac{\partial E_{I}}{\partial t} \left[\frac{1}{\tau_{DI}} + \frac{1}{\tau_{I}} + \frac{1}{\tau_{R}} + \frac{1}{\tau_{D}} - jK\mu \ E_{0}(t) - \frac{dE_{0}(t)}{dt} \ \frac{1}{E_{0} + j \ E_{D}} \right] + E_{I}(t) \left[\frac{1}{\tau_{R}\tau_{DI}} + \frac{1}{\tau_{I}\tau_{D}} - jK \ \frac{\mu \ E_{0}(t)}{\tau_{I}} - \frac{1}{\tau_{DI}} \frac{dE_{0}(t)}{dt} \ \frac{1}{E_{0}(t) + j \ E_{D}} \right]$$
(8)
$$= -\frac{m}{\tau_{R}\tau_{DI}} \left(E_{0}(t) + j \ E_{D} \right)$$

1

$$\tau_{R} = \frac{1}{\gamma_{R}N_{A}}$$
: constante de temps de recombinaison.

$$\tau_{DI} = \frac{\varepsilon_{0}\varepsilon^{s}}{e \ \mu \ n_{0}}$$
: constante de temps de relaxation diélectrique.

$$\tau_{I} = \frac{1}{s \ I + \gamma_{R}n_{0}}$$

$$\tau_{D} = \frac{e}{k_{B}\mu TK^{2}}$$
: constante de temps de diffusion.

L'équation (8) montre que $E_1(t)$ est complexe donc que le champ de charge d'espace est $E_{sc} = Re\left(E_1 \ e^{jKy}\right)$ et qu'il est déphasé par rapport au réseau d'illumination. Ce déphasage est la cause du couplage d'onde décrit dans le paragraphe suivant.

b) Couplage d'onde et gain dans un matériau photoréfractif.

Le couplage résulte de l'autodiffraction de deux ondes d'intensité I_1 et I_2 sur un réseau dynamique créé dans le cristal par leur figure d'interférence. Ces deux ondes interfèrent de façon cohérente et, à la sortie du cristal, leurs intensités, solutions des équations d'onde couplées [13], [14] ont pour valeur :

$$I_{I,2}(z) = \frac{I(0) \ e^{-\alpha z/\cos\beta}}{1 + \frac{I_{2,1}(0)}{I_{I,2}(0)} \ e^{\mp \ Gz/\cos\beta}}$$
(9)

où $I(0) = I_1(0) + I_2(0)$ est l'intensité incidente totale, α est le coefficient d'absorption, G est appelé le gain photoréfractif par unité de longueur, z est l'abscisse le long de la bissectrice aux deux faisceaux dont les angles de réfraction sont β et - β . Nous voyons qu'il y a redistribution d'énergie entre les deux faisceaux. Celle-ci est fonction du rapport des intensités incidentes au cristal et le sens du transfert dépend du signe de G. Dans cette répartition d'énergie, l'illumination totale incidente sur le cristal n'intervient pas.

L'expression du gain photoréfractif de mélange à deux ondes par unité de longueur est [1] :

$$G = \frac{\pi}{n\lambda} r_{eff} \; \frac{|E_l|}{m} \; \sin \psi \tag{10}$$

 λ est la longueur d'onde dans le vide,

n est l'indice de réfraction,

 ψ est le déphasage du champ de charge d'espace par rapport à la figure d'interférence,

 r_{eff} est le coefficient électrooptique effectif que nous préciserons par la suite au paragraphe @.1.

Lorsque deux faisceaux dont un d'intensité très faible devant l'autre interagissent, le facteur d'amplification Γ ou gain relatif du faisceau faible a pour expression :

$$\Gamma = e^{Gt} = \frac{\text{Intensité transmise du faisceau faible amplifié}}{\text{Intensité transmise du faisceau faible non amplifié}}$$
(11)

 $\ell = \frac{z}{\cos\beta}$ est la longueur d'interaction de ces deux faisceaux.

Plusieurs techniques sont employées pour augmenter G: application d'un champ extérieur électrique soit continu, soit alternatif, action d'un réseau mobile, résonance en intensité. La suite de ce premier chapitre est consacrée à l'étude de l'amplification Γ et de la résolution en fonction de la nature du champ appliqué. Nous commençons par une étude comparative des techniques d'amplification du mélange à deux ondes et nous montrons leur limitation.

2 - LES TECHNIQUES CLASSIQUES D'AMPLIFICATION ET LEUR LIMITE COMMUNE.

L'expression du gain de couplage (équation 10) montre qu'il est proportionnel au coefficient électrooptique et à la partie imaginaire du champ de charge d'espace c'est-à-dire à la

composante $|E_1| \sin \psi$ déphasée de $\pm \pi/2$ par rapport au réseau d'illumination. Plusieurs techniques [15-19] ont jusqu'à présent été développées dans le but d'augmenter cette composante et donc le gain dans les matériaux à coefficient électrooptique faible.

 ⇒ L'application d'un champ électrique continu permet d'augmenter le module du champ de charge d'espace mais tend à le remettre en phase avec le réseau d'illumination. Cet inconvénient peut être contourné à condition d'appliquer des champs E₀ très forts afin

que $E_0 >> E_q$ auquel cas $|E_1| = E_q$ et $\psi = \frac{\pi}{2}$. E_q est le champ de saturation, c'est le champ de charge d'espace maximal qui pourrait être induit dans un matériau photoréfractif si toutes les charges étaient complètement redistribuées dans les pièges :

$$E_q = \frac{eAN_A}{2\pi \ \varepsilon_0 \varepsilon^s}.$$

⇒ L'introduction sur un des faisceaux d'un faible décalage en fréquence (par exemple par effet Doppler sur un miroir mobile) combinée à l'application d'un champ continu permet au déphasage de rester égal à ± π/2 et à l'amplitude du champ de charge d'espace d'être rehaussée. Cette méthode est résonante et nécessite d'optimiser le pas, l'intensité et le décalage en fréquence pour chaque valeur du champ appliqué. L'amplification de l'onde sonde est uniforme pour une gamme d'incidences des faisceaux assez faible.

⇒ L'emploi de champs appliqués alternatifs carrés renforce le champ de charge d'espace en le gardant purement imaginaire. Les amplifications atteintes sont égales à celles obtenues avec la technique précédente et elles présentent l'avantage de ne pas être résonantes. L'amplification est uniforme pour une gamme importante d'incidences des faisceaux. L'application d'un champ sinusoïdal bien que moins efficace renforce également le gain.

 La méthode résonante en intensité où cette dernière est optimisée pour égaliser le taux d'émission optique des trous et le taux d'émission thermique des électrons dans les matériaux comme InP:Fe ou ceux présentant cet effet.

Les expressions théoriques du champ de charge d'espace pour les trois premiers cas sont rappelées en annexe 1. Sur la figure 1, les courbes de gain en fonction du pas du réseau photoinduit dans un cristal de BSO illustrent que les trois techniques admettent la même limite : le champ de charge d'espace maximum photoinduit ne peut dépasser la valeur mE_q . Le gain, proportionnel à E_1/m est donc borné par une quantité proportionnelle à E_q même pour des champs appliqués très forts. Ce résultat est aussi valable pour la méthode résonante en intensité employée dans l'InP:Fe.



Fig. 1 : Courbes théoriques de gain en fonction du pas du réseau photoinduit dans un cristal de BSO obtenues avec les techniques d'amplification suivantes : réseau mobile (courbe 1, $E_o=10$ kV/cm, v = 68 µm/s : vitesse de déplacement de la figure d'interférence), champ carré (courbe 2, $E_0 = 10$ kV/cm). La droite 3 est leur limite commune due au champ de saturation ($E_0 >> E_q$).

Le chapitre suivant propose une nouvelle méthode résonante en fréquence permettant de s'affranchir de cette limite. Nous étudions d'abord une résonance dans l'amplification sous champ sinusoïdal employé dans des conditions telles que les performances atteintes sont supérieures à celles obtenues avec les conditions habituelles [17]. Nous optimiserons ensuite cette méthode avec des champs pulsés périodiques.

• RÉSONANCE SOUS CHAMPS ALTERNATIFS SINUSOÏDAUX ET PULSÉS PÉRIODIQUES.

1. Résonance en champ sinusoïdal.

a) Principe.

Dans notre laboratoire, des résonances du gain par mélange à deux ondes ont été observées dans un cristal de BGO:Fe (17 ppm) pour certaines fréquences du champ sinusoïdal [20]. Dans ces expériences, le pas du réseau était fixé à $\Lambda = 61 \,\mu\text{m}$ et la fréquence du champ variait de 2 kHz à 15 kHz. Le gain alors obtenu valait 1,4 cm⁻¹ sur le pic de résonance correspondant à la fréquence de 10 kHz. Ce gain dépasse celui sous champ carré à valeur crête égale de champ appliqué. Ce phénomène ne peut être expliqué par l'étude menée dans la réf.17. Un champ carré ou sinusoïdal tel qu'il est employé dans cette référence déplace les électrons excités de plusieurs franges à partir des franges brillantes et les laisse se recombiner ou diffuser indifféremment dans les régions sombres ou brillantes de la figure d'interférence avant que ces électrons soient à nouveau excités. Ce mécanisme se produit parce que la période T du champ appliqué est très grande devant le temps de recombinaison des électrons ($T >> \tau_R$). Les auteurs employaient des cristaux de BTO, les pas du réseau allaient de 2,5 μ m à 10 μ m, les périodes des champs électriques étant telles que $\tau_R << T << \tau_g$ (τ_g est la constante de temps de construction du réseau photoréfractif). Dans ces conditions, le champ carré donne des amplifications plus importantes qu'un champ sinusoïdal.

Dans notre étude, les fréquences des champs électriques aussi bien que les fréquences spatiales des réseaux n'appartiennent pas aux mêmes domaines que ceux jusqu'à présent explorés. Le phénomène physique est lui aussi différent. Dans nos expériences, l'effet du champ sinusoïdal peut être décrit en considérant un champ sinusoïdal comme une succession temporelle où le champ est soit nul, soit constant (fig. 2).



Fig. 2 : Découpage d'une sinusoïde en une succession temporelle d'intervalles où le champ est soit nul, soit égal à $\pm \overline{E}_0$. Cette description permet de décrire le phénomène de résonance sous champ sinusoïdal.

Lorsque le champ est nul ou très proche de zéro, un réseau d'électrons est excité, se construit en phase avec la figure d'interférence. Lorsque le champ est proche de sa valeur maximale le réseau est déplacé d'une longueur d. Si cette longueur est égale à un nombre impair de demi-interfranges du réseau photoinduit, les charges photoexcitées depuis les franges brillantes se recombinent principalement dans les franges sombres. Le champ de charge d'espace est ainsi augmenté et le déphasage entre le réseau de charge d'espace et le réseau d'indice vaut $\pi/2$. Ceci accroît l'efficacité du mélange à deux ondes.

Nous pouvons donc prévoir que la résonance apparaît si les conditions suivantes sont vérifiées :

Les charges doivent migrer sous l'action du champ d'un nombre impair de demiinterfranges :

$$d = (2n+1) \frac{\Lambda}{2} \approx \mu \int_{0}^{T/2} \overline{E}_{o} \sin\left(\frac{2\pi t}{T}\right) dt = \frac{T}{\pi} \mu \overline{E}_{o}$$
(12)

 ⇒ avant que les charges aient parcouru cette distance, le réseau des porteurs de charges ne doit pas se relaxer et les charges ne doivent ni se recombiner, ni diffuser :

$$T < \tau_{DI}, \tau_{R}, \tau_{D} . \tag{13}$$

b) Montage expérimental et résultats.

Le dispositif expérimental est représenté figure 3. Le faisceau issu d'un laser argon Ar+ polarisé verticalement ($\lambda = 514$ nm) est partagé en un faisceau pompe (son intensité incidente est $I_p = 5,26 \text{ mW/cm}^2$) et un faisceau sonde (son intensité incidente est $I_s = 36,8 \text{ }\mu\text{W/cm}^2$). La pompe arrive en incidence normale sur le cristal. La sonde, après traversée d'une lentille cylindrique (distance focale = 150 mm) acquiert une structure d'onde convergente dont le point de focalisation se situe après le cristal. Chaque composante de l'onde sonde interfère avec le faisceau pompe, l'angle entre le faisceau pompe et les différentes incidences du faisceau sonde sera noté θ . Plusieurs réseaux d'illumination de pas différents s'inscrivent ainsi dans le cristal qui, comme nous le verrons au paragraphe **(9**.3 est homogène. Après amplification, toutes les composantes de l'onde convergente issues du cristal sont recueillies sur une barrette linéaire de 1024 photodiodes placée dans le plan focal d'une lentille sphérique (distance focale = 150 mm). Ce dispositif possède l'avantage d'étudier directement la répartition de l'amplification en fonction des angles d'incidence des faisceaux sondes constituant l'onde cylindrique. La lame séparatrice L.S. laisse passer le faisceau pompe qui arrive sous incidence normale sur le cristal et renvoie le faisceau sonde sous des incidences très faibles : des pas du réseau photoinduit très grands (jusqu'à environ 50 µm) peuvent ainsi être obtenus. La lame L.S. est prismatique pour éviter les franges dues à une lame à faces parallèles.

A cause de la diffusion présente sur notre montage, le signal a une structure granuleuse (speckle). Celle-ci est éliminée au niveau de la détection par un filtre dont la fréquence de coupure est 5 kHz tandis que la fréquence d'échantillonnage de la barrette est 1 kHz. Chaque mesure du facteur d'amplification s'effectue avec un ordinateur et consiste en :

- ⇒ l'acquisition du bruit, les faisceaux pompe et sonde sont coupés : $I(\theta, ni \text{ sonde, ni pompe})$;
- ⇒ l'acquisition de la sonde sans la pompe et sans champ appliqué : $I(\theta, sonde, sans pompe)$;

- ⇒ l'acquisition de la pompe sans la sonde avec champ appliqué : $I(\theta, sans sonde, pompe)$;
- l'acquisition du faisceau sonde amplifié : $I(\theta, sonde, pompe)$.

Le facteur d'amplification Γ est alors calculé avec :

$$\Gamma(\theta) = \frac{I(\theta, \text{ sonde, pompe}) - I(\theta, \text{ sans sonde, pompe})}{I(\theta, \text{ sonde, sans pompe}) - I(\theta, \text{ ni sonde, ni pompe})}.$$
(14)

Afin de s'affranchir des variations temporelles du gain (vibrations, fluctuations du laser...), nous moyennons les courbes $\Gamma(\theta)$ sur dix acquisitions. La courbe ainsi obtenue reste bruitée. Ce bruit résulte d'un artefact de calcul. La lumière diffusée par la pompe ($I(\theta, sans sonde, pompe$)) s'additionne en effet en amplitude avec le signal sonde amplifié ($I(\theta, sonde, pompe$)) alors que nous n'avons pu le soustraire qu'en intensité (formule(14)). Pour éliminer ce bruit, la courbe d'amplification est ensuite lissée (le lissage porte sur les quatre points les plus proches d'un point donné).



Fig. 3 : Montage expérimental pour l'étude du facteur d'amplification en fonction de l'angle entre les faisceaux sondes et la pompe. M : miroir, L.S. : lame séparatrice prismatique, C.S. : cube séparateur, L.C. : lentille cylindrique, D.O. : densité optique, V : tension appliquée.

Comme la fréquence de coupure de notre alimentation est de quelques kilohertz, nous avons utilisé un cristal de BGO fortement dopé en Fer (50 ppm). En effet, des travaux précédents dans notre équipe [20] ont montré qu'en augmentant le dopage en Fer, le temps de recombinaison des porteurs de charge augmente et leur mobilité diminue, de telle sorte que la période T nécessaire pour atteindre une résonance est plus grande pour les cristaux dopés et plus facile à obtenir (voir équation (12)). Nos cristaux ont été synthétisés spécialement pour répondre à ces critères à l'Université de Bordeaux I au Laboratoire de Chimie du Solide par l'équipe de J.C. Launay.

La figure 4 montre les acquisitions du facteur d'amplification telles qu'elles ont été décrites précédemment. D'une courbe à l'autre, la fréquence du champ varie et couvre le domaine 2 kHz - 11 kHz. Le champ appliqué est tel que $\overline{E}_{\rho} = 3,75$ kV/cm.



Fig. 4 : Déplacement du pic de résonance dans les courbes du facteur d'amplification Γ en fonction de l'angle θ entre les faisceaux sonde et pompe lorsque la fréquence du champ sinusoïdal ($\overline{E}_{\theta} = 3.75 \text{ kV/cm}$) varie.

Nous voyons sur ces courbes que la valeur du pas pour laquelle se produit la résonance varie avec la période du champ sinusoïdal appliqué. Ceci est bien en accord avec la relation (12). Sur chaque antirésonance observée, les charges migrent d'un nombre entier de franges :

$$d=2n\left(\frac{\Lambda}{2}\right).$$

Le tableau 1 montre les positions expérimentales et théoriques du pic de résonance. La différence entre les valeurs théoriques et expérimentales vient du fait que la relation (12) est une formule approchée.

Le gain le plus élevé est de 1,53 cm⁻¹ pour une fréquence du champ électrique de 6 kHz. Hors résonance, le gain est plus faible, il vaut 0.5 cm⁻¹.

f (kHz)	3	4	5	6	7	8	9
$\theta_{r\acute{e}s/th}(\text{deg.})$	0°50'	1°07'	1°24'	1°40'	1°58'	2°16'	2°31'
$\theta_{rés/exp}$ (deg.)	1°10'	1°28'	1°56'	2°18'	2°45'	3°15'	3°20'
$\Gamma_{r\ell s}$	2,5	2,7	3	3,3	2,7	2,5	2
G (cm ⁻¹)	1,17	1,27	1,41	1,53	1,27	1,17	0,88

Tableau 1 : Positions théoriques et expérimentales des pics de résonance en fonction de la fréquence du champ sinusoïdal (\overline{E}_0 =3,75 kV/cm). Le facteur d'amplification et le gain G (la longueur d'interaction vaut 7,9 mm) sont donnés pour chaque fréquence.

c) Discussion.

Nous venons de mettre en évidence un pic de résonance dans la courbe de gain de notre cristal lorsqu'un champ sinusoïdal lui est appliqué. Ce pic de résonance se produit pour des pas variables en fonction de la fréquence du champ. Ce phénomène ne peut être décrit par l'étude théorique effectuée jusqu'à présent par différents auteurs [17] [21], basée sur l'équation différentielle de E_1 limitée au premier ordre. Leur approche ne permet pas en particulier de mettre en évidence la dépendance du gain en fonction de la fréquence du champ appliqué comme il est rappelé annexe 1. Vis-à-vis de notre expérience, leur domaine d'étude se limite à des pas où le gain que nous obtenons vaut 0,5 cm⁻¹ c'est-à-dire en dehors de la résonance.

L'approche et le principe physique de nos expériences qui ont été décrits au début de ce paragraphe sont justifiés par l'expérience et permettent de prédire correctement l'existence (relation (13)) et la position de la résonance (relation (12)).

Nous allons dans le paragraphe suivant nous attacher à optimiser l'allure temporelle du champ électrique afin de tirer profit au maximum du phénomène de résonance et augmenter le gain.

2. Optimisation du phénomène de résonance par l'application de champs pulsés périodiques.

a) Principe.

Nous envisageons maintenant une autre catégorie de champs alternatifs : les champs pulsés symétriques ou asymétriques dont les allures sont présentées figure 5. A l'aide de tels champs, nous pourrons ajuster indépendamment les durées T_0 et T_1 (ce qui était impossible avec le modèle du champ sinusoïdal figure 2) afin de rehausser à nouveau le gain.



Fig. 5 : Allures temporelles d'un champ pulsé asymétrique a) et d'un champ pulsé symétrique b) employés pour augmenter le couplage à deux ondes.

Comme précédemment lorsque nous avons exposé le principe d'un champ sinusoïdal, l'effet de ces champs se décrit de la façon suivante : pendant la durée T_0 où aucun champ ne s'applique au cristal, le réseau de porteurs de charges est excité, il y a diffusion et recombinaison partielles. Durant T_1 , ce réseau de charges est déplacé par un champ E_0 constant dont le rôle est de forcer les charges excitées à migrer rapidement depuis les franges brillantes dans les franges sombres. A l'intervalle de temps T_0 suivant, ces charges sont repiégées et le processus recommence. Nous pourrons ainsi redistribuer toutes les charges dans les pièges et nous affranchir du facteur limitatif m Eq des autres techniques ainsi que le confirmera notre analyse théorique. De la même manière que pour le champ sinusoïdal, nous pouvons prévoir qu'il y aura résonance lorsque nous déplacerons à l'aide du champ les charges d'une demiinterfrange $\Lambda_r/2$:

$$\frac{A_r}{2} = \mu \ \overline{E}_o \ T_i \quad . \tag{15}$$

Pour que le processus soit efficace durant le déplacement des charges, le réseau de charges ne doit pas se relaxer et les charges ne doivent ni diffuser, ni se recombiner :

$$T_l < \tau_{Dl}, \ \tau_R, \ \tau_D. \tag{16}$$

De plus, le réseau photoréfractif ne doit pas s'effacer pendant la durée T_0 d'où :

$$T_o < \tau_g \ . \tag{17}$$

L'analyse théorique développée au paragraphe suivant va nous permettre de retrouver ces trois conditions et de simuler les courbes de gain lorsque les champs appliqués sont pulsés périodiques.

b) Analyse théorique.

Pour mener à bien une étude complète permettant de décrire le phénomène de résonance sous champs pulsés périodiques, il faut résoudre l'équation différentielle (8) du second ordre dont le champ de charge d'espace complexe est solution. L'équation différentielle au premier ordre (annexe 1) ne peut pas être utilisée car elle suppose qu'il y a toujours équilibre entre le réseau d'ions et le réseau électronique. L'équation (8) peut être mise sous la forme :

$$\frac{\partial^2 E_I}{\partial t^2} + \left(\frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_b}\right) \frac{\partial E_I}{\partial t} + \frac{1}{\tau_a} \frac{1}{\tau_b} \left(E_I - E_{sc}\right) = 0$$
(18)

où E_{sc} est le champ de charge d'espace à l'état stationnaire lorsqu'un champ constant est appliqué.

 τ_a , τ_b sont deux constantes complexes. En tenant compte des valeurs des paramètres de

nos cristaux et sous faible ilumination, nous négligeons $\frac{1}{\tau_{I}}$ et $\frac{1}{\tau_{DI}}$ devant $\frac{1}{\tau_{D}}$.

 τ_a et τ_b se déduisent alors de :

$$\frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_b} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{DI}} + \frac{1}{\tau_D} - j \ \mu E_0 K$$
(19)

et:

$$\frac{1}{\tau_{b}} = \frac{1}{\tau_{DI}} \left(\frac{K_{diff}}{K_{Debye}} \right)^{2} \frac{\left(K^{2} + K_{Debye}^{2} \right) \left(K^{2} + K_{diff}^{2} \right) + \left(K E_{0} \frac{e}{k_{B}T} \right)^{2}}{\left(K^{2} + K_{diff}^{2} \right)^{2} + \left(K E_{0} \frac{e}{k_{B}T} \right)^{2}} + \frac{1}{j\tau_{DI}} \left(\frac{K_{diff}}{K_{Debye}} \right)^{2} \frac{\left(K^{2} - K_{Debye}^{2} \right) \left(K E_{0} \frac{e}{k_{B}T} \right)}{\left(K^{2} + K_{diff}^{2} \right)^{2} + \left(K E_{0} \frac{e}{k_{B}T} \right)^{2}} \tag{20}$$

avec :

$$K_{diff} = \sqrt{\frac{e}{\mu \tau_R k_B T}} = K \sqrt{\frac{\tau_D}{\tau_R}}$$
: inverse de la longueur de diffusion des électrons dans

la bande de conduction.

$$K_{Debye} = \sqrt{\frac{N_A e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon^s k_B T}} = K \sqrt{\frac{\tau_I \cdot \tau_D}{\tau_R \cdot \tau_{DI}}} : \text{ inverse de la longueur d'écran de Debye.}$$

Sous faible illumination de telle sorte que $|\tau_b| >> |\tau_a|$, on a :

$$\frac{l}{\tau_a} = -j \ 2\pi \ \upsilon_E + \frac{l}{\tau_R} + \frac{l}{\tau_{DI}} + \frac{l}{\tau_D}$$
(21)

F.4

avec:
$$\frac{l}{v_E} = \frac{\Lambda}{\mu \ \overline{E}_a} = 2\pi \ \tau_E$$

Dans ce cas, la constante de temps du réseau photoréfractif est définie par :

$$Re\left(\frac{1}{\tau_b}\right) = \frac{1}{\tau_g} \quad . \tag{22}$$

Les expressions (19) et (20) donnant τ_a et τ_b ne sont valables que sur des intervalles de temps où le champ appliqué E_o est constant. Dans le cas contraire, les expressions de τ_a et τ_b s'écrivent en fonction de $\partial E_o/\partial t$ ce que beaucoup d'auteurs négligent [17], [21]. Sur chaque durée T_o et T_1 d'un champ pulsé périodique, le champ appliqué est égal à 0 ou $\pm \overline{E}_o$ si bien que les expressions (19) et (20) sont vraies et la cinétique du phénomène est :

$$E_{I}(t) = A \ exp\left(-\frac{t}{\tau_{a}}\right) + B \ exp\left(-\frac{t}{\tau_{b}}\right) + E_{sc}$$
(23)

où A et B sont deux constantes complexes d'intégration et où les valeurs de τ_{a} , τ_{b} et E_{sc} dépendent de la valeur du champ dans l'intervalle de temps que nous considérons.

Pour déterminer A et B, nous écrivons deux équations de continuité entre les intervalles de temps T_0 et T_1 . Lors du basculement du champ, deux grandeurs demeurent inchangées : le réseau des porteurs de charge ou réseau électronique E^{ee} et le réseau ionique inscrit dans les pièges profonds : $E^{ion} = E_1 - E^{ee}$.

Avec la loi de Poisson (5),

$$E^{\ell} = j \frac{n_{I} \ e}{\varepsilon_{0} \ \varepsilon^{s} K}$$
(24)

où n_i est donnée par l'équation (7).

Alors en combinant (7), (23) et (24) :

$$E^{et} = R \left[A \left(I - \frac{\tau_{DI}}{\tau_a} \right) exp \left(\frac{-t}{\tau_a} \right) + B \left(I - \frac{\tau_{DI}}{\tau_b} \right) exp \left(\frac{-t}{\tau_b} \right) + E_{sc} \right]$$
(25)

avec :

$$R = -\left(\frac{\tau_{DI}}{\tau_{D}} + j\frac{\tau_{DI}}{\tau_{E}}\right)^{-1}$$
(26)

qui est le rapport du champ électronique sur le champ total à l'état stationnaire.

La différence entre E_l et E^{el} nous fournit l'expression de E^{ion} :

$$E^{ion} = A \left[I - R \left(I - \frac{\tau_{DI}}{\tau_a} \right) \right] exp \left(\frac{-t}{\tau_a} \right) + B \left[I - R \left(I - \frac{\tau_{DI}}{\tau_b} \right) \right] exp \left(\frac{-t}{\tau_b} \right) + E_{sc}(I - R).$$
(27)

Nous pouvons maintenant calculer aussi bien l'établissement de E_i que sa valeur à l'état stationnaire. L'étude de la cinétique se fait par récurrence en partant des conditions initiales $E^{et} = E_i = 0$ et pas à pas nous déterminons les valeurs A^i et B^i prises par A et B sur chaque intervalle T_i avec les équations (25), (27) et les conditions de continuité. Les temps de calcul sont longs car T_0 et T_1 sont beaucoup plus courts que la constante de temps de construction du réseau photoréfractif ce qui nécessite un grand nombre d'itérations pour atteindre l'état stationnaire.

L'état stationnaire peut se calculer plus rapidement en écrivant une relation de périodicité entre les dates t = 0 et $t = 2 T_0 + 2 T_i$ (période du champ électrique). Nous obtenons ainsi un système linéaire de huit équations à quatre inconnues complexes A^i et B^i que nous résolvons numériquement.

Les résultats des programmes de calcul ont été vérifiés en simulant un champ continu (cas particulier d'un champ pulsé asymétrique où $T_0 = 0$) et un champ carré (champ symétrique avec $T_0 = 0, T_1 = T$). Pour ces deux derniers types de champs, les calculs développés dans la littérature sont exacts, la seule hypothèse étant celle de l'enveloppe lentement variable

 $\left(\frac{\partial^2 E_i}{\partial t^2}=0\right)$. Dans les deux cas, les résultats concordent avec les courbes tracées à partir des

relations données en annexe 1.

Nous vérifions que la valeur du gain à l'état stationnaire donnée par l'étude de cinétique est égale à celle obtenue avec la méthode précédente, ceci pour un champ pulsé asymétrique. Pour un champ pulsé symétrique, le calcul donnant l'état stationnaire diverge pour des valeurs de T_0 plus petites que celles mentionnées. Néanmoins, avec de telles valeurs, l'étude de la cinétique montre que le gain croît sans atteindre de saturation. Expérimentalement, ceci n'est pas possible car dès que le gain croît, le taux de modulation m ne devient plus négligeable comme dans notre développement théorique.

26

Enfin, la résolution de l'équation différentielle au premier ordre pour le champ de charge d'espace effectuée en intégrant sur une période de champ pulsé (symétrique ou asymétrique) ne permet pas de mettre en évidence l'existence du pic de résonance ni son déplacement en fonction de T_1 .



Fig. 6 : Gain théorique en fonction du pas du réseau dans un cristal de BSO. La droite 1 est la limite des techniques classiques d'amplification ($\overline{E}_0 >> E_q$). La courbe 2 est obtenue en simulant un champ pulsé symétrique ($\overline{E}_0 = 500$ V/cm, $T_I = 8 \mu s$, $T_0 = 1,877 \mu s$), la courbe 3 en simulant un autre champ pulsé symétrique ($\overline{E}_0 = 500$ V/cm, $T_I = 4 \mu s$, $T_0 = 7,17 \mu s$). La courbe 4 est le gain sous un champ carré $\overline{E}_0 = 10$ kV/cm de fréquence 2 kHz. Sur la figure 6 sont tracées les courbes de gain avec les paramètres d'un cristal de BSO donnés en annexe 2. La droite 1 représente le gain maximum atteint avec les techniques classiques d'amplification et avec de très grands champs $E_0 >> E_q$. Les courbes 2 et 3 s'obtiennent en simulant un champ pulsé symétrique $\overline{E}_0 = 500$ V/cm, $T_1 = 8 \ \mu s$, $T_0 = 1,877 \ \mu s$ pour la première, $T_1 = 4 \ \mu s$, $T_0 = 7,17 \ \mu s$ pour la seconde. Changer T_1 déplace bien la position Λ du pic de résonance conformément à la relation (15) et l'existence du pic est bien soumise à la loi (16).

A la résonance, le gain dépasse le maximum atteint avec les autres techniques : pour $\Lambda_r = 50 \ \mu\text{m}$, le gain est supérieur à 200 cm⁻¹ alors que les autres méthodes donnent au maximum et avec de très grands champs à ce même pas, $G = 80 \text{ cm}^{-1}$. A titre de comparaison, une courbe de gain théorique sous champ carré (courbe 4) mais d'amplitude vingt fois plus élevée (10 kV/cm) donne un gain du même ordre de grandeur et à 30 μ m un gain inférieur à 50 cm⁻¹.

Avec les paramètres du BGO:Fe, dopé 50 ppm (annexe 2), sous un champ pulsé symétrique $\overline{E}_0 = 7.5 \text{ kV/cm}$, $T_0 = 1,051 \text{ ms}$ et $T_1 = 50 \text{ }\mu\text{s}$, la résonance se situe à $\Lambda_r = 53 \text{ }\mu\text{m}$, le gain est alors de 42 cm⁻¹ (figure 7). Avec ce cristal et dans les conditions choisies, $\tau_E = 1 \text{ ms}$, $\tau_R = 1,2 \text{ ms}$, $\tau_D = 3 \text{ ms}$, $\tau_{DI} = 5,7 \text{ ms}$: la relation (16) est vérifiée. A ce pas et pour cette amplitude de champ, le gain limité par la densité de pièges mN_A est 11 cm⁻¹. L'emploi de champ pulsé symétrique permet donc de dépasser cette limite.

Toujours avec les paramètres du BGO:Fe, avec un champ pulsé asymétrique d'amplitude $\overline{E}_0 = 7.5 \text{ kV/cm}$, $T_0 = 100 \text{ }\mu\text{s}$, $T_i = 50 \text{ }\mu\text{s}$ nous prédisons la position du pic de résonance pour $\Lambda_r = 33.3 \text{ }\mu\text{m}$ et $G = 6.3 \text{ cm}^{-1}$. Avec $T_0 = 90 \text{ }\mu\text{s}$, $T_i = 60 \text{ }\mu\text{s}$, nous calculons $\Lambda_r = 40 \text{ }\mu\text{m}$ et $G = 7 \text{ cm}^{-1}$ (figure 8).

Les valeurs des gains sont inférieures à celles obtenues avec des champs pulsés symétriques : les simulations portant sur l'étude de l'amplification sous champs pulsés asymétriques nous ont montré que cette technique est limitée par E_q .



Fig. 7 : La courbe représente le gain théorique en fontion du pas dans un cristal de BGO:Fe soumis à un champ pulsé symétrique $\overline{E}_0 = 7.5$ kV/cm, $T_0 = 1.051$ ms, $T_1 = 50$ µs. La droite donne le gain maximum des techniques usuelles d'amplification (avec $\overline{E}_0 \gg E_q$).



Fig. 8 : Gain théorique par mélange à deux ondes dans un cristal de BGO:Fe auquel est appliqué un champ pulsé asymétrique $\overline{E}_0 = 7.5$ kV/cm, $T_0 = 100$ µs, $T_I = 50$ µs (courbe 1), et avec $T_0 = 90$ µs, $T_I = 60$ µs (courbe 2).

c) Etude expérimentale.

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé est identique à celui décrit au paragraphe **3**.1.b. Maintenant, un champ pulsé est appliqué au même échantillon de BGO:Fe choisi en raison de ses caractéristiques. Les intensités incidentes de la pompe et de la sonde sont $I_p = 5,26 \text{ mW/cm}^2$ et $I_s = 36,8 \mu$ W/cm². Les valeurs des paramètres expérimentaux sont celles qui ont été prises pour les simulations précédentes.

Un champ pulsé périodique asymétrique définit par $\overline{E}_0 = 7.5$ kV/cm, $T_0 = 100 \,\mu$ s, $T_I = 50 \,\mu$ s donne la courbe d'amplification en trait plein (figure 9). Nous voyons un pic de résonance à $A_r = 30 \,\mu$ m (ce qui est très proche de la valeur prédite) pour lequel $G = 1,58 \,\mathrm{cm}^{-1}$ $(\Gamma = 3,3)$. Avec $T_0 = 90 \,\mu$ s, $T_I = 60 \,\mu$ s et toujours $\overline{E}_0 = 7,5 \,\mathrm{kV/cm}$, nous obtenons la courbe d'amplification en pointillés figure 9.



Fig. 9 : Facteur d'amplification Γ expérimental en fonction de l'angle θ pompe-sonde. Le champ appliqué est pulsé asymétrique ($\overline{E}_0 = 7.5$ kV/cm). Pour la courbe en trait plein, $T_0 = 100 \ \mu$ s, $T_1 = 50 \ \mu$ s, pour la courbe en pointillés, $T_0 = 90 \ \mu$ s, $T_1 = 60 \ \mu$ s. Comme nous l'avions prévu, réduire T_1 déplace le pic de résonance vers des pas plus petits. Ici pour $A_r = 37 \ \mu\text{m}$, la valeur théorique est de 40 μm . Cependant le gain maximum (1,5 cm⁻¹) est inférieur à celui prédit (5,3 cm⁻¹). Les raisons suivantes peuvent expliquer cette différence :

 le temps de montée de notre alimentation (figure 10) est 10 μs ce qui n'est pas négligeable par rapport à T₁ (50 μs), si bien que la forme temporelle du champ appliqué diffère du cas idéal (figure 5).





 la fréquence spatiale de résonance dépend de la valeur de la mobilité qui peut fluctuer de 40 % d'un point à un autre dans le cristal [22], il est ainsi impossible de satisfaire la condition (15) simultanément en tout point du cristal. ▷ le couplage entre les différentes ondes planes formant le faisceau sonde convergent et la pompe abaisse la valeur du maximum du gain par rapport à celle calculée pour deux ondes planes, ceci est équivalent à un phénomène de couplage à N ondes [23].

Pour cette dernière raison, nous avons ôté la lentille cylindrique afin de mesurer le gain lorsqu'un seul pas de réseau photoinduit est présent. A l'aide d'un champ pulsé symétrique $(\overline{E}_o = 7,5 \text{ kV/cm})$ et en optimisant l'allure du champ, nous avons obtenu un facteur d'amplification $\Gamma = 1000$ ($G = 8,8 \text{ cm}^{-1}$). Cette valeur correspond à une augmentation significative du gain comparé au facteur d'amplification de 5 ($G = 2 \text{ cm}^{-1}$) obtenu sur le même échantillon avec un champ carré ou $\Gamma = 65$ ($G = 5,4 \text{ cm}^{-1}$) sur un pic de résonance en champ sinusoïdal avec pour ces deux derniers champs $\overline{E}_o = 7,5 \text{ kV/cm}$.

d) Conclusion.

En conclusion, nous avons démontré théoriquement que l'emploi de champs pulsés symétriques permet de dépasser la valeur $m E_q$ du champ de charge d'espace. Le gain étant proportionnel à $m E_q/m$ (équation 10), pour de faibles taux de modulation, nous obtenons expérimentalement des gains plus élevés qu'avec les méthodes classiques [15-19] ou même sur une résonance d'un champ sinusoïdal [20].

De plus, l'étude théorique et expérimentale nous a permis de valider l'approche décrivant le mécanisme physique découlant de l'application de champs pulsés symétriques ou asymétriques : les relations (15) (16) (17) permettant de prévoir les positions des pics de résonance et leurs conditions d'existence sont vérifiées.

Cette technique d'amplification présente une résonance en fonction du pas du réseau induit et est donc mal appropriée pour l'amplification de toutes les fréquences spatiales présentes dans une image. Elle peut par contre servir à l'amplification de faisceaux. Le cristal amplificateur utilisé pouvant être comme lors de notre étude un échantillon de BGO:Fe ou un échantillon de BTO dont les caractéristiques sont similaires (cf. annexe 2). Les champs pulsés asymétriques conduisent à des gains moins importants mais présentent l'avantage de pouvoir s'appliquer à des matériaux ferroélectriques car ils évitent les problèmes de renversement de polarisation des domaines cristallins lorsque le champ alternatif change de signe, comme c'est le cas des champs carrés ou sinusoïdaux. Par exemple, les caractéristiques photoréfractives du niobate de potassium (KNbO₃) réduit données en annexe 2 sont comparables à celles de notre BGO:Fe. Par conséquent, la résonance devrait être facilement observée dans de tels cristaux.