



HAL
open science

Non-linearites optiques resultant de l'excitation du defaut natif el2 dans GaAs.

Laurent Disdier

► **To cite this version:**

Laurent Disdier. Non-linearites optiques resultant de l'excitation du defaut natif el2 dans GaAs.. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1990. Français. NNT: . pastel-00713982

HAL Id: pastel-00713982

<https://pastel.hal.science/pastel-00713982>

Submitted on 3 Jul 2012

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

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

ORSAY
n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée

Pour obtenir

Le TITRE de DOCTEUR EN SCIENCE

PAR

Laurent DISDIER

SUJET : NON-LINEARITES OPTIQUES RESULTANT DE L'EXCITATION DU DEFAUT
NATIF EL2 DANS GaAs

soutenue le jeudi 15 novembre 1990 devant la Commission d'examen

MM. C. IMBERT Président

J.L. OUDAR

J.P. HUIGNARD

M. PUGNET

G. ROOSEN

DISDIER

Laurent

Sujet : Non-linéarités optiques résultant de l'excitation du défaut natif EL2 dans GaAs.

Résumé :

Les non-linéarités de l'arseniure de gallium (GaAs) sont étudiées à la longueur d'onde 1,06 micron en régime nanoseconde et picoseconde.

En régime nanoseconde, les porteurs libres (électrons et trous) sont créés par photoionisation des centres profonds EL2. Ils provoquent une variation de permittivité du milieu tandis que l'évolution des densités de centres neutres et ionisés change principalement l'absorption. L'étude de la réflectivité par une expérience de conjugaison de phase montre qu'un troisième effet doit être pris en compte pour de forte énergie, le mouvement non-linéaire des électrons. Cet effet est étudié dans un échantillon dopé n d'arseniure de gallium. Aucune amplification n'a été observée dans des expériences de mélange à deux ondes.

En régime picoseconde, la variation de permittivité induite par absorption à deux photons prédomine sur les effets présentés précédemment. Nous montrons que les nonlinéarités sont suffisamment importantes pour obtenir de forte amplification (fois 25) dans un mélange à deux ondes.

Mots Clés :

Optique non-linéaire

Semiconducteurs

Conjugaison de phase

Centres profonds

Transfert d'énergie

Abstract

The optical nonlinearities of semi insulating gallium arsenide (GaAs) are studied at a wavelength of 1.06 microns in both the nanosecond and picosecond time scales.

In the first case, the photocarriers (holes and electrons) are generated mostly by photoionization of the deep level EL2. They change the permittivity of the medium while the modification in the densities of the neutral and ionized defects changes mainly its absorption. The study of the reflectivity in a phase conjugation experiment shows that a third effect, the nonlinear motion of electrons has to be taken into account at high fluences. This effect is studied in a n-doped gallium arsenide cristal. No noticeable gain is observed in two wave mixing experiments.

In the second case, the variation of the permittivity induced by the two-photon absorption is stronger than any of those previously described effect. We show that the effect is large enough to allow a high amplification (25 times) in a two wave mixing experiment.

Je remercie Monsieur le Professeur C. Imbert de m'avoir accueilli à l'institut d'optique et de présider mon jury de thèse.

Toute ma reconnaissance à Messieurs J.P. Huignard J.L. Oudar qui ont bien voulu accepter d'être rapporteur de ce travail et mes remerciements à Monsieur M. Pugnet pour sa participation au jury.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur G. Roosen qui m'a dirigé tout au long de mon travail et qui m'a prodigué les nombreux conseils dont j'ai eu besoin.

Tous mes remerciements à Messieurs G. Pauliat et P.U. Halter qui m'ont beaucoup aidé et soutenu au cours de ce travail.

Je remercie également tous les membres de notre équipe qui dans une ambiance chaleureuse ont su m'apporter beaucoup de soutien.

Un grand merci aux membres de l'atelier d'optique de l'IOTA qui ont poli nos cristaux après avoir mis au point la technique de polissage de GaAs.

Je remercie Messieurs A. Villing et A. Aide qui ont conçu et réalisé un système d'acquisition rapide de données.

Que le L.C.R. de Thomson soit ici remercié pour l'intérêt et le soutien qu'il a apporté à ce travail.

Que Mademoiselle P. Hubert et Madame Delmotte soient ici remerciées pour la frappe et le tirage de ce manuscrit.

Introduction.....	1
I - Non-linéarités optiques dans les semiconducteurs massifs.	4
I.1 Présentation des mécanismes	4
I.2 Mécanismes non résonnants.....	5
a) Réponse non-linéaire des électrons liés.	5
b) Réponse non-linéaire des électrons libres.....	6
I.3 Mécanismes résonnants.....	10
II - Cinétique des porteurs libres en régime nanoseconde.....	15
II.1 Position du problème	15
a) Présentation de GaAs semi isolant.....	15
b) Génération du plasma électrons-trous : équations de base.....	18
c) Détermination de quelques paramètres de nos échantillons	23
d) Ordre de grandeur	26
II.2 Modélisation analytique.....	27
a) Solutions analytiques.....	27
b) Cas des hautes énergies.....	30
c) Cas des basses énergies.....	33
d) Discussion	40
II.3 Simulations informatiques	41
a) Méthode de résolution.....	41
b) Comparaison des résultats numériques et analytiques.	44
II.4 Discussion.....	55
III - Approche théorique de la conjugaison de phase.....	60
III.1 Position du problème :.....	60
a) Choix des configurations.....	60
b) Formalisation	62

III.2	Conjugaison de phase par l'avant.....	64
	a) Diffraction sur un réseau mince.....	64
	b) Mélange d'ondes dans un milieu mince.....	68
	α) Influence de l'absorption.....	70
	β) Influence du désaccord à Bragg.....	72
III.3	Conjugaison de phase par l'arrière.....	76
	a) Notations et hypothèses.....	76
	b) Cas des non-linéarités dues à la création de porteurs.....	79
	α) Influence du rapport entre les deux pompes.....	81
	β) Influence de l'absorption	84
	c) Cas des non-linéarités dues au mouvement non-linéaire des porteurs.....	86
III.4	Discussion	90
IV -	Etude expérimentale	92
IV.1	Montages expérimentaux.....	92
IV.2	Résultats expérimentaux dans GaAs semi-isolant.....	99
	a) Absorption non-linéaire	99
	α) Conjugaison de phase vers l'avant.....	103
	β) Conjugaison de phase par l'arrière.....	108
	c) Discussion.	113
IV.3	Résultats expérimentaux dans GaAs dopé n.	114
IV.4	Saturation de la réflectivité dans GaAs EL2.	118
IV.5	Discussion	126
V-	Etude du transfert d'énergie dans GaAs semi-isolant.....	128
V.1	Amplification par mélange à 2 ondes en milieu épais : approche générale.....	129
	a) Hypothèses.....	129

b) Théorie du transfert d'énergie.....	131
α) transfert d'énergie d'ordre 1.....	133
β) transfert d'énergie d'ordre 2.....	136
c) Discussion	139
V.2 Amplification par mélange à 2 ondes dans GaAs	140
a) Régime nanoseconde.....	140
b) Cinétique des porteurs libres en régime picoseconde....	142
c) Etude expérimentale en picoseconde.....	148
α) Montage expérimental.....	148
β) Résultats expérimentaux	150
Mise en évidence de la non-linéarité.....	150
Transfert d'énergie.....	151
d) Simulations du couplage d'onde.....	162
V.3 Discussion.....	166
Conclusion.....	168
Annexe 1	170
Bibliographie	172

Introduction

Le développement des sources lasers puissantes a permis d'entreprendre l'étude approfondie des non-linéarités optiques, c'est-à-dire des modifications de l'indice optique ou de l'absorption d'un matériau induites par une onde lumineuse. Ce nouveau champ d'investigation permet d'analyser les propriétés physiques de cristaux tels que les semiconducteurs par exemple, et de déterminer certains paramètres caractéristiques des interactions lumière-matière. Outre l'accès à des données physiques, les non-linéarités optiques offrent des perspectives intéressantes d'applications, telles que la conjugaison de phase, l'amplification cohérente de faisceaux lumineux, la bistabilité optique, etc.

Dans ce travail, nous avons étudié les non-linéarités optiques dans l'arseniure de gallium (GaAs) semi isolant. Les non-linéarités optiques mises en évidence ont été observées pour une longueur d'onde excitatrice de un micromètre avec des impulsions de durées nanoseconde et picoseconde. Dans ces deux régimes, les variations de permittivité sont dues à la création d'un plasma électrons-trous, soit à partir du défaut natif EL2 en régime nanoseconde, soit à partir d'une transition bande à bande par absorption à deux photons en régime picoseconde. Elles seront analysées par une expérience de type mélange à quatre ondes (conjugaison de phase) en régime nanoseconde et par une expérience de type mélange à deux ondes (transfert d'énergie) en régime picoseconde.

Ce type de non-linéarités se distingue de l'effet photoréfractif précédemment étudié dans ces cristaux de GaAs au laboratoire. En effet, la variation de permittivité due à un plasma de porteurs photocréés est d'autant plus forte que la diffusion est négligeable. Le temps de construction de la non-linéarité dépend alors principalement de l'énergie absorbée dans

l'échantillon avant que les processus de disparition (diffusion et recombinaison) du réseau électrons-trous n'interviennent.

Dans une première partie, nous présentons les principaux mécanismes conduisant à une variation de permittivité dans les semiconducteurs massifs à température ambiante. Nous distinguons deux cas: celui où la non-linéarité est due à la création de porteurs et celui où elle est due à des électrons libres préexistant dans la bande de conduction.

Nous analysons ensuite la création et la cinétique du plasma électrons-trous dans GaAs semi isolant en régime nanoseconde. Commenant par négliger les mécanismes de diffusion et recombinaison, nous développons un modèle analytique qui permet de comprendre dans ses principes l'évolution des porteurs photocréés et des centres profonds EL2. Puis nous résolvons numériquement les équations générales d'évolution du plasma électrons-trous en prenant en compte tous les processus. Le modèle analytique permet d'interpréter les résultats numériques et de dégager les phénomènes prépondérants durant l'illumination. La variation d'indice induite par la création de porteurs libres est alors déduite de nos simulations numériques.

Dans la troisième partie, nous développons un calcul dit d'ondes couplées permettant de prédire l'intensité du signal conjugué lorsque le plasma électrons-trous est créé à partir des centres profonds. Le modèle décrit les deux types de mélange à quatre ondes que nous avons étudiés, à savoir la conjugaison de phase par l'avant et par l'arrière. Il inclut l'influence de l'absorption, et du désaccord à l'angle de Bragg pour le montage de conjugaison de phase par l'avant.

Nous présentons ensuite les résultats expérimentaux obtenus dans GaAs semi isolant en régime nanoseconde. Nous mesurons d'abord une variation de transmission de l'échantillon en fonction de l'énergie incidente. A basse énergie, l'évolution relative des centres profonds, neutres et ionisés,

conduit à une augmentation de transmission tandis qu'à haute énergie, ce phénomène est masqué par l'absorption des porteurs libres et l'absorption à deux photons. Nous avons ensuite réalisé une expérience de mélange à quatre ondes dans deux échantillons d'épaisseurs différentes et nous avons observé et mesuré le conjugué en phase d'une onde signal. La réflectivité mesurée, de l'ordre de un pour cent dans l'échantillon mince et de vingt pour cent dans l'échantillon épais, est en accord avec celle calculée par notre modèle théorique basé sur la génération de porteurs tant que l'énergie n'est pas trop importante. Pour expliquer le comportement observé de la réflectivité à haute énergie, nous avons été amené à ajouter un autre effet, le mouvement non-linéaire des électrons photocréés dans la bande de conduction. Ce mécanisme a été étudié expérimentalement dans un échantillon de GaAs dopé n où il est prépondérant, permettant de déterminer sa contribution aux non-linéarités dans GaAs semi-isolant.

La dernière partie concerne les études réalisées en régime picoseconde. L'absorption à deux photons permet de créer une grande densité de porteurs, engendrant de fortes non-linéarités. Un échange d'énergie important se produit alors entre les deux ondes se propageant dans le cristal. Nous présentons tout d'abord un modèle analytique permettant de comprendre l'origine d'un tel transfert d'énergie. Il est causé par le déphasage entre le réseau d'indice et le réseau d'illumination qui se construit au cours de la propagation des ondes dans l'échantillon. Nous avons montré ensuite expérimentalement que l'on obtient une amplification notable sur une onde signal, d'un facteur dix environ. Cette amplification peut même être plus que doublée lorsque l'onde signal est en avance de quelques picosecondes sur l'onde pompe.

Chapitre I

Non-linéarités optiques dans les semiconducteurs massifs

I - Non-linéarités optiques dans les semiconducteurs massifs.

Nous nous proposons dans ce chapitre d'expliciter certains mécanismes physiques engendrant des non-linéarités optiques.

I.1 Présentation des mécanismes

Les mécanismes non-linéaires dans les semiconducteurs ont suscité de nombreuses études dès l'apparition de sources lasers puissantes (1-3). Une grande variété de phénomènes non-linéaires a pu être observée, selon la longueur d'onde d'excitation ou bien encore selon le dopage du semiconducteur.

Les mécanismes engendrant ces non-linéarités sont caractérisés par une susceptibilité χ . Pour notre part, nous allons nous intéresser uniquement aux phénomènes non-linéaires d'ordre 3 dans les cristaux massifs, caractérisés par leur susceptibilité du troisième ordre $\chi^{(3)}$. La polarisation induite dans le matériau s'écrit :

$$\vec{P} = \chi^{(3)} \vec{E}^3 \quad \text{où } \vec{E} \text{ est le champ optique.}$$

On peut également définir une variation d'indice Δn à l'aide d'un coefficient non-linéaire n_2 de manière à ce que : $\Delta n = n_2 I$ où I est la puissance lumineuse par unité de surface exprimée en W/m^2 et n_2 l'indice non-linéaire. Dans la suite, I sera appelé intensité. La relation liant n_2 à $\chi^{(3)}$ exprimé en SI est alors :

$$n_2 = \frac{\chi^{(3)}}{n_b^2 c \epsilon_0}$$

où n_b est l'indice de réfraction, c la vitesse de la lumière et ϵ_0 la permittivité dans le vide. Cependant, dans la littérature, l'usage est d'exprimer $\chi^{(3)}$ en esu. La relation liant $\chi^{(3)}$ en esu à $\chi^{(3)}$ en SI est :

$$\chi^{(3)}(SI) = \frac{\chi^{(3)}(esu)}{3^4 10^{17}}$$

Il est généralement d'usage de séparer les mécanismes non-linéaires en deux grandes familles (4) :

- Les mécanismes non résonnants, dus aux mouvements des électrons libres ou liés qui ne font intervenir aucune transition entre bandes d'énergie distinctes. Ils sont caractérisés par des temps de réponse extrêmement courts, inférieurs à la picoseconde et les susceptibilités du troisième ordre associées sont généralement faibles, $\chi^{(3)} \approx 10^{-10}$ esu.
- Les mécanismes résonnants qui sont associés à des transitions réelles entre deux bandes d'énergie telles que les transitions entre la bande de valence et la bande de conduction, ou virtuelles telles que l'absorption à deux photons. Les temps de réponse associés dépendent alors généralement de l'énergie absorbée avant tout processus de recombinaison et diffusion. Ils sont typiquement de l'ordre de la nanoseconde. Les susceptibilités du troisième ordre peuvent être très élevées, et peuvent atteindre jusqu'à 10^{-1} esu(5).

Dans les deux paragraphes suivants, nous allons décrire de manière un peu plus détaillée les non-linéarités qui interviendront dans notre étude.

I.2 Mécanismes non résonnants

a) Réponse non-linéaire des électrons liés.

La non-linéarité du troisième ordre due à la réponse non-linéaire des électrons liés provient de termes anharmoniques dans l'énergie potentielle de chaque électron. Cette non-linéarité est dominante dans les semiconducteurs intrinsèques lorsque l'énergie des photons incidents ($\hbar\omega$) est bien inférieure à l'énergie de la bande interdite ($\hbar\omega_g$). La susceptibilité non-linéaire du troisième ordre s'exprime par (6) :

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega) = \frac{m_0^2 v^2}{N^4 c^6} \left(\frac{Ne^2}{m_0 \left(\omega_g^2 - \omega^2 - j\gamma\omega \right)} \right)$$

pour les milieux non centrosymétriques tels GaAs avec γ une constante de relaxation, N le nombre d'oscillateurs par unité de volume, v une constante de force anharmonique et m_0 la masse de l'électron libre.

La valeur de $\chi^{(3)}$ varie de 10^{-12} esu à 10^{-10} esu et le temps de réponse est extrêmement bref, de l'ordre "d'un cycle optique".

b) Réponse non-linéaire des électrons libres.

Ce type de non-linéarité se manifeste dans les semiconducteurs dopés n à gap direct tels que GaAs, HgCdTe, InSb,...⁽²⁾⁽⁷⁻¹⁰⁾. L'effet dominant est la dépendance non-linéaire de la vitesse des porteurs dans la bande de conduction vis à vis du moment cristallin, $\vec{p} = \hbar\vec{k}$ où \vec{k} est le vecteur d'état de l'électron. Cet effet est étudié depuis de nombreuses années ⁽²⁾⁽¹⁰⁾ et son expression théorique s'est complétée au cours des études. Nous en donnons un résumé ci-dessous.

Considérons deux ondes électromagnétiques de champs \vec{E}_1 et \vec{E}_2 interférant dans un échantillon dopé n . Nous avons:

$$\vec{E}_i = \frac{1}{2} \left[\vec{E}_i \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc \right]$$

où ω est la pulsation, \vec{k}_i le vecteur propagation, cc dénote le complexe conjugué.

Soit δW la variation d'énergie cinétique moyenne pour chaque électron, τ_{th} le temps de thermalisation, τ_m le temps de relaxation du moment, et m_n^* la masse effective des électrons au bas de la bande de conduction. On a:

$$\frac{d(\delta W)}{dt} + \frac{1}{\tau_{th}} \delta W = \frac{e(\vec{\epsilon} \cdot \vec{p})}{m_n^*} \quad \text{éq. I-1}$$

$$\frac{d\vec{p}}{dt} + \frac{1}{\tau_m} \vec{p} = e\vec{\epsilon} \quad \text{éq. I-2}$$

$$\text{avec } \vec{\epsilon} = \vec{\epsilon}_1 + \vec{\epsilon}_2$$

L'équation I-2 nous fournit la valeur de \vec{p} :

$$\vec{p} = \frac{e}{2} \left[\frac{\vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})) + \vec{E}_2 \exp(j(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r}))}{j\omega + \frac{1}{\tau_m}} + cc \right]$$

Intéressons-nous alors à la partie modulée spatialement δW_1 de l'énergie moyenne des électrons δW . On a alors :

$$\delta W_1 = \frac{e^2}{4m_n^*} \frac{2\tau_{th}}{\tau_m} \left[\frac{\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2^* \exp(-j(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}) + cc}{\omega^2 + \left(\frac{1}{\tau_m}\right)^2} \right]$$

D'autre part, d'après le modèle de Kane (11), la relation entre la masse effective et le moment cristallin est :

$$m^*(p) = m_n^* \left(1 + \frac{2p^2}{m_n^* E_G} \right) = m_n^* \left(1 + 4 \frac{\delta W}{E_G} \right)$$

où E_G est l'énergie de bande interdite ou gap.

La contribution électronique à la permittivité du matériau ϵ est alors estimée à l'aide du modèle de Drude Lorentz.

$$\epsilon = -\frac{e^2 n}{m^*(p) \omega^2} \quad \text{où } n \text{ est la densité d'électrons dans la bande de conduction.}$$

La modification de permittivité résultant de la variation de masse effective s'écrit :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{e^2 n}{\omega^2} \Delta\left(\frac{1}{m^*(p)}\right)$$

La partie modulée spatialement $\Delta\varepsilon_1$ s'écrit alors :

$$\Delta\varepsilon_1 = \frac{e^4 n}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \left[\frac{2\tau_{th}}{\tau_m} \vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2^* \exp(-j(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}) + cc \right]$$

Nous avons fait l'approximation $\omega^2 + 1/\tau_m^2 \approx \omega^2$ car τ_m est de l'ordre de 0,1 à 1 picoseconde⁽¹⁰⁾, ce qui est bien plus long qu'une période de l'onde optique à 1,06 μ m.

Ainsi, une modulation spatiale de lumière induit, via le mouvement non-linéaire des porteurs libres une variation spatiale de l'indice. La relation générale entre la variation de permittivité et la susceptibilité du 3^{ème} ordre est :

$$\Delta\varepsilon = \chi^{(3)} \vec{E}^2.$$

On en déduit la susceptibilité effective $\chi_{eff}^{(3)}$ reliée à la modulation spatiale de permittivité $\Delta\varepsilon_1$:

$$\chi_{eff}^{(3)} = \frac{e^4 n}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \frac{2\tau_{th}}{\tau_m}$$

Cette susceptibilité a la propriété d'être positive ce qui est assez rare, la plupart des $\chi^{(3)}$ d'origine électronique étant négatifs dans les semiconducteurs lorsque la fréquence d'excitation est inférieure à celle du gap. La mesure du signe de la susceptibilité permet de différencier ce mécanisme des autres⁽¹²⁾.

Un certain nombre d'approximations sont faites lors de ce calcul. On n'a en effet pas tenu compte de la répartition statistique des électrons dans la bande de conduction. En prenant, une statistique de Fermi Dirac, Wolf et Pearson ont montré ⁽²⁾ que cela introduisait un facteur correctif :

$$\frac{1 + 8E_F/5E_G}{(1 + 4E_F/E_G)^{5/2}}$$

où E_F est l'énergie de Fermi donnée par : $E_F = \frac{\hbar^2}{2m_n^*} (3\pi^2 n)^{2/3}$

Dans le cas de GaAs, et pour une densité d'électrons d'environ 10^{18} cm^{-3} ce facteur correctif est sans influence et nous l'omettrons par la suite. D'autre part, on ne tient compte dans le calcul que d'une seule bande, la bande de conduction. Ce calcul est alors justifié uniquement lorsque l'énergie des photons incidents est très inférieure à l'énergie de bande interdite. Lorsque $\hbar\omega$ devient proche de E_G , l'écart entre les $\chi^{(3)}$ mesurées et calculées selon cette approche devient important. Khan a alors suggéré⁽⁹⁾ d'introduire un

facteur ad hoc correctif $\left[\frac{E_G^2}{E_G^2 - (\hbar\omega)^2} \right]^2$ souvent utilisé dans la

littérature⁽¹⁰⁾⁽⁴⁾.

En ce qui nous concerne, nous avons préféré le facteur correctif calculé par Wherrett⁽¹³⁾ qui prend en compte les bandes de valence et une bande de conduction. Dans ces conditions, la susceptibilité du troisième ordre associée aux mouvements non-linéaires des porteurs libres s'écrit :

$$\chi_{eff}^{(3)} = \frac{e^4 n}{E_G (m_n^*)^2} \frac{2\tau_{th}}{\omega^4 \tau_m} \frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \text{ avec } \omega_g = \frac{E_G}{\hbar}.$$

A la longueur d'onde excitatrice $\lambda = 1,06\mu\text{m}$, pour une densité d'électrons libres de 10^{18} cm^{-3} , on a $\chi_{eff}^{(3)} \approx 5 \cdot 10^{-10} \text{ esu}$, soit encore $\chi^{(3)} = 6,4 \cdot 10^{-29}$ (SI) ce qui nous donne un coefficient $n_2 = 2,24 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{MW}$.

Cette non-linéarité a été observée dans une grande variété de semiconducteurs. La plupart des expériences ont été menées à l'aide de lasers CO₂ à 10,6 μm car à cette longueur d'onde il était plus aisé d'obtenir de fortes non-linéarités du fait de la dépendance en $1/\omega^4$ de $\chi^{(3)}_{\text{eff}}$. Une seule expérience, de type plasmon, avait été réalisée dans GaAs à 1,06 μm⁽¹²⁾ lorsque nous avons commencé ce travail. En étudiant la variation du pic de réflectivité plasmon sous illumination, la grandeur et le signe du coefficient non-linéaire avaient été mesurés donnant $n_2 \approx + 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{MW}$.

I.3 Mécanismes résonants.

Les semiconducteurs présentent généralement un certain nombre de niveaux discrets et de bandes d'énergie. De nombreuses transitions sont donc permises. Elles sont schématisées sur la figure I.1. Nous pouvons distinguer :

- la transition de la bande de valence à la bande de conduction (a),
- la transition interbande de valence (b),
- la transition interbande de conduction (c),
- la transition à deux photons (d),
- la transition entre les niveaux des impuretés et la bande de conduction (e),
- la transition entre la bande de valence et les niveaux des impuretés (f),
- la transition entre la bande de valence et les niveaux excitoniques (h).

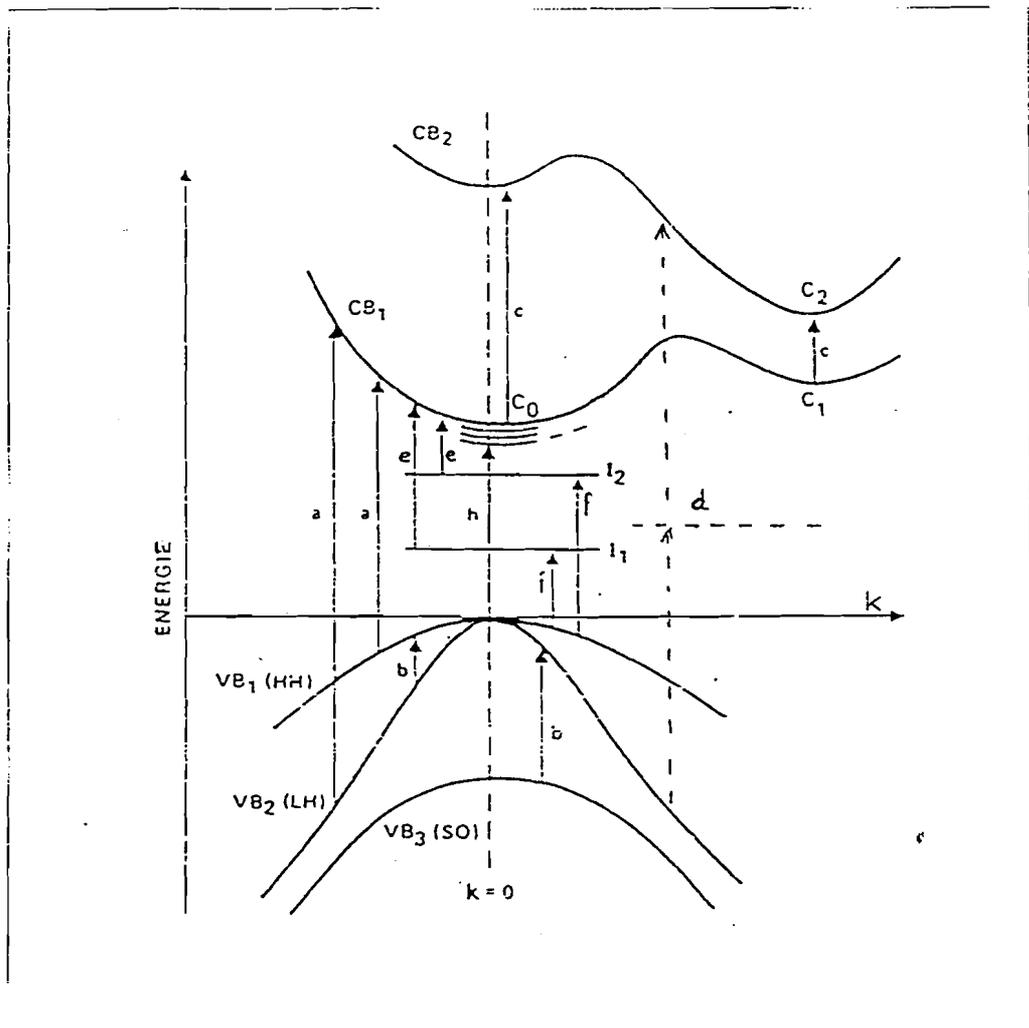


Fig I.1: Transitions possibles dans un semiconducteur à gap direct.

Sous l'effet d'une impulsion optique puissante, l'occupation par les électrons des niveaux ou des bandes d'énergies évolue. L'indice et l'absorption varient et on peut induire de cette manière des effets non-linéaires qui, comme nous le montrerons plus loin, peuvent être importants.

La création de porteurs libres induit une variation de permittivité proportionnelle à leurs concentrations. Cette variation de permittivité est indépendante du type de transition engendrant les porteurs tant que la fréquence d'excitation est très différente de la fréquence du gap.

Dans GaAs, à température ambiante et à la longueur d'excitation $\lambda = 1,06\mu\text{m}$, interviennent en régime nanoseconde les transitions à partir des niveaux d'impuretés (e) et (f). En régime picoseconde se rajoute à cela la transition à deux photons (d).

La variation de permittivité induite par les transitions (d), (e), et (f) étant analogue à celle induite par les transitions bande à bande (a) tant que $\omega \neq \omega_g$ et $2\omega \neq \omega_g$ nous allons seulement traiter par le calcul le cas des transitions de la bande de valence à la bande de conduction.

Pour cela, nous reprenons l'expression générale de Auston⁽¹⁴⁾ qui donne la variation de la permittivité due à la génération de porteurs dans un semiconducteur à gap direct à la température 0°K :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{4\pi e^2}{3\hbar^2 \omega^2} \int \frac{d^3k}{4\pi^3} \sum_i f(E_i) \nabla_k^2 E_i(k) + \frac{\hbar^2 e^2}{\pi^2 m_o^2} \sum_{i,f} \int \frac{d^3k [f(E_i) - f(E_f)] |P_{i,f}|^2}{(E_i - E_f) [\hbar^2 \omega^2 - (E_i - E_f)^2]}$$

avec m_o masse de l'électron libre, E_i énergie de la bande i , $P_{i,f} = \langle i|p|f \rangle$, $f(E_i)$ fonction de distribution de la bande i . La somme discrète s'étend sur toutes les bandes d'énergie (i) et l'intégrale sur la première zone de Brillouin.

Dans le cas où l'on ne tient compte que de deux bandes, la bande de valence et la bande de conduction et si l'on suppose les bandes paraboliques, la variation $\Delta\varepsilon$ devient alors :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{4\pi e^2}{\omega^2} \int \frac{d^3k}{4\pi^3} \left(\frac{f(E_c) - f(E_v)}{m_n^* m_p^*} \right) + \frac{8\pi\hbar^2 e^2}{m_o^2} \int \frac{d^3k}{4\pi^3} \frac{[f(E_c) - f(E_v)] |P_{v,c}|^2}{E_G [\hbar^2 \omega^2 - \hbar^2 \omega_g^2]}$$

avec $\frac{1}{m_n^*} = \frac{1}{3\hbar^2} \nabla_k^2 E_c(k)$, $\frac{1}{m_p^*} = -\frac{1}{3\hbar^2} \nabla_k^2 E_v(k)$

E_c et E_v sont les énergies des bandes de conduction de valence, $P_{v,c}$ est le paramètre de Kane donné par :

$$|P_{v,c}|^2 = \frac{1}{4} E_G m_o^2 \left[\frac{1}{m_n^*} + \frac{1}{m_p^*} \right]$$

Les densités d'électrons n et de trous p dans les bandes de conduction et de valence s'écrivent :

$$n = \int \frac{d^3k}{4\pi^3} f(E_c) \quad \text{et} \quad p = \int \frac{d^3k}{4\pi^3} f(E_v)$$

La variation de la permittivité devient alors :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{4\pi e^2}{\omega^2} \left(\frac{n}{m_n^*} + \frac{p}{m_p^*} \right) + 4\pi e^2 (n + p) \frac{1}{2(\omega^2 - \omega_g^2)} \left(\frac{1}{m_n^*} + \frac{1}{m_p^*} \right)$$

Lorsque $n = p$, la variation de permittivité devient :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{4\pi e^2 n}{\omega^2} \left(\frac{1}{m_n^*} + \frac{1}{m_p^*} \right) + \frac{4\pi e^2 n}{\omega^2 - \omega_g^2} \left(\frac{1}{m_n^*} + \frac{1}{m_p^*} \right)$$

On retrouve alors un résultat bien connu (14,15).

Ce calcul a été effectué en unité CGS. L'expression de $\Delta\varepsilon$ en unité internationale est :

$$\Delta\varepsilon = -\frac{e^2}{\omega^2} \left(\frac{n}{m_n^*} + \frac{p}{m_p^*} \right) + e^2 (n + p) \frac{1}{2(\omega^2 - \omega_g^2)} \left(\frac{1}{m_n^*} + \frac{1}{m_p^*} \right) (SI).$$

Deux contributions apparaissent dans l'expression de $\Delta\varepsilon$, dont les significations physiques sont distinctes.

Le premier terme est lié à un comportement collectif des porteurs. Il est parfois aussi appelé effet plasma car il correspond à une oscillation collective du plasma d'électrons-trous sous l'action du champ optique incident. Cette oscillation collective est caractérisée par une fréquence dite "de plasma" :

$$\omega_p^2 = e^2 \left(\frac{n}{m_n^*} + \frac{p}{m_p^*} \right)$$

Le modèle semi classique de Drüde Lorentz fournit d'ailleurs le même résultat en ce qui concerne ce premier terme (16).

Le second terme est lié uniquement aux transitions entre la bande de valence et la bande de conduction. Sa contribution est d'autant plus importante que ω est proche de ω_g ($\hbar\omega_g \approx 1,43$ eV). Les expressions précédentes montrent que la contribution du second terme est importante à 0°K même lorsque la longueur d'onde excitatrice est de 1,06 μm ($\hbar\omega \approx 1,17$ eV). Ainsi que discuté en référence (5), la température a une influence importante sur ce terme de résonance; l'acuité et l'amplitude de la résonance diminuent rapidement lorsque la température augmente. Dans nos expériences conduites à 300°K et à 1,06 μm , nous pourrions négliger la contribution de cette résonance.

Chapitre II

Cinétique des porteurs libres en régime nanoseconde

II - Cinétique des porteurs libres en régime nanoseconde

Dans le chapitre précédent, nous avons exprimé la variation de permittivité en fonction des concentrations d'électrons et de trous. Nous allons maintenant étudier les mécanismes de photogénération des porteurs libres dans GaAs semi-isolant à partir des niveaux profonds en régime d'excitation nanoseconde.

II.1 Position du problème

a) Présentation de GaAs semi isolant

Le GaAs est un semiconducteur à gap direct de classe de symétrie $\bar{4}3m$. L'énergie de la bande interdite est de 1,43 eV à température ambiante. Il est rendu semi isolant, soit par l'introduction d'impuretés tel que le chrome, soit par la présence d'un défaut interne (défaut natif) nommé EL2 à température ambiante. Cette imperfection peut-être provoquée volontairement lors des conditions de croissance de l'échantillon. L'origine de ce défaut n'est pas encore complètement connue. La formation de ce défaut est attribuée à un complexe antisite d'Arsenic - interstitiel d'Arsenic⁽¹⁷⁾. Il semblerait que sa concentration soit liée à la présence d'Arsenic en site Gallium (18). Comme le montre la figure II.1(18), la concentration en EL2, de l'ordre de 10^{16} cm^{-3} , est plus importante lorsque les atomes d'Arsenic sont en surnombre dans le mélange initial d'atomes de Ga et As.

Quoiqu'il en soit, le défaut natif se comporte comme un niveau profond existant à température ambiante sous deux états de valence EL2° et EL2^{+} et se situant à 0,67 eV au-dessous de la bande de conduction.

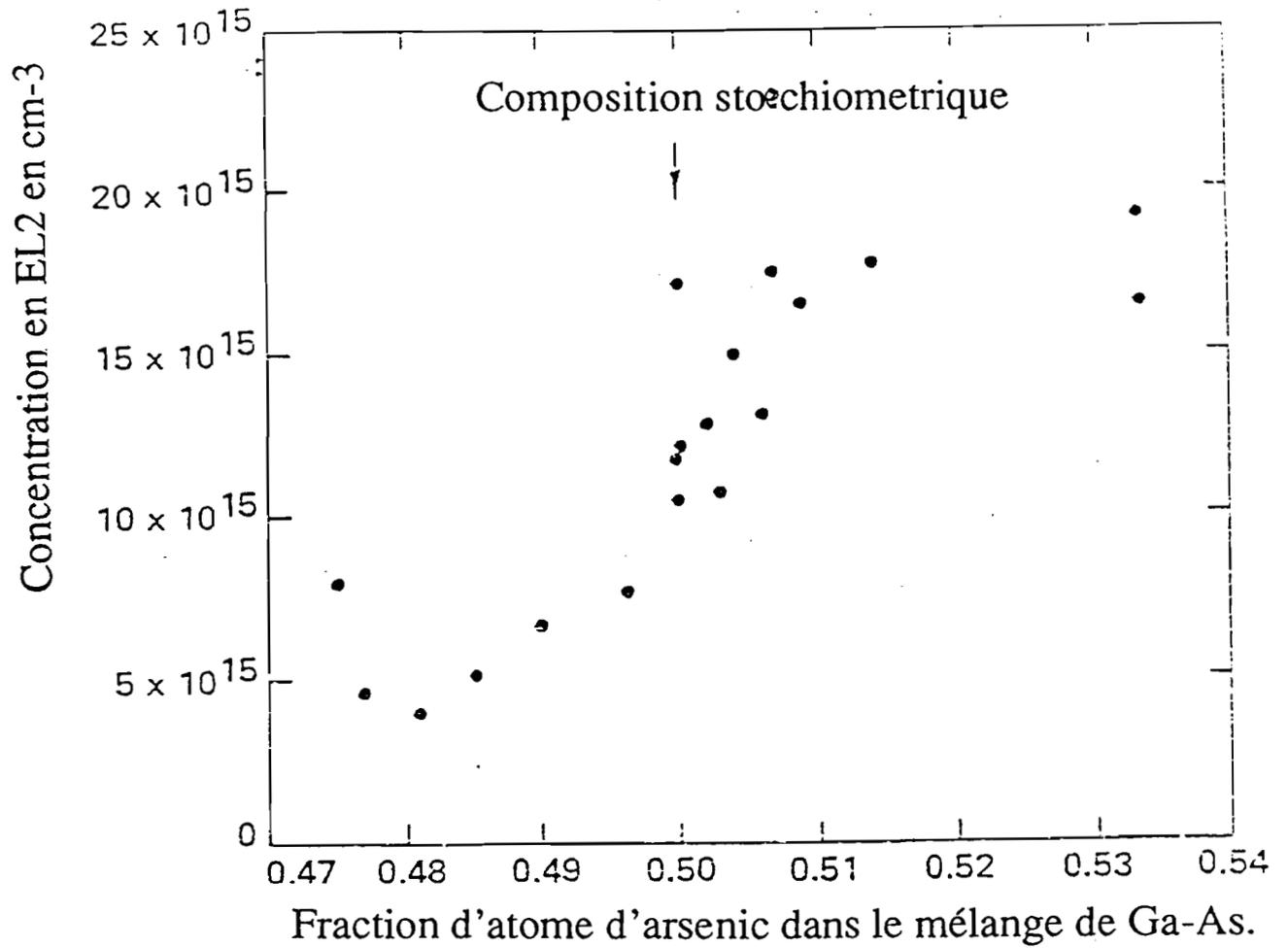


Fig II.1: influence des concentrations relatives de Ga et As sur la densité de centres EL2.

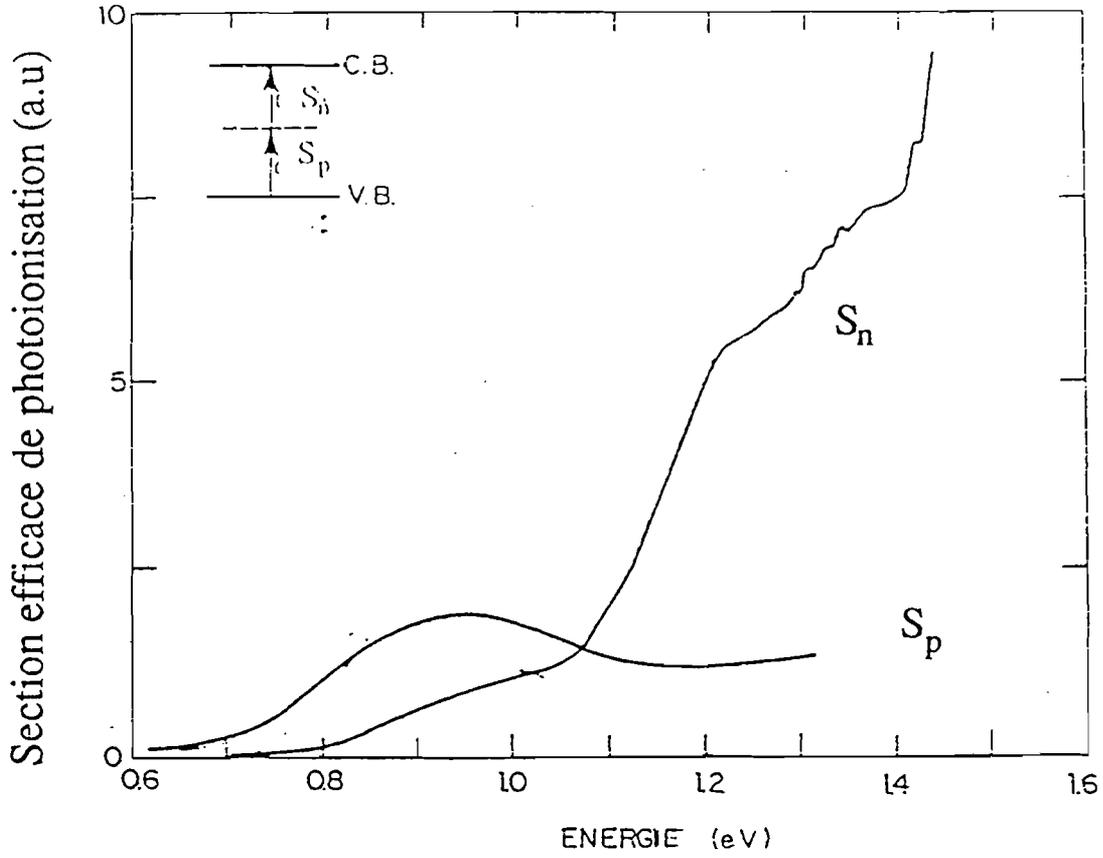
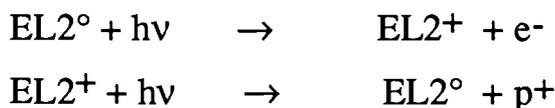


Fig II.2: spectre des sections efficaces de photoionisation du niveau EL2.

Des études spectroscopiques⁽¹⁹⁾ ont montré que ce défaut natif présentait une certaine sensibilité à l'infrarouge proche. Les spectres des sections efficaces de photoionisation S_n et S_p , correspondant à la création d'un électron et d'un trou sont présentés sur la figure II.2⁽¹⁹⁾. A la longueur d'onde $1,06\mu\text{m}$, soit $1,17\text{ eV}$ sur la figure II.2, on constate que la section efficace de photoionisation S_n devient importante (de l'ordre de 10^{16}cm^2) et bien supérieure à S_p . Le niveau EL2 apparaît donc comme assez photosensible à $1,06\ \mu\text{m}$. Sous l'action d'un photon il peut alors céder un électron dans la bande de conduction lorsqu'il est dans l'état de valence EL2° , ou bien un trou dans la bande de valence lorsqu'il est dans l'état de valence EL2^+ . Le processus est résumé ci-dessous :



Sous l'action d'un flux de photons, il est alors possible de créer un plasma d'électrons et de trous. Nous nous proposons dans ce travail d'étudier le processus de création et l'évolution d'un tel plasma et de montrer, tant théoriquement qu'expérimentalement que l'on peut engendrer à partir de ce processus des non-linéarités optiques appréciables.

b) Génération du plasma électrons-trous : équations de base

Dans ce paragraphe nous présentons les mécanismes régissant les évolutions respectives des électrons, des trous et des densités de centres ionisés et non ionisés sous l'action de l'interférence de deux impulsions optiques de durée 8 nanosecondes.

Nous considérons que l'intensité est modulée spatialement selon un axe x , direction perpendiculaire aux franges d'interférence. m étant la modulation de la figure d'intensité, \vec{k} le vecteur réseau de la figure d'illumination selon x , l'intensité s'écrit :

$$I = I_0 (1 + m \cos(kx))$$

où I_0 est la somme des intensités des ondes entrant dans le cristal.

La cinétique des porteurs photocréés à partir des défauts se situant dans la bande d'énergie interdite est gouvernée par cinq équations. Elle recoupe plusieurs phénomènes bien connus représentés sur la figure II.3 qui sont :

- L'excitation lumineuse des porteurs de charge, électrons et trous, à partir des états du défaut EL2.
- La diffusion des porteurs résultant de leur modulation spatiale et l'entraînement sous le champ de charge d'espace créé par la migration des porteurs.
- La recombinaison sur les niveaux pièges.

Dans les bandes de conduction et de valence les électrons sont en densité n et les trous en densité p . Par la suite, les indices n et p se réfèrent respectivement aux électrons et aux trous.

La photogénération des électrons et des trous dépend de plusieurs paramètres qui sont :

- les sections efficaces de photoionisation S_n et S_p ,
- les densités de centres non ionisés N_D^0 (soit EL2⁰) pour les électrons, et ionisés N_D^+ (EL2⁺) pour les trous,
- du flux de photons $I/h\nu$ où I est la puissance lumineuse par unité de surface et $h\nu$ l'énergie d'un photon à la longueur d'onde $1,06\mu\text{m}$.

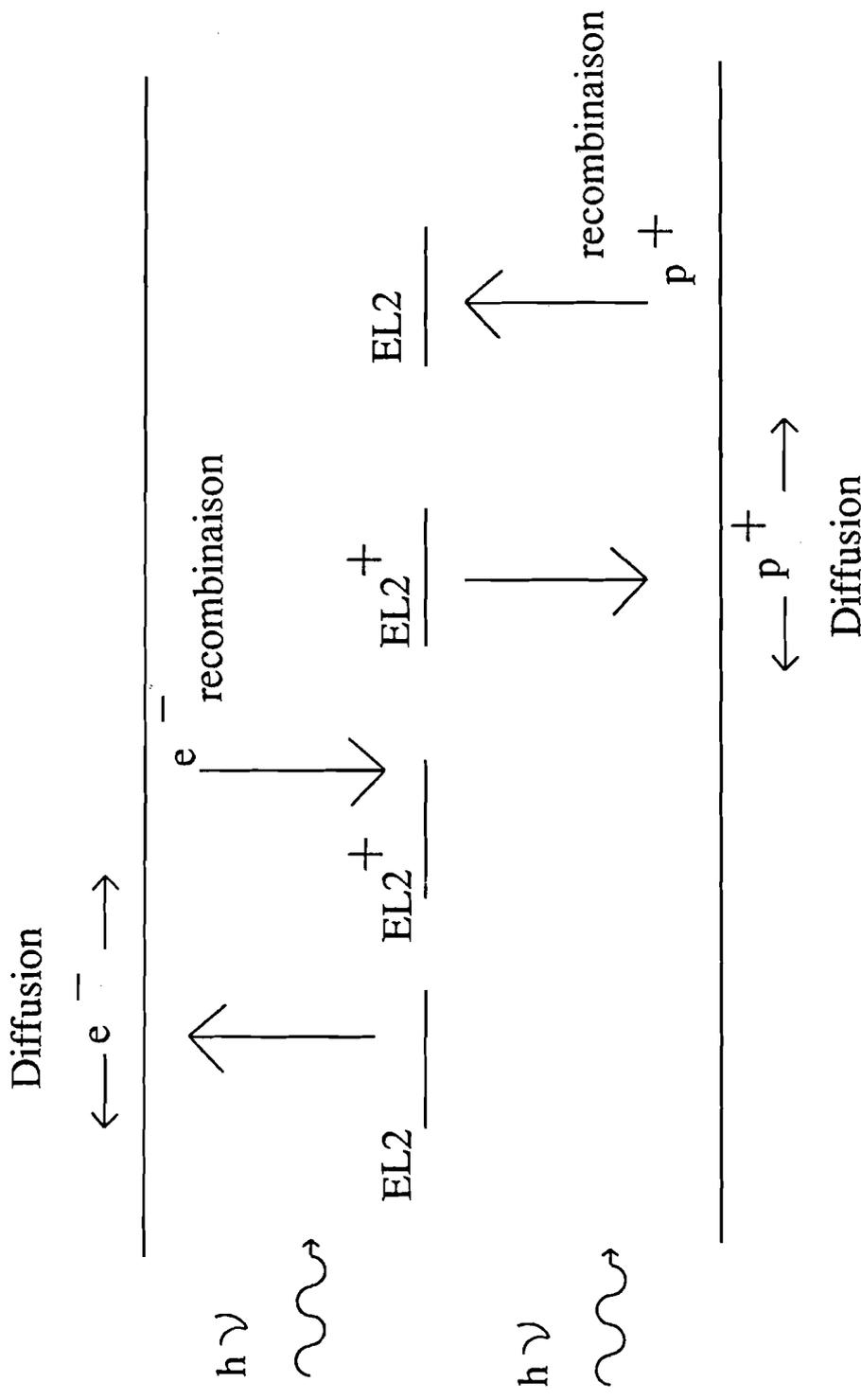


Fig II.3: mécanismes regissant la cinétique en regime nanoseconde.

La diffusion et l'entraînement sous champ sont déterminés par les mobilités μ_n et μ_p , ou bien encore par les coefficients de diffusion D_n et D_p liés aux mobilités par la relation d'Einstein $D = \mu \frac{k_B T}{e}$ où k_B est la constante de Boltzmann, T la température, e la charge en valeur absolue de l'électron. Le champ résultant de la diffusion relative des électrons et des trous sera noté \vec{E}_{sc} (champ de charge d'espace).

La recombinaison est déterminée par les sections efficaces de recombinaison γ_n et γ_p ainsi que la densité de centres non ionisés N_D^0 pour les trous et la densité de centres ionisés N_D^+ pour les électrons. Les sections efficaces de recombinaison sont reliées aux sections efficaces de capture \bar{S}_n , \bar{S}_p et aux vitesses moyennes d'agitation thermique V_n^{th} , V_p^{th} par : $\gamma_{n,p} = V_{n,p}^{th} \bar{S}_{n,p}$. Les durées de vie des porteurs photoexcités sont données par :

$$\tau_{Rn} = \frac{1}{\gamma_n N_D^+} \quad \text{et} \quad \tau_{Rp} = \frac{1}{\gamma_p N_D^0}$$

La cinétique des électrons et des trous est gouvernée par cinq équations

:

L'équation de photogénération des électrons est :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{S_n I N_D^0}{h\nu} - \gamma_n n N_D^+ + D_n \Delta n - \mu_n \operatorname{div}(n \vec{E}_{sc}) \quad \text{éq. II-1}$$

L'équation de photogénération des trous est :

$$\frac{\partial p}{\partial t} = \frac{S_p I N_D^+}{h\nu} - \gamma_p p N_D^0 + D_p \Delta p + \mu_p \operatorname{div}(p \vec{E}_{sc}) \quad \text{éq. II-2}$$

L'équation de conservation de la charge totale :

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = \frac{S_n I N_D^0}{h\nu} - \frac{S_p I N_D^+}{h\nu} - \gamma_n n N_D^+ + \gamma_p p N_D^0 \quad \text{éq. II-3}$$

L'équation de poisson

$$\text{div}(\vec{E}_{sc}) = \frac{e}{\epsilon_s} (p - n + N_D^+ - N_{Di}^+) \quad \text{éq. II-4}$$

où ϵ_s est la permittivité statique et N_{Di}^+ la densité initiale de centres ionisés c'est-à-dire la densité de centres $EL2^+$ lorsque le cristal est dans le noir.

L'illumination résultant de l'interférence des deux ondes:

$$I(t) = I_o(t)(1 + m \cos kx) \quad \text{éq. II-5}$$

Notons que nous avons omis volontairement deux mécanismes. L'absorption

à deux photons, dont le taux de génération est $\frac{\beta I^2}{2h\nu}$ où β est le coefficient d'absorption à deux photons, est négligée en régime nanoseconde. Nous montrerons que les paires d'électrons trous créées par ce processus sont négligeables devant le taux de génération des porteurs à partir des centres profonds lorsque l'on travaille en régime nanoseconde.

D'autre part, la recombinaison directe électrons-trous a également été négligée. Compte-tenu de la section efficace de recombinaison directe γ_{et} , les constantes de temps associées à ce processus sont de l'ordre de 100 ns pour les densités de porteurs mises en jeu dans nos expériences ($n \approx p \approx 5 \cdot 10^{16} \text{cm}^{-3}$). Ce phénomène n'interviendra pas durant nos mesures qui sont effectuées pendant la durée de l'impulsion (8 ns).

Comme cela se voit dans les équations II-1 à II-3 et comme nous le discuterons plus loin, l'une des nouveautés apportée par ce type de mécanismes par rapport à une génération de type bande à bande est que le taux de génération des électrons et des trous dépend de la densité de centres ionisés N_D^+ . N_D^+ est lui même fonction de l'intensité comme on peut le voir dans l'équation II-3. Ceci nous permet de prévoir qu'il y aura aussi une variation d'absorption photoinduite. En effet, l'absorption α est donnée par

$$\alpha = S_n (N_D - N_D^+) + S_p N_D^+ = S_n N_D + (S_p - S_n) N_D^+$$

où N_D est la densité totale de centres.

Comme nous avons $\frac{S_n}{S_p} \gg 1$, l'évolution de N_D^+ conduira à une augmentation de transmission si N_D^+ augmente ou à une augmentation d'absorption si N_D^+ diminue.

c) Détermination de quelques paramètres de nos échantillons

Nous avons, pour mener à bien nos expériences, deux types d'échantillons fournis par nos collègues de la Thomson CSF. Ces deux échantillons sont polis selon les faces avant et arrière [001]. La direction moyenne de propagation des ondes lumineuses sera selon l'axe (001). Ils diffèrent l'un de l'autre par leur épaisseur selon la direction (001). Nous disposons d'un échantillon de 4 mm d'épaisseur, appelé par la suite échantillon 1 ou échantillon long, et d'un échantillon de 500 μ m d'épaisseur appelé par la suite échantillon 2 ou échantillon mince. Pour ces deux cristaux, la densité totale de centre EL2 était connue, ($N_D \approx 10^{16} / \text{cm}^3$) mais il restait à déterminer la densité totale de centres ionisés N_D^+ (EL2⁺).

Pour l'échantillon long, N_D^+ a été déterminé au laboratoire en étudiant la variation du gain photoréfractif en fonction du pas du réseau photoinduit (20)

$$N_D^+ = 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$$

Pour l'échantillon mince, nous avons déterminé la densité de centres ionisés à partir des mesures de résistivité ρ et de mobilité μ_H de Hall faites par nos collègues de la Thomson CSF. Pour cela, nous supposons que la conduction dans le noir est assurée uniquement par les électrons. La densité d'électron n dans la bande de conduction est donnée par :

$$n = \frac{1}{e\rho\mu_H}$$

D'autre part, la densité d'électrons dans la bande de conduction créée par l'agitation thermique est:

$$n = N_C(T) \exp\left(\frac{E_F - E_C}{k_B T}\right)$$

où E_F est le niveau de Fermi, E_C l'énergie de la bande de conduction. $N_C(T)$ est la densité d'état effective dans la bande de conduction (21):

$$N_C(T) = 2,5 \left(\frac{m_n^*}{m_o}\right)^{3/2} (T/300)^{3/2} \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

On peut donc déduire le niveau de Fermi, et calculer la densité de centres N_D^+ par :

$$N_D^+ = N_D \left[1 - \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E_D - E_F}{k_B T}\right)} \right]$$

où E_D est l'énergie d'ionisation du centre EL2 ($E_D = 0,67 \text{ eV}$) (22) .

Connaissant $\rho = 2,5 \cdot 10^7 \Omega\text{cm}$ et $\mu_H = 5750 \text{ cm}^2/\text{V.s}$, on en déduit $N_D^+ = 1,25 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

L'ensemble des autres paramètres relatifs à la photogénération, la recombinaison et la diffusion sont pris dans la littérature. Tous les paramètres sont présentés dans la table I (23-33).

section de photoionisation des électrons		$s_n = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (23)
section de photoionisation des trous		$s_p = 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (24-25)
coefficient d'absorption à deux photons		$\beta = 25 \text{ cm} / \text{GW}$ (26)
densité totale N_d de centres EL2	échantillon 1 échantillon 2	EL2 = 10^{16} cm^{-3} EL2 = $1,35 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$
resistivité échantillon 2		$\rho = 2,5 \cdot 10^7 \Omega \text{cm}$
mobilité de Hall pour les électrons (échantillon2)		$\mu_H = 5750 \text{ cm}^{-2} / \text{Vs}$
densité N_d^+ de centres ionisés EL2 ⁺	échantillon 1 échantillon 2	EL2 ⁺ = $2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ EL2 ⁺ = $1,25 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$
section efficace de capture des électrons		$\bar{\sigma}_n = 4,3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$ (27)
section efficace de capture des trous		$\bar{\sigma}_p = 2 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ (27)
vitesse d'agitation thermique des électrons		$V_n^{th} = 4,4 \cdot 10^7 \text{ cm} / \text{s}$ (28)
vitesse d'agitation thermique des trous		$V_p^{th} = 1,7 \cdot 10^7 \text{ cm} / \text{s}$ (28)
section efficace de recombinaison des électrons		$\gamma_n = 1,9 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3 / \text{s}$
section efficace de recombinaison des trous		$\gamma_p = 3,4 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3 / \text{s}$
temps de recombinaison des électrons	échantillon 1 échantillon 2	$\tau_{Rn} = 26 \text{ ns}$ $\tau_{Rn} = 42 \text{ ns}$
temps de recombinaison des trous	échantillon 1 échantillon 2	$\tau_{Rp} = 3,6 \mu\text{s}$ $\tau_{Rp} = 42 \mu\text{s}$
coefficient de recombinaison électrons trous		$\gamma_{et} = 2 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 / \text{s}$ (29)
mobilité des électrons		$\mu_n = 5000 \text{ cm}^2 / \text{Vs}$
mobilité des trous		$\mu_p = 400 \text{ cm}^2 / \text{Vs}$ (30)
masse de l'électron libre		$m_0 = 9,108 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$ (16)
masse effective de l'électron		$m_n^* = 0,068 m_0$ (16)
masse effective des trous		$m_p^* = 0,5 m_0$ (16)
longueur du cristal selon [001]	échantillon 1 échantillon 2	$l = 4 \text{ mm}$ $l = 500 \mu\text{m}$
indice optique		$n_b = 3,5$ (31)
constante dielectrique statique		$\frac{\epsilon_s}{\epsilon_0} = 13$ (32)
section efficace d'absorption des électrons		$s_e = 6 \cdot 10^{-18}, 10^{-17} \text{ cm}^2$ (33)

Table 1: paramètres des échantillons de GaAs semi-isolant.

d) Ordre de grandeur .

La diffusion des porteurs est indésirable. Elle tend en effet à diminuer la modulation du réseau de porteurs libres. On a donc intérêt à ce que les temps de diffusion des électrons et des trous $\tau_{D_{n,p}}$ soient supérieurs à la durée de l'impulsion (8 ns).

$$\text{On a } \tau_{D_{n,p}} = \frac{1}{k^2 D_{n,p}} = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 D_{n,p}} \text{ où } \Lambda = 2\pi/k \text{ est le pas du réseau.}$$

Expérimentalement, nous travaillerons avec un pas de $100\mu\text{m}$; dans ces conditions, le temps de diffusion pour les électrons sera de l'ordre de 20 à 30 nanosecondes tandis que celui des trous sera de 100 nanosecondes. La diffusion des porteurs ne sera pas un élément déterminant de la cinétique des porteurs durant le passage de l'impulsion.

Les temps de recombinaison dans le noir (table I) sont pour les électrons d'environ 25 nanosecondes et pour les trous cent fois plus importants. Ces processus ne seront pas non plus très importants durant l'impulsion tant que l'énergie restera faible. Nous reviendrons sur ce point plus en détail par la suite.

Dans ces conditions, la cinétique d'évolution du plasma électrons-trous est principalement régie par la génération à partir des centres profonds. Une particularité de la génération de plasma électrons-trous à partir de centres profonds est que les probabilités de création d'électrons et de trous sont fonction de l'intensité. En effet, elles dépendent de la valeur N_D^+ qui est fonction de l'intensité comme on peut le constater avec l'équation II-3.

Afin de bien comprendre cette cinétique, nous allons dans un premier temps négliger la diffusion et la recombinaison dans les équations II-1 à II-4. Des solutions analytiques vont nous faire comprendre l'ensemble de l'évolution des densités électrons-trous sous l'action d'une impulsion nanoseconde.

II.2 Modélisation analytique

a) Solutions analytiques.

Reprenons les équations II-1 à II-5 sans tenir compte de la diffusion et de la recombinaison, on a alors :

$$\begin{aligned}\frac{\partial n}{\partial t} &= \frac{S_n I (N_D - N_D^+)}{h\nu} \\ \frac{\partial p}{\partial t} &= \frac{S_p I N_D^+}{h\nu} \\ \frac{\partial N_D^+}{\partial t} &= \frac{S_n I (N_D - N_D^+)}{h\nu} - \frac{S_p I N_D^+}{h\nu} \\ I(t) &= I_0(t)(1 + m \cos kx)\end{aligned}$$

$$N_D = N_D^0 + N_D^+$$

N_D est la densité totale de centres.

Posons $I = \frac{dE}{dt}(1 + m \cos kx)$ où E est l'énergie par unité de surface déposée

par l'impulsion au cours de l'illumination.

L'équation de conservation de la charge nous donne :

$$\begin{aligned}N_D^+ &= N_{Di}^+ \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E(1 + m \cos kx)\right) + \\ &\quad \frac{S_n N_D}{S_n + S_p} \left[1 - \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E(1 + m \cos kx)\right)\right]\end{aligned}$$

où N_{Di}^+ est la densité initiale des centres profonds ionisés (EL2⁺ dans le noir).

Les équations de photogénération des électrons et des trous se résolvent alors et on obtient :

$$n = \frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{N_D E}{h\nu} - \frac{S_n}{(S_n + S_p)^2} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{S_n + S_p}{h\nu} \right) E (1 + m \cos kx) \right) \right]$$

$$p = \frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{N_D E}{h\nu} + \frac{S_p}{(S_n + S_p)^2} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{S_n + S_p}{h\nu} \right) E (1 + m \cos kx) \right) \right]$$

Dans l'hypothèse où le taux de modulation m de la figure d'interférence est faible devant 1, on peut séparer chaque grandeur n , p , N_D^+ en une partie modulée spatialement comme $\cos kx$ indexée 1 et une partie constante indexée 0. On écrit alors :

$$n = n_o + n_1 \cos kx$$

$$p = p_o + p_1 \cos kx$$

$$N_D^+ = N_{D0}^+ + N_{D1}^+ \cos kx$$

$$\text{avec } n_o = \frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{E}{h\nu} N_D - \frac{S_n}{(S_n + S_p)^2} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{S_n + S_p}{h\nu} \right) E \right) \right] \quad \text{éq. II - 6}$$

$$p_o = \frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{E}{h\nu} N_D + \frac{S_p}{(S_n + S_p)^2} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \left[1 - \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \right] \quad \text{éq. II - 7}$$

$$N_{Do}^+ = \frac{S_n N_D}{S_n + S_p} + \left(\frac{S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+)}{S_n + S_p} \right) \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \quad \text{éq. II - 8}$$

$$n_1 = m \left[\frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{E}{h\nu} N_D - \frac{S_n}{(S_n + S_p)} \frac{E}{h\nu} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \right] \quad \text{éq. II - 9}$$

$$p_1 = m \left[\frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{E}{h\nu} N_D + \frac{S_p}{(S_n + S_p)} \frac{E}{h\nu} \left[S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+) \right] \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \right] \quad \text{éq. II - 10}$$

$$N_{D1}^+ = -m \left[(S_n + S_p) \frac{E}{h\nu} \left(\frac{S_p N_{Di}^+ - S_n (N_D - N_{Di}^+)}{S_n + S_p} \right) \exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \right] \quad \text{éq. II-11}$$

Ces solutions analytiques nous permettent de distinguer deux régimes distincts dépendant de l'énergie.

En effet, selon que $\exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right)$ est négligeable ou non devant 1, c'est-à-dire pour $E < 10 \text{ mJ/cm}^2$ ou $E > 10 \text{ mJ/cm}^2$, les solutions analytiques précédentes révèlent des comportements différents :

b) Cas des hautes énergies.

A haute énergie, le second membre des équations II-6 à II-11 devient négligeable et les équations précédentes se simplifient :

On a alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_o = \frac{S_n S_p}{S_n + S_p} \frac{E}{h\nu} N_D \\ p_o = n_o \\ N_{D_o}^+ = \frac{S_n N_D}{S_n + S_p} \\ n_1 = m n_o \\ p_1 = m p_o \\ N_{D_1}^+ = 0 \end{array} \right.$$

Les densités d'électrons et de trous tendent à devenir égales. Tout se passe comme si les porteurs libres étaient créés à partir d'une densité de

centres profonds N_D avec une section efficace $\frac{S_n S_p}{S_n + S_p}$.

Cette uniformisation des concentrations des électrons et des trous relève en fait de l'évolution de N_D^+ qui modifie l'absorption α_n correspondant à la création d'un électron ($\alpha_n = S_n(N_D - N_D^+)$) et celle α_p correspondant à la création d'un trou ($\alpha_p = S_p N_D^+$). En effet, initialement, nous avons α_n bien supérieur à α_p car $S_n > S_p$ et $N_D^0 > N_D^+$. Il y a donc plus d'électrons créés que de trous, et la concentration en N_D^+ a alors tendance à augmenter. Ceci a pour effet de diminuer α_n et d'augmenter α_p . Ce processus se poursuit jusqu'à ce que le taux de génération d'électrons et de trous s'égalisent, c'est-à-dire $S_n N_D^0 = S_p N_D^+$. Cette dernière relation nous fournit alors la valeur à l'équilibre de la densité N_D^+ :

$$N_{D0}^+ = \frac{S_n N_D}{S_n + S_p}$$

Sur la figure II-4 sont représentés les évolutions des densités n_o, p_o et N_{D0}^+ données par les équations II-6 à II-8 en fonction du temps d'illumination de l'échantillon. La durée que nous considérons est de 32 nanosecondes. L'impulsion lumineuse de largeur à mi-hauteur 8 nanosecondes est représentée par une gaussienne et l'énergie déposée au cours du temps $E(t)$ est donnée par : $E(t) = \int_{-\infty}^t I(t') dt'$. L'énergie déposée dans l'échantillon augmente donc au cours de l'illumination. L'analyse précédente de l'évolution des concentrations des porteurs de charge en fonction de l'énergie revient donc à l'analyse des concentrations en fonction de la durée de l'illumination. La figure II-4 montre l'évolution de N_{D0}^+ (centre ionisé $EL2_0^+$ non modulé spatialement).

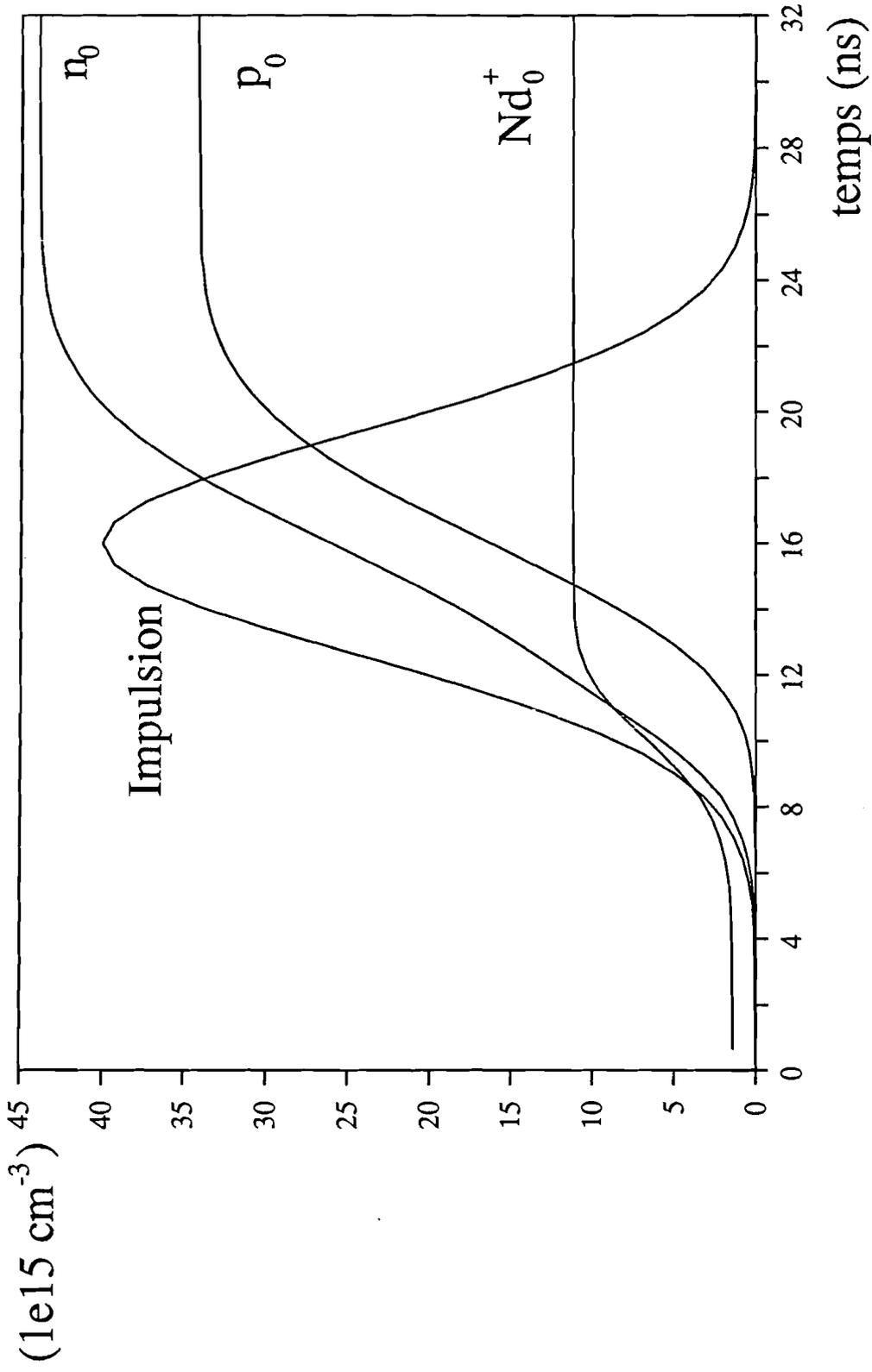


Fig II.4 Evolution d'après le modèle analytique de n_0 , p_0 et Nd_0^+ pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

Au début de l'illumination, où l'énergie absorbée est faible, $N_{D_0}^+$ a sa valeur dans le noir. Elle croît ensuite jusqu'à atteindre une valeur constante proche de 10^{16} cm^{-3} pour une énergie supérieure à 10 mJ/cm^2 environ ($t > 12$ nanoseconde). On vérifie que les concentrations en électrons et en trous tendent à s'égaliser lorsque N_D^+ atteint sa valeur d'équilibre à haute énergie. L'écart qui subsiste entre n_o et p_o provient du deuxième terme des équations II-6 et II-7 pas tout à fait négligeable à 30 mJ/cm^2 . Il se réduit au fur et à mesure que l'énergie augmente.

En ce qui concerne les quantités modulées spatialement, nous remarquons que la modulation du réseau de porteurs libres est égale à la modulation de la figure d'intensité : $n_1 = mn_o$ et $p_1 = mp_o$. La densité de centres profonds est répartie spatialement de manière uniforme, c'est-à-dire $N_{D_1}^+ = 0$. Seule la photoionisation des centres profonds par la répartition d'intensité modulée spatialement intervient dans la génération du réseau de porteurs libres. Dans ce cas limite, nous retrouvons un comportement identique à celui qu'ont les paires d'électrons-trous quand elles sont créées directement par un processus de type bande à bande dans lequel la diffusion et la recombinaison sont négligées.

c) Cas des basses énergies.

A basse énergie, on peut faire l'approximation :

$$\exp\left(-\left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E\right) \approx 1 - \left(\frac{S_n + S_p}{h\nu}\right)E + \frac{(S_n + S_p)^2 E^2}{2(h\nu)^2}$$

Dans ces conditions, les équations II-6 à II-11 deviennent :

$$n_o = \alpha_{ni} \frac{E}{h\nu} - \frac{S_n (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) E^2}{2(h\nu)^2} \quad \text{éq. II-12}$$

$$p_o = \alpha_{pi} \frac{E}{h\nu} + \frac{S_p (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) E^2}{2(h\nu)^2} \quad \text{éq. II-13}$$

$$N_{Do}^+ = N_{Di}^+ + (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) \frac{E}{h\nu} \quad \text{éq. II-14}$$

$$n_1 = m \left(\alpha_{ni} \frac{E}{h\nu} - S_n (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) \frac{mE^2}{(h\nu)^2} \right) \quad \text{éq. II-15}$$

$$p_1 = m \left(\alpha_{pi} \frac{E}{h\nu} + S_p (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) \frac{mE^2}{(h\nu)^2} \right) \quad \text{éq. II-16}$$

$$N_{D1}^+ = m (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) \frac{E}{h\nu} \quad \text{éq. II-17}$$

$$\text{avec } \alpha_{ni} = S_n (N_D - N_{Di}^+) \quad \text{et} \quad \alpha_{pi} = S_p (N_{Di}^+)$$

α_{ni} et α_{pi} sont les absorptions initiales correspondant à la création d'un électron et d'un trou.

Dans tous nos cristaux, nous avons $\frac{\alpha_{ni}}{\alpha_{pi}} \geq 1$. Les densités de trous et

d'électrons au début de l'illumination, c'est-à-dire à basse énergie, seront donc très différentes l'une de l'autre comme l'indique le développement au premier ordre en énergie dans les équations II-12 et II-13. Cependant, comme $\alpha_{ni} \geq \alpha_{pi}$, la densité en centres N_{Do}^+ a tendance à augmenter (éq II-14). Et l'on constate alors, sur les termes au 2ème ordre en énergie dans les équations II-12 et II-13, que cela a pour effet de diminuer le taux de génération des électrons et d'augmenter le taux de génération des trous. Ceci se poursuit comme nous l'avons expliqué précédemment jusqu'à l'uniformisation des densités de porteurs libres.

De même, les quantités modulées spatialement n_1 et p_1 diffèrent au début de l'illumination compte-tenu de $\alpha_{ni} > \alpha_{pi}$. Les termes au 2ème ordre en énergie ont également tendance à corriger cette différence (éq II-15 et II-16). Cependant, les densités des porteurs modulées et non modulées spatialement ont un comportement différent. On doit en effet tenir compte d'une contribution supplémentaire qui intervient dans la génération de n_1 et p_1 . D'après l'équation II-17, la densité de centres N_D^+ est également modulée spatialement à basse énergie. Il y a donc deux contributions qui interviennent dans la génération des réseaux d'électrons et de trous : d'une part la photoionisation de la densité uniforme de centres profonds par la partie modulée spatialement de l'illumination et d'autre part la photoionisation du réseau de centres profonds par le fond uniforme de l'illumination. Du fait de cette dernière contribution, les modulations des réseaux d'électrons et de trous sont différentes entre elles et de celles de la figure d'interférence. Ceci apparaît clairement si l'on réécrit les équations II-12 à II-17 sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}
 n_o &= \alpha_{ni} \frac{E}{h\nu} - \frac{1}{2} S_n \left[N_{Do}^+ - N_{Di}^+ \right] \frac{E}{h\nu} \\
 p_o &= \alpha_{pi} \frac{E}{h\nu} + \frac{1}{2} S_p \left[N_{Do}^+ - N_{Di}^+ \right] \frac{E}{h\nu} \\
 n_1 &= \left[\alpha_{ni} - \frac{1}{2} S_n \left[N_{Do}^+ - N_{Di}^+ \right] \right] \frac{mE}{h\nu} - \frac{1}{2} S_n N_{D1}^+ \frac{E}{h\nu} \\
 p_1 &= \left[\alpha_{pi} + \frac{1}{2} S_p \left[N_{Do}^+ - N_{Di}^+ \right] \right] \frac{mE}{h\nu} + \frac{1}{2} S_p N_{D1}^+ \frac{E}{h\nu}
 \end{aligned}$$

Dans les expressions de n_1 et p_1 , apparaît, tout d'abord, la photoionisation des centres par le réseau d'illumination puis la photoionisation du réseau de centres profonds par l'illumination uniforme. Comme $\alpha_{ni} \geq \alpha_{pi}$, on a $N_{D1}^+ > 0$ d'après l'équation II-17. Le réseau de centres ionisés est en phase avec l'illumination. La modulation du réseau d'électrons sera donc inférieure à celle de la figure d'intensité, alors que la modulation du réseau de trous lui sera supérieure. Cela se voit clairement en écrivant les équations II-12 à II-17 sous la forme :

$$\frac{n_1}{mn_0} = 1 - \frac{S_n (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) E}{2\alpha_{ni} h\nu} \quad \text{éq. II-18}$$

$$\frac{p_1}{mp_0} = 1 + \frac{S_p (\alpha_{ni} - \alpha_{pi}) E}{2\alpha_{pi} h\nu} \quad \text{éq. II-19}$$

La figure II-5 représente l'évolution des quantités modulées spatialement, calculée à partir des équations II-7 à II-11, en fonction de la durée de l'illumination, ou ce qui revient au même, de l'énergie absorbée. A faible énergie, la modulation du réseau de trous p_1/mp_0 augmente et celle du réseau d'électrons n_1/mn_0 diminue tandis que se crée un réseau dans les centres profonds $N_{D1}^+ \neq 0$. Lorsque l'énergie absorbée augmente, les taux de génération d'électrons et de trous deviennent égaux, et font disparaître le réseau dans les centres profonds. L'écart des modulations par rapport à m est maximal lorsque le réseau de centres ionisés est à son maximum.

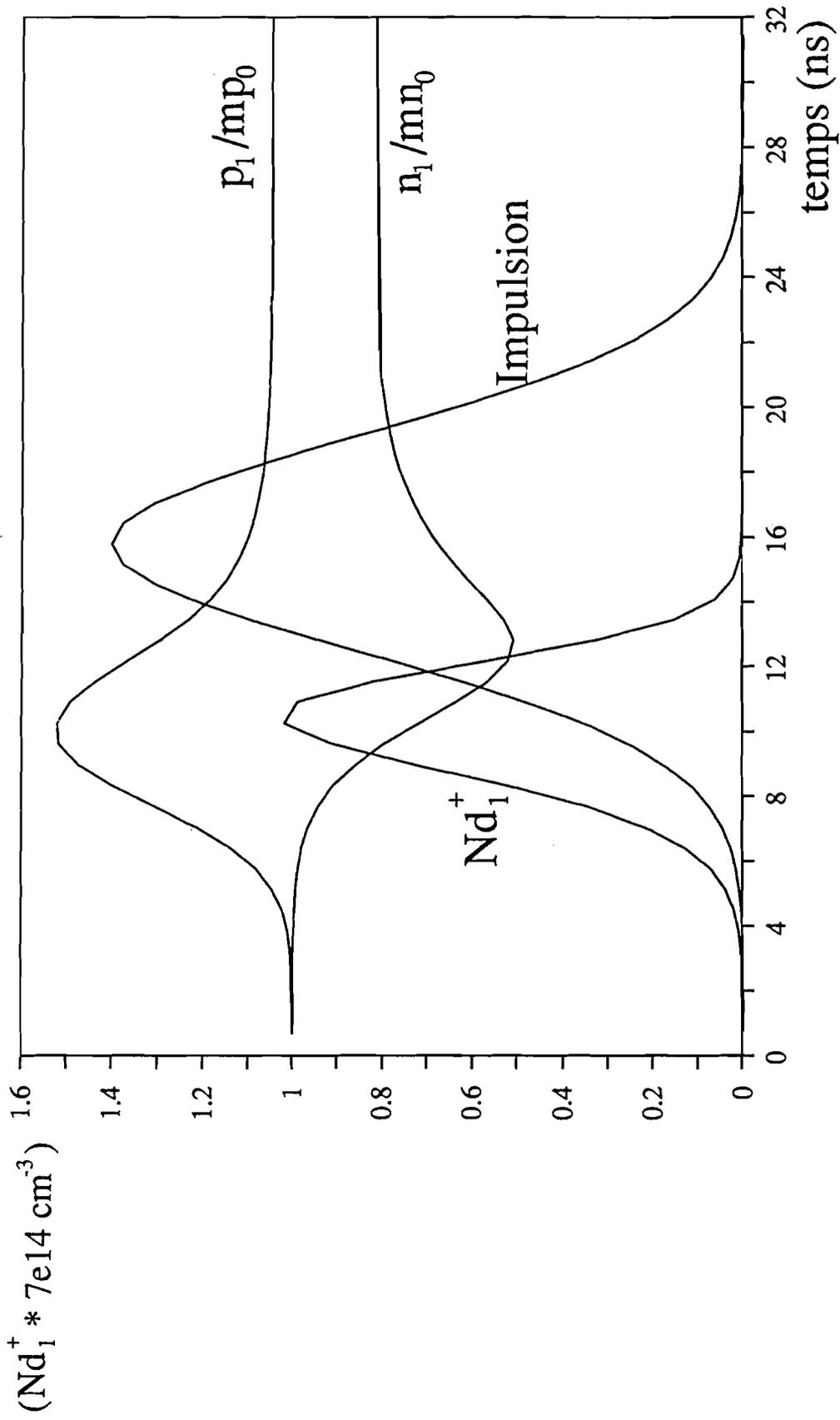


Fig II.5 Evolution d'après le modèle analytique de n_1/mn_0 , P_1/mp_0 et Nd_1^+ pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

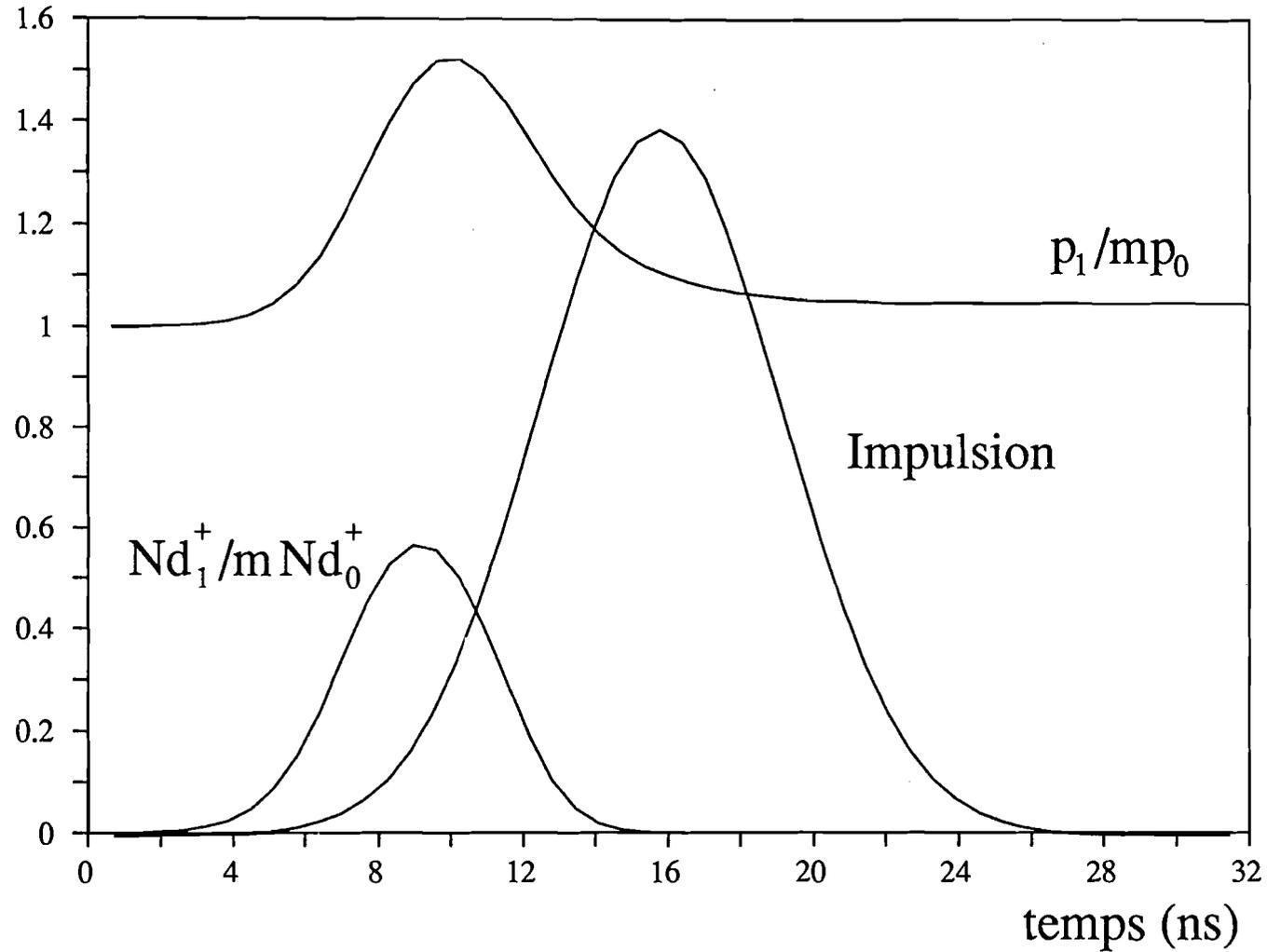


Fig II.6 Evolution d'après le modèle analytique de p_1/mp_0 et Nd_1^+/mNd_0^+ pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

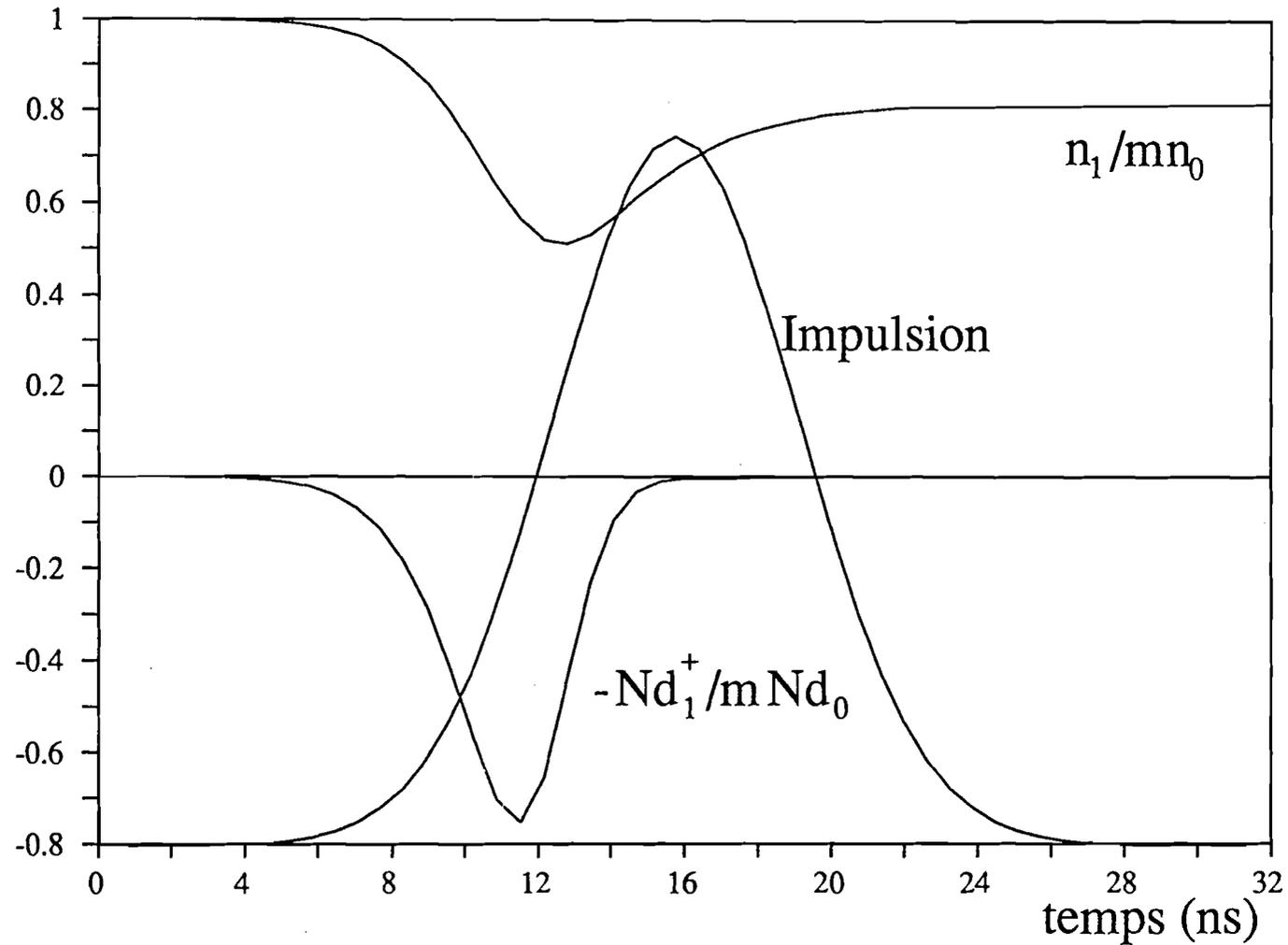


Fig II.7 Evolution d'après le modèle analytique de n_1/mn_0 et $-Nd_1^+/mNd_0$ pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

Plus précisément le maximum de p_1/mp_0 correspond au maximum de

$\frac{N_{D1}^+}{mN_{D0}^+}$ (fig II-6) tandis que le minimum de n_1/mn_0 correspond au minimum

de $\frac{-N_{D1}^+}{mN_{D0}^0}$ (fig II-7).

A haute énergie, les modulations du réseau d'électrons et de trous tendent vers 1 (fig II-5). L'écart de n_1/mn_0 par rapport à 1 se comprend bien au vu de l'équation II-18. Il est dû à l'existence du second terme dans l'équation II-18. Le terme équivalent dans l'équation II-19 est beaucoup plus faible car $S_n/S_p \gg 1$. n_1/mn_0 atteint la valeur 1 pour des énergies totales contenues dans l'impulsion de 100mJ/cm^2

d) Discussion

Le modèle qui vient d'être présenté permet de comprendre dans ses principes l'évolution des concentrations des électrons et des trous photocréés à partir de centres profonds. L'évolution des concentrations respectives de centres neutres et ionisés a une influence déterminante sur l'évolution du plasma électron-trou. L'illumination, modulée spatialement, crée trois réseaux de charge : un réseau dans les centres profonds, un réseau d'électrons dans la bande de conduction et réseau de trous dans la bande de valence. A basse énergie, l'existence d'un réseau dans les centres profonds modifie les modulations des réseaux d'électrons et de trous qui deviennent différentes de celles de l'intensité. La différence entre les taux de génération initiaux de trous et d'électrons conduit, à basse énergie, à des concentrations de porteurs libres très différentes l'une de l'autre.

Cependant, l'évolution des centres ionisés sous l'illumination tend à compenser ce déséquilibre au fur et à mesure que l'énergie déposée dans l'échantillon augmente. A haute énergie, l'évolution des concentrations en porteurs libres tend asymptotiquement vers un comportement de type bande à bande. Les densités de porteur libres s'égalisent tandis que la concentration de centres ionisés devient constante et non modulée spatialement.

II.3 Simulations informatiques

Le modèle précédent ne permet pas cependant de prédire une valeur quantitative correcte des concentrations de n , p et N_D^+ . En effet, les temps de recombinaison et de diffusion des électrons (≈ 25 ns) ne sont pas vraiment négligeables devant la durée de l'impulsion (≈ 8 ns).

Cela est d'autant plus vrai à haute énergie où le temps de recombinaison des électrons tend à diminuer lorsque le cristal est illuminé. En effet, comme

nous venons de le voir $N_D^+ > N_{Di}^+$ et $\tau_r = \frac{1}{\gamma_n N_D^+} > \frac{1}{\gamma_n N_{Di}^+}$. Aussi, afin de

pouvoir estimer correctement les densités de porteurs libres et de centres ionisés, des simulations informatiques ont été réalisées.

a) Méthode de résolution.

Pour ce faire, nous reprenons les équations II-1 à II-5 et effectuons un développement de chaque quantité n , p et N_D^+ en série de Fourier par rapport à la grandeur spatiale. Nous avons donc :

$$n = n_o + n_1 \cos kx$$

$$p = p_o + p_1 \cos kx$$

$$N_D^+ = N_{D_o}^+ + N_{D_1}^+ \cos kx$$

$$\text{avec } \frac{\partial n_o}{\partial t} = \frac{S_n I_o}{h\nu} (N_D - N_{D_o}^+) - \gamma_n n_o N_{D_o}^+$$

$$\frac{\partial p_o}{\partial t} = \frac{S_p I_o}{h\nu} N_D^+ - \gamma_p p_o (N_D - N_{D_o}^+)$$

$$\frac{\partial N_{D_o}^+}{\partial t} = \frac{\partial (n_o - p_o)}{\partial t}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_1}{\partial t} = & \frac{m S_n I_o (N_D - N_{D_o}^+)}{h\nu} - \frac{S_n I_o}{h\nu} N_{D_1}^+ + \frac{e\mu_n n_o}{\epsilon_S} (p_1 - n_1 + N_{D_1}^+) \\ & - \frac{n_1}{\tau_{D_n}} - \gamma_n n_1 N_{D_o}^+ - \gamma_n n_o N_{D_1}^+ \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial p_1}{\partial t} = & \frac{m S_p I_o N_{D_o}^+}{h\nu} + \frac{S_p I_o}{h\nu} N_{D_1}^+ - \frac{e\mu_p p_o}{\epsilon_S} (p_1 - n_1 + N_{D_1}^+) \\ & - \frac{p_1}{\tau_{D_p}} - \gamma_p p_1 (N_D - N_{D_o}^+) + \gamma_p p_o N_{D_1}^+ \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_{D_1}^+}{\partial t} = & \frac{m S_n I_o N_D}{h\nu} + \frac{m I_o}{h\nu} N_{D_o}^+ (S_p - S_n) + (S_p - S_n) \frac{I_o}{h\nu} N_{D_1}^+ \\ & + \gamma_p N_D p_1 - N_{D_o}^+ (\gamma_n n_1 + \gamma_p p_1) - N_{D_1}^+ (\gamma_n n_o + \gamma_p p_o) \end{aligned}$$

Afin de résoudre ce système, deux méthodes de résolutions différentes ont été développées. Le système d'équations différentielles à d'une part été résolu par une simple méthode des tangentes et d'autre part par un algorithme de prédicteur-correcteur d'Adams-Basforth-Moulton (ordre 4).

Le paramètre important dans ces simulations est l'énergie contenue dans l'impulsion. Au fur et à mesure qu'elle augmente, le découpage en temps de l'impulsion doit devenir plus précis. Le nombre de points échantillonnés dans l'impulsion peut atteindre le million pour des énergies incidentes de 50 mJ/cm^2 .

Dans la plupart des cas, la méthode des tangentes fournit une solution plus rapidement que la méthode d'Adams-Basforth-Moulton. Cependant, la méthode des tangentes est peu fiable et son utilisation est délicate. En effet, la solution proposée par le programme est souvent entachée d'erreurs allant jusqu'à 30 à 40% en fin d'illumination tout en étant exacte au sommet de l'impulsion. On doit alors recourir à un échantillonnage plus précis, ce qui la rend finalement bien plus longue et moins fiable.

Aussi, afin de s'affranchir de cette erreur de méthode, nous avons également résolu ce système par une méthode de prédiction-correction. Cette méthode nous fournit, à chaque échantillonnage, deux évaluations de la solution, la prédiction et la correction. La correction est généralement retenue comme étant la solution, la prédiction étant une estimation de la solution moins précise. Ces algorithmes sont plus compliqués à programmer et nécessitent de connaître quatre valeurs initiales pour des temps différents de la solution recherchée. Ils nécessitent donc une autre méthode pour pouvoir démarrer. Dans notre cas, le programme est initialisé à l'aide de l'algorithme de Runge Kutta à l'ordre 4. L'avantage de l'algorithme de prédiction-correction d'Adams-Basforth-Moulton est que la prédiction et la correction encadrent à tout instant la solution recherchée (34). L'écart entre le prédicteur et le correcteur permet donc d'estimer l'erreur commise. Il est alors possible en cours de calcul, de changer le pas d'intégration. Il faut bien sûr réinitialiser le programme à l'aide de l'algorithme de Runge Kutta à l'ordre 4 à partir du point où s'est manifestée la divergence de l'algorithme.

Cette méthode, bien qu'un peu compliquée à programmer, offre l'avantage de connaître l'erreur commise. Les résultats présentés ci-dessous proviennent de simulations faites avec cette méthode et les détails de l'algorithme sont présentés en annexe.

Nous prenons l'intensité fonction gaussienne du temps :

$$I_o(t) = \frac{E}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-t^2/2\sigma^2\right) \text{ avec } \sigma = 2,34T_L \text{ où } T_L \text{ est la durée de}$$

l'impulsion laser à mi hauteur.

b) Comparaison des résultats numériques et analytiques.

Sur la figure II-8 sont présentés les résultats numériques montrant l'évolution des concentrations d'électrons n_o et de trous p_o non modulées spatialement. La recombinaison des trous est négligeable durant le passage de l'impulsion. Par contre, la cinétique des électrons est influencée par leur recombinaison. En effet, le temps de recombinaison des électrons devient inférieur à 25 nanosecondes durant l'illumination puisque la densité de centres N_D^+ augmente fortement par rapport à sa valeur dans le noir ($N_D^+ \approx 1,25 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$). La figure II-9 compare l'évolution de $N_{D_o}^+$ prévue par l'approche analytique (a) et les simulations numériques (b). Lorsque la recombinaison des porteurs n'est pas prise en compte (a), $N_{D_o}^+$ croît puis sature avec l'énergie absorbée (égalisation des taux de génération d'électrons et de trous). Lorsque l'on inclut les processus de recombinaison (b), l'augmentation de $N_{D_o}^+$ avec l'énergie est contrebalancée par la recombinaison des électrons sur $N_{D_o}^+$. Cette recombinaison est d'autant plus rapide que $N_{D_o}^+$ devient important. La variation du temps de recombinaison des électrons au cours de l'illumination est illustrée sur la figure II-10.

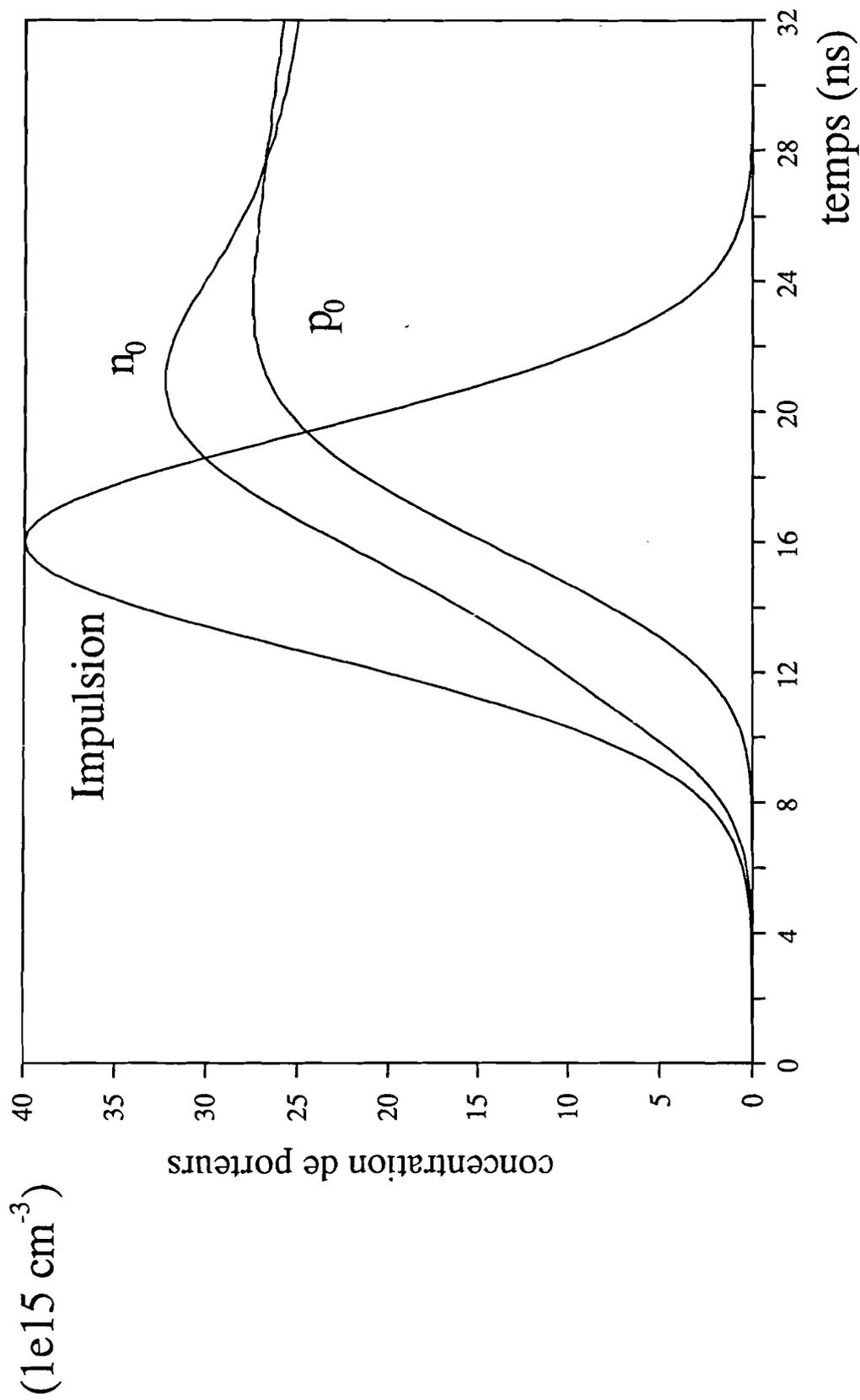


Fig II.8 Evolution de n_0 et p_0 d'après les simulations pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

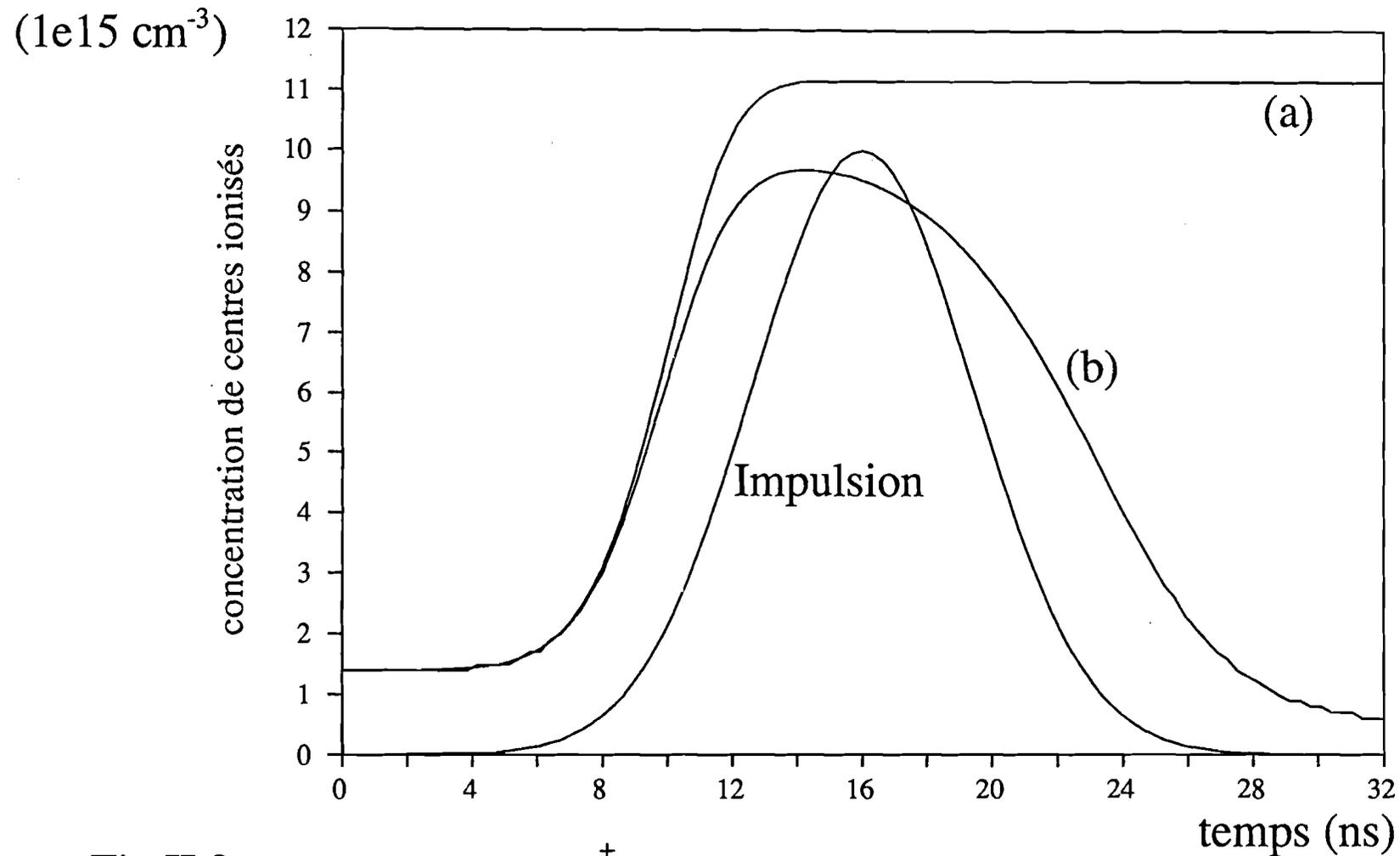


Fig II.9 Evolution de Nd_0^+ d'après le modèle analytique (a) et d'après les simulations (b) pour une énergie totale de 30mJ/cm^2

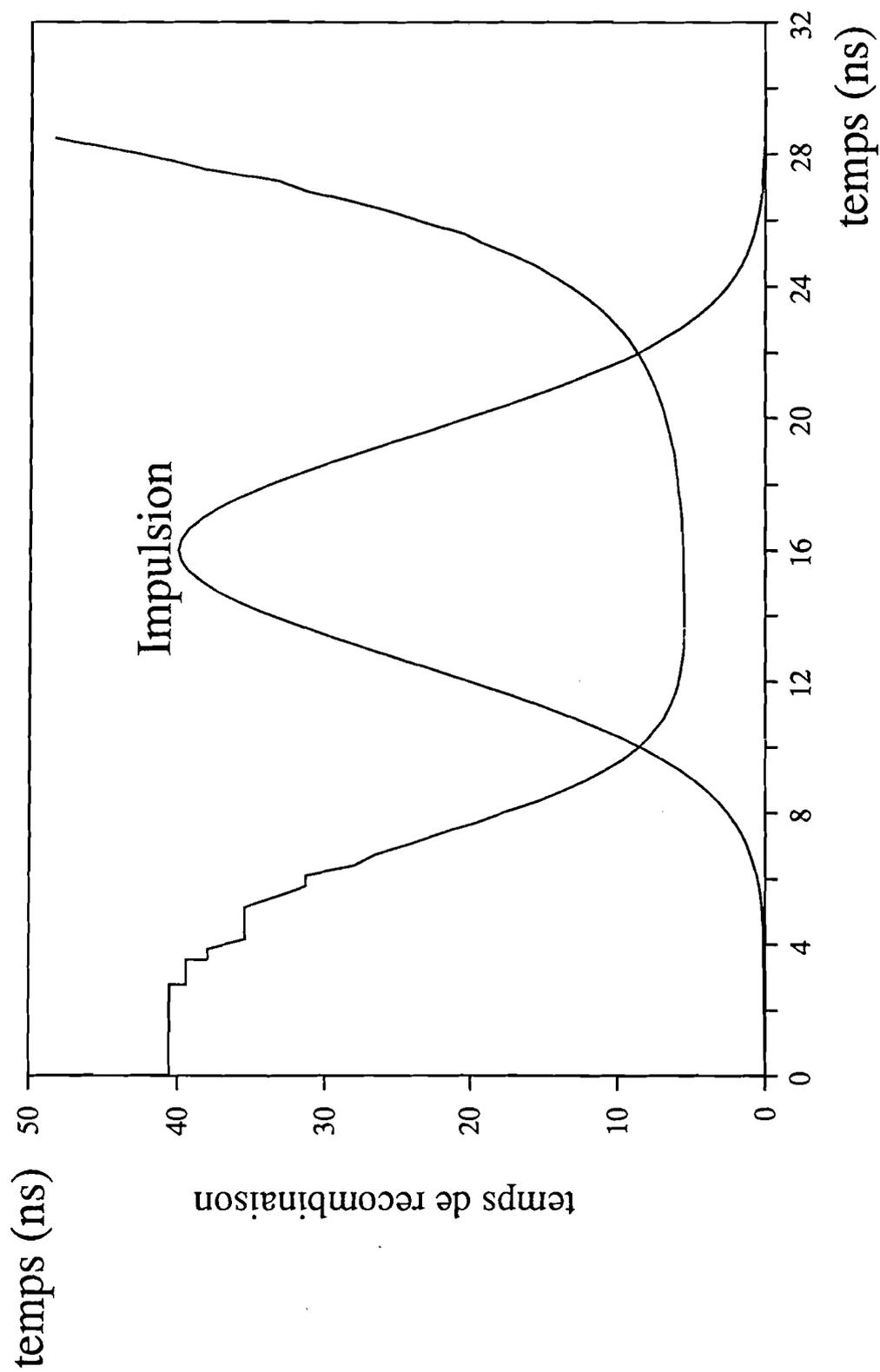


Fig II.10 Evolution du temps de recombinaison des électrons pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

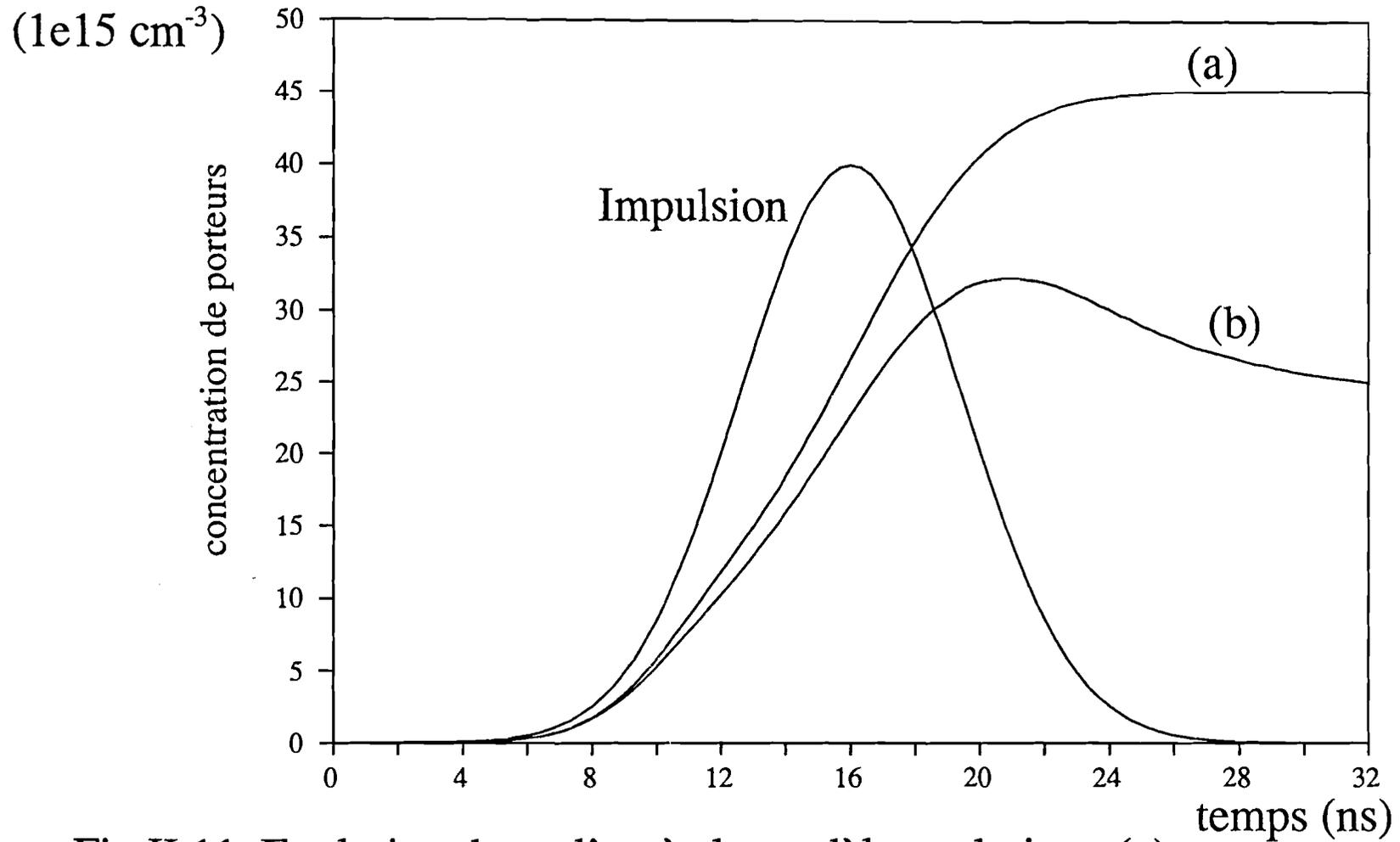


Fig II.11 Evolution de n_0 d'après le modèle analytique (a) et d'après les simulations (b) pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

Le temps de recombinaison des électrons peut atteindre une valeur aussi faible que 6 à 7 nanosecondes lorsque $N_{D_o}^+$ atteint sa valeur maximum ($N_{D_o}^+ \approx 9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$). La recombinaison des électrons devient alors prédominante réduisant $N_{D_o}^+$. Tant que les trous n'ont pas commencé à recombiner, la valeur de $N_{D_o}^+$ peut même être inférieure à sa valeur dans le noir (fig. II-10 $t \approx 30\text{ns}$).

L'influence de la recombinaison des électrons sur leur concentration est illustrée sur la figure II-11. Négligeant la recombinaison, l'approche analytique qui nous a permis de bien comprendre les mécanismes, surestime d'au moins 25 % la valeur de la concentration des électrons à la fin de l'illumination.

L'influence de l'énergie sur l'évolution des concentrations d'électrons et de trous est illustrée sur les figures II-8 et II-12. Lorsque l'énergie absorbée est faible, plus d'électrons que de trous sont créés (figure II-12). L'écart entre n_o et p_o tend à disparaître au fur et à mesure que l'énergie augmente (fig II-8) comme l'avait prédit l'approche analytique.

La recombinaison des électrons affecte également le comportement des grandeurs modulées spatialement. La figure II-13 montre l'évolution des modulations des réseaux d'électrons (n_1/mn_o) et de trou (p_1/mp_o) en fonction du temps d'illumination (ou de l'énergie absorbée) pour une énergie totale de 1mJ/cm^2 . Comme l'avait montré l'approche analytique, l'existence d'un réseau dans les centres profonds (N_{D1}^+) augmente la modulation du réseau de trous et diminue celle du réseau d'électrons. A plus forte énergie (fig II-14), on observe un maximum et un minimum très prononcés sur (p_1/mp_o) et (n_1/mn_o).

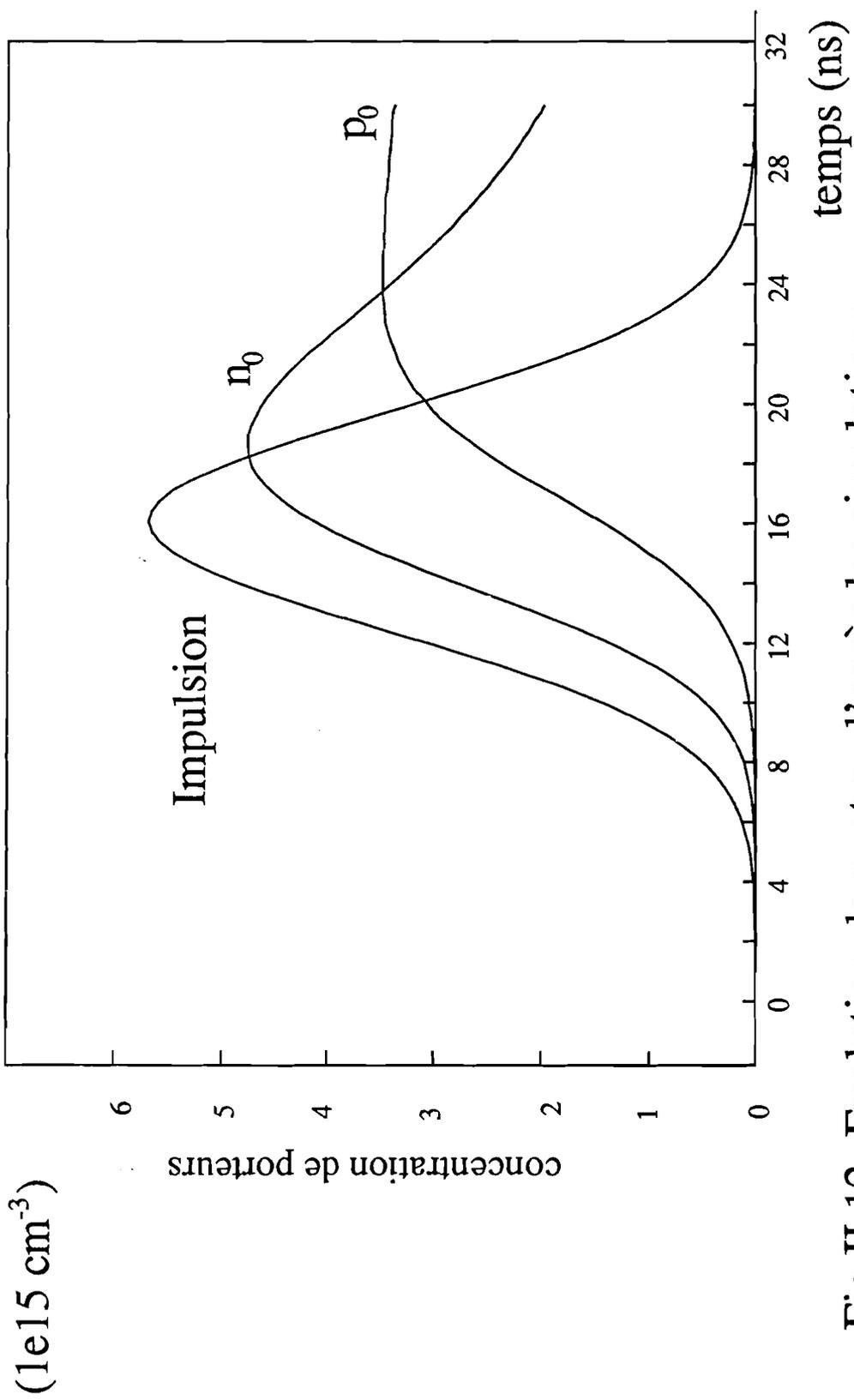


Fig II.12 Evolution de n_0 et p_0 d'après les simulations pour une énergie totale de 1 mJ/cm^2

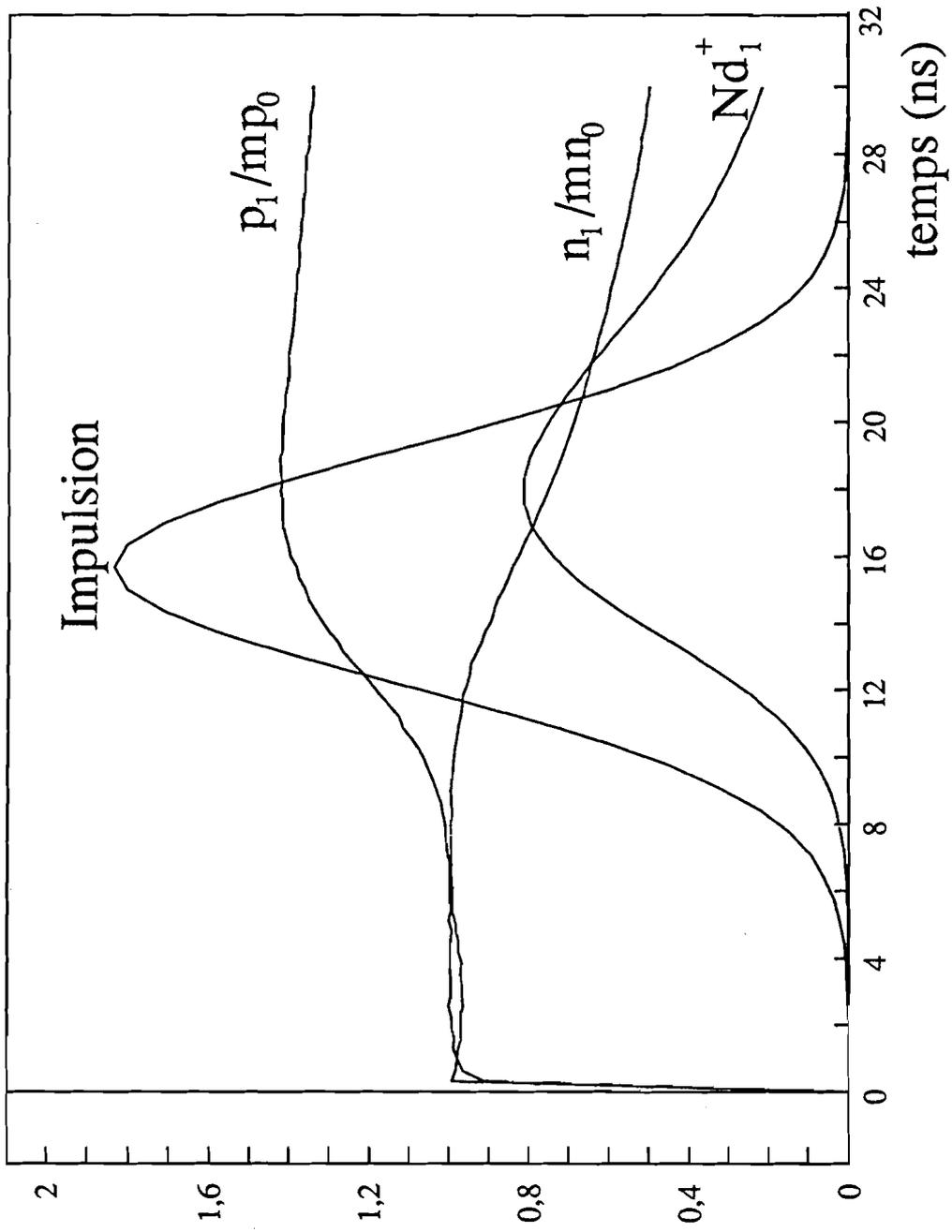


Fig II.13 Evolution d'après les simulations de p_1/mp_0 et n_1/mn_0 pour une énergie totale de 1 mJ/cm^2

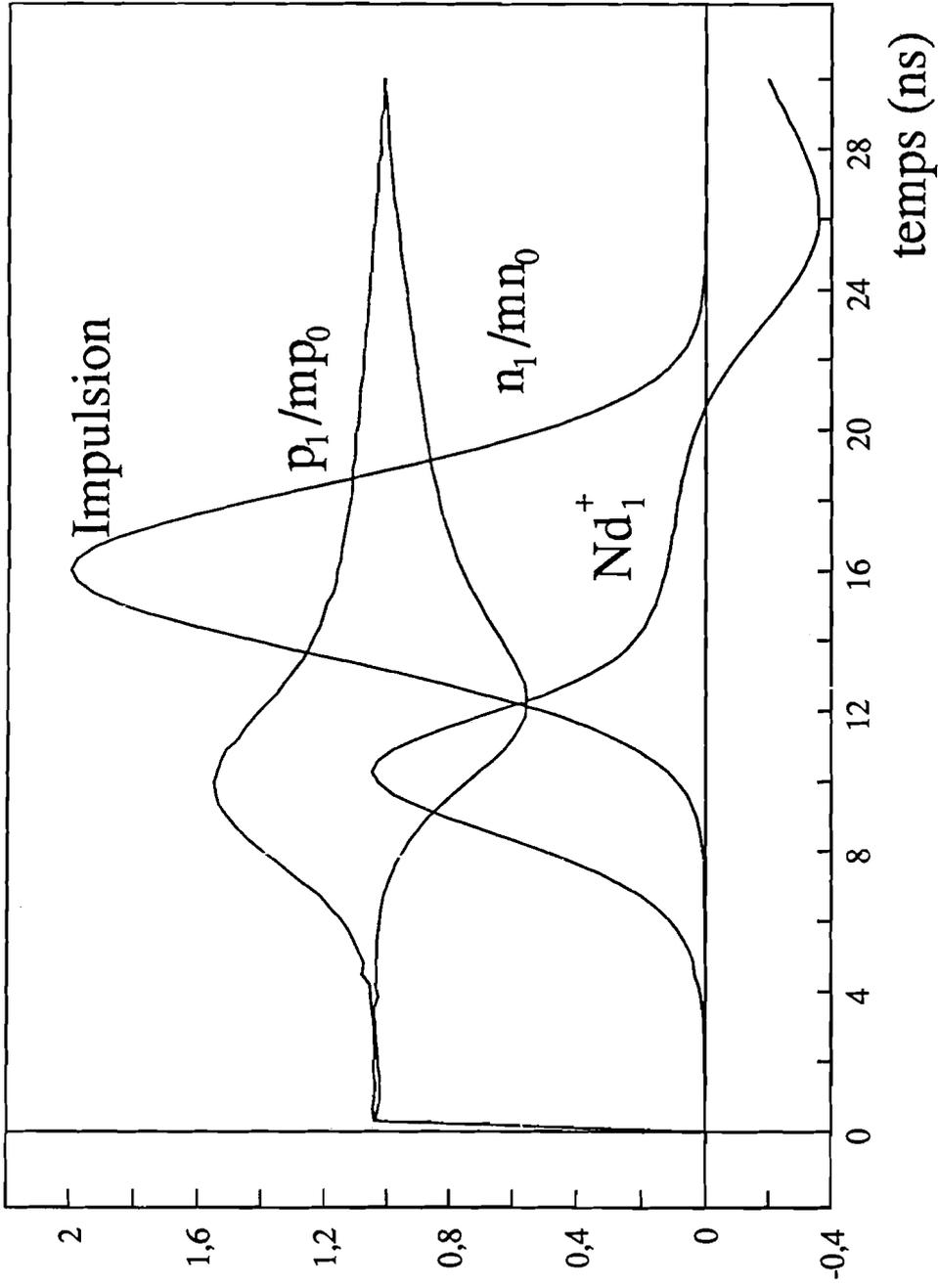


Fig II.14 Evolution d'après les simulations de p_1/mp_0 et n_1/mn_0 pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2

Comme nous l'avons déjà vu lors de l'approche analytique sur les figures II-5 à II-7, ces extremums correspondent à un maximum dans la concentration de N_{D1}^+ . Ce maximum apparaît d'autant plus tôt au cours de l'illumination que l'énergie contenue dans l'impulsion augmente (fig II-13 et II-14). Cela confirme que ce comportement est sensible uniquement à l'énergie absorbée dans l'échantillon.

L'évolution de N_{D1}^+ en fonction de l'énergie (fig II-14), c'est-à-dire la création puis disparition du réseau dans les centres profonds lorsque les taux de génération s'égalisent, est conforme à notre modèle analytique. La recombinaison des électrons introduit en plus un changement du signe de cette modulation qui disparaîtra lorsque les trous recombieront. Il peut paraître surprenant que le rapport n_1/mn_o redevienne égal à l'unité pour les hautes énergies. Le temps de diffusion pour les électrons est en effet de l'ordre de 25 nanosecondes et on pourrait s'attendre légitimement à voir l'effet de la diffusion sur la modulation du réseau d'électrons.

Pour comprendre le rôle plus faible que prévu de la diffusion des électrons, il nous faut tenir compte également de la faible diffusion des trous et de l'existence d'un réseau dans les centres profonds.

A faible énergie, la densité p_1 de trous est bien plus faible que n_1 . Par contre, comme nous l'avons vu, la densité N_{D1}^+ est importante. Les électrons qui diffusent, ont tendance à délocaliser une certaine charge par rapport à la charge contenue dans le réseau de centres profonds. Il apparaît donc un champ, que nous avons appelé champ de charge d'espace, qui s'oppose à ce qui l'a créé. Le champ s'oppose donc à la diffusion des électrons.

De même, à haute énergie où $N_{D1}^+ = 0$, la densité modulée spatialement de trous est cette fois-ci pratiquement égale à la densité modulée d'électrons. En raison de leur faible mobilité, les trous diffusent très peu par rapport aux électrons.

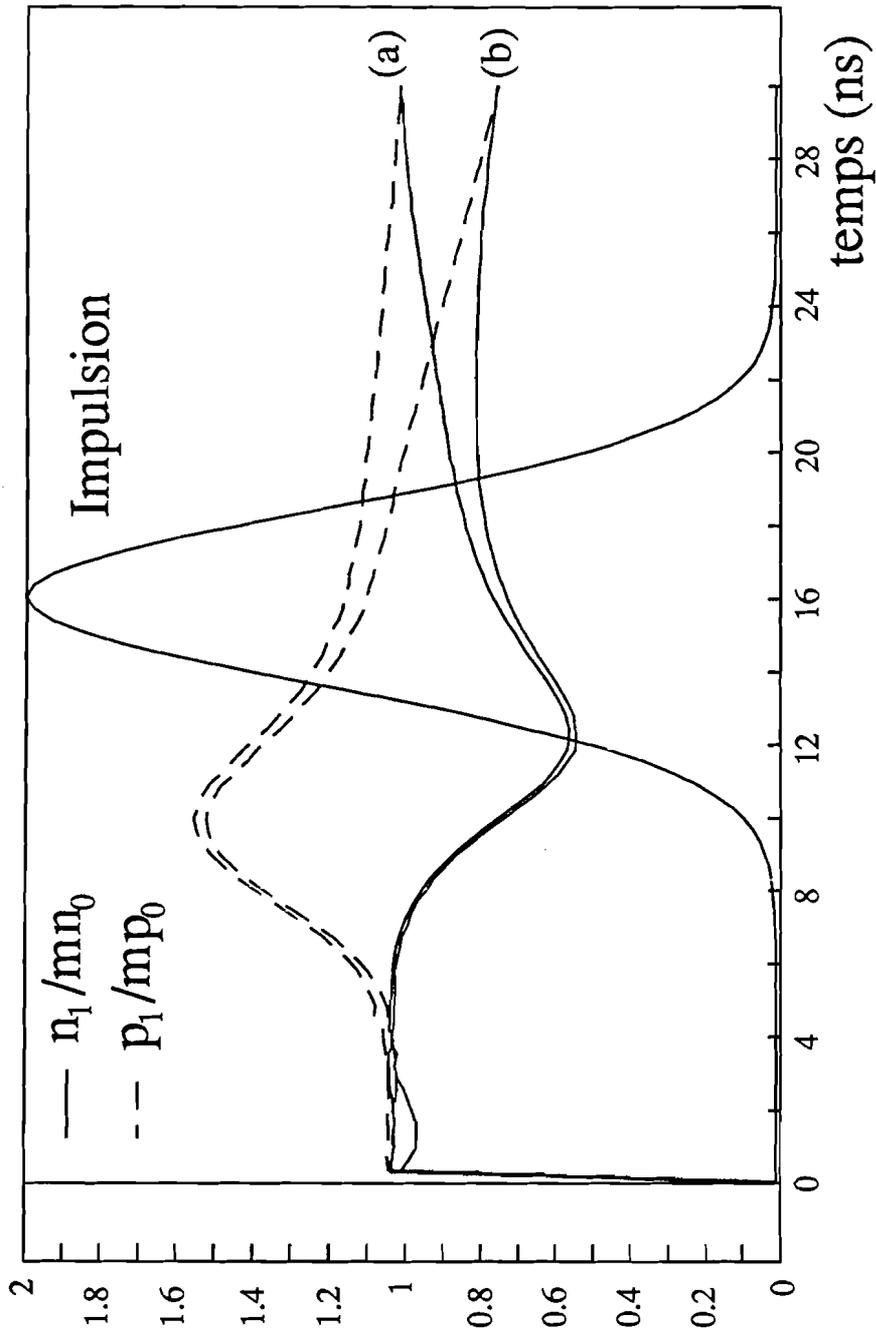


Fig II.15 Evolution d'après les simulations de p_1/mp_0 et n_1/mn_0 pour une énergie totale de 30 mJ/cm^2 et pour un pas de 100 micron (a) ou de 50 micron (b).

Il apparaît alors un champ dû à cette différence de mobilité, appelé aussi "champ de Dember" qui tend à s'opposer à la diffusion relative des électrons par rapport aux trous. Tout se passe donc, si l'on inclut l'effet de ce champ, comme si les électrons et les trous avaient une mobilité apparente. Cette mobilité apparente, appelée aussi mobilité ambipolaire, est différente des mobilités propres aux électrons et aux trous. Elle est donnée par l'expression suivante calculée au chapitre V:

$$\mu_a = \frac{2\mu_n\mu_p}{\mu_n + \mu_p} < \mu_n$$

On constate donc que le temps mis par les électrons pour diffuser est augmenté. Cela explique que l'on ne voit pas l'influence de la diffusion, pendant le passage de l'impulsion, sur les densités d'électrons et de trous dans nos conditions expérimentales (pas de $100\mu\text{m}$, $\tau_{D_n} = 25 \text{ ns}$, $\tau_{D_a} \approx 50 \text{ ns}$). Par contre, comme on peut le voir sur la fig II-15, l'influence de la diffusion se manifeste durant le passage de l'impulsion lorsque l'on choisit des pas de franges inférieurs ou égaux à $50 \mu\text{m}$.

II.4 Discussion

La modélisation analytique et les simulations numériques nous ont permis de comprendre l'évolution des populations électroniques, tant dans les bandes que dans les centres profonds en fonction de la durée d'illumination ou de l'énergie absorbée.

Ces variations de populations produiront une variation de permittivité du matériau, comme expliqué dans le premier chapitre. La composante modulée spatialement correspondra à un réseau d'indice et conduira au mélange non-linéaire d'ondes optiques. Expérimentalement, ces non-linéarités optiques seront mesurées au sommet de l'impulsion de durée 8 nanosecondes et étudiées en fonction de l'énergie totale des ondes.

Comme on l'a montré au chapitre I, ce sont les concentrations d'électrons et de trous photocréés qui gouvernent la variation de permittivité :

$$\Delta\varepsilon_1 = \frac{-e^2}{\omega^2} \left(\frac{n_1}{m_n^*} + \frac{p_1}{m_p^*} \right)$$

Pour les faibles énergies, la croissance de n_1 est proportionnelle à l'énergie avec une pente qui correspond à l'absorption initiale due aux électrons ($S_n N_{Di}^0$). Au delà de $10\text{mJ}/\text{cm}^2$, n_1 croit linéairement avec l'énergie de l'impulsion, la pente de la droite étant cette fois-ci proportionnelle à

$$\frac{S_p S_n N_D}{S_n + S_p}.$$

La partie modulée spatialement p_1 de la densité de trous à un comportement analogue : la pente à l'origine est proportionnelle à $S_p N_{Di}^+$ tandis qu'à haute

énergie on retrouve une pente proportionnelle à $\frac{S_p S_n N_D}{S_n + S_p}$.

Le comportement à haute énergie se comprend bien puisque lorsque l'énergie dépasse $10\text{mJ}/\text{cm}^2$, on atteint le régime haute énergie dans lequel les taux de générations sont égaux pour les électrons et les trous et leurs temps de recombinaison sont constants (au sommet de l'impulsion).

La courbe sur la figure II-16 montre l'évolution de $\Delta\varepsilon_1$ en fonction de l'énergie totale de l'impulsion. Cette courbe reproduit pratiquement l'évolution de n_1 puisque la masse effective des trous est beaucoup plus grande que celle des électrons.

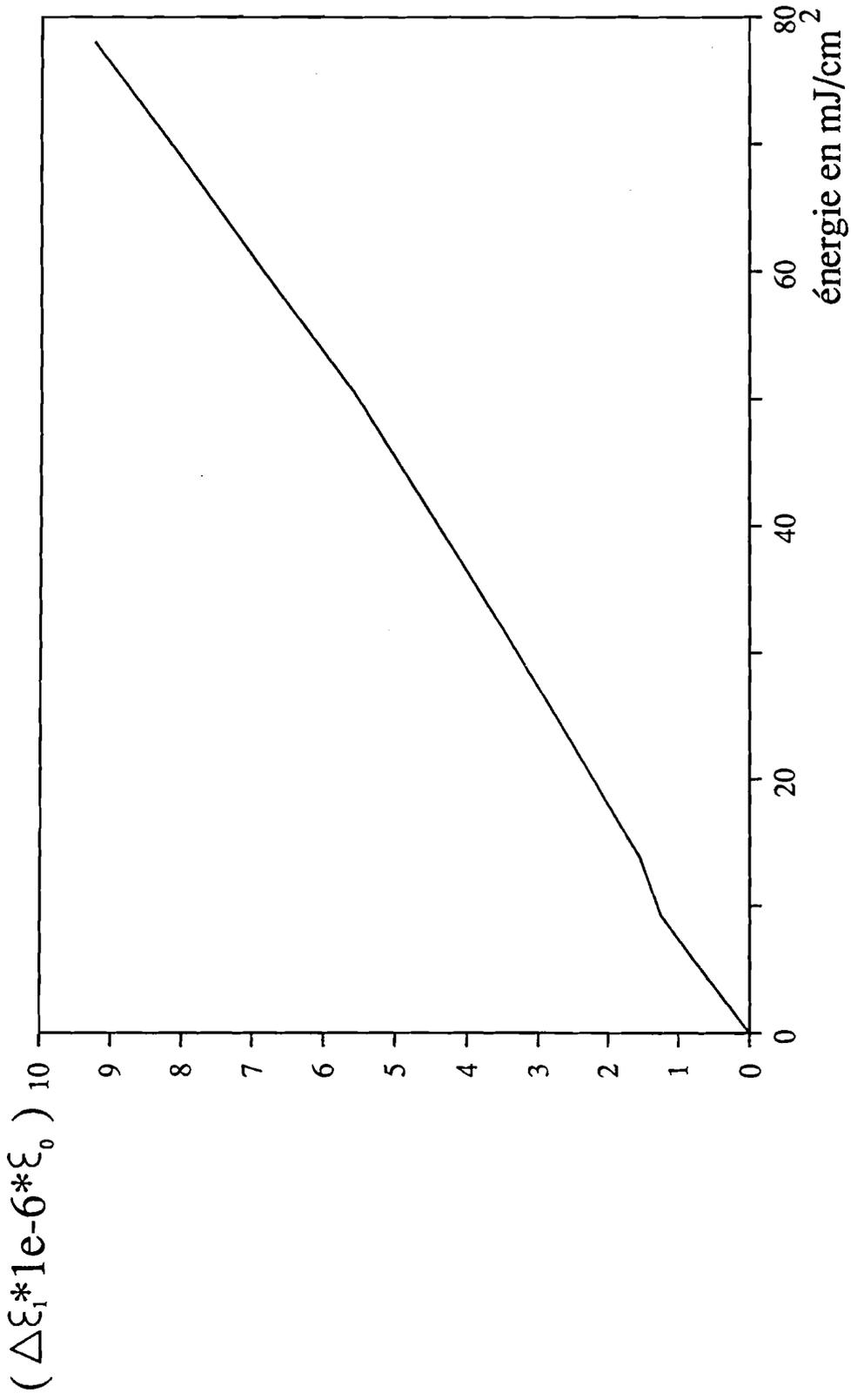


Fig II.16: Variation de $\Delta \epsilon_1$, en fonction de l'énergie incidente d'après les simulations numériques.

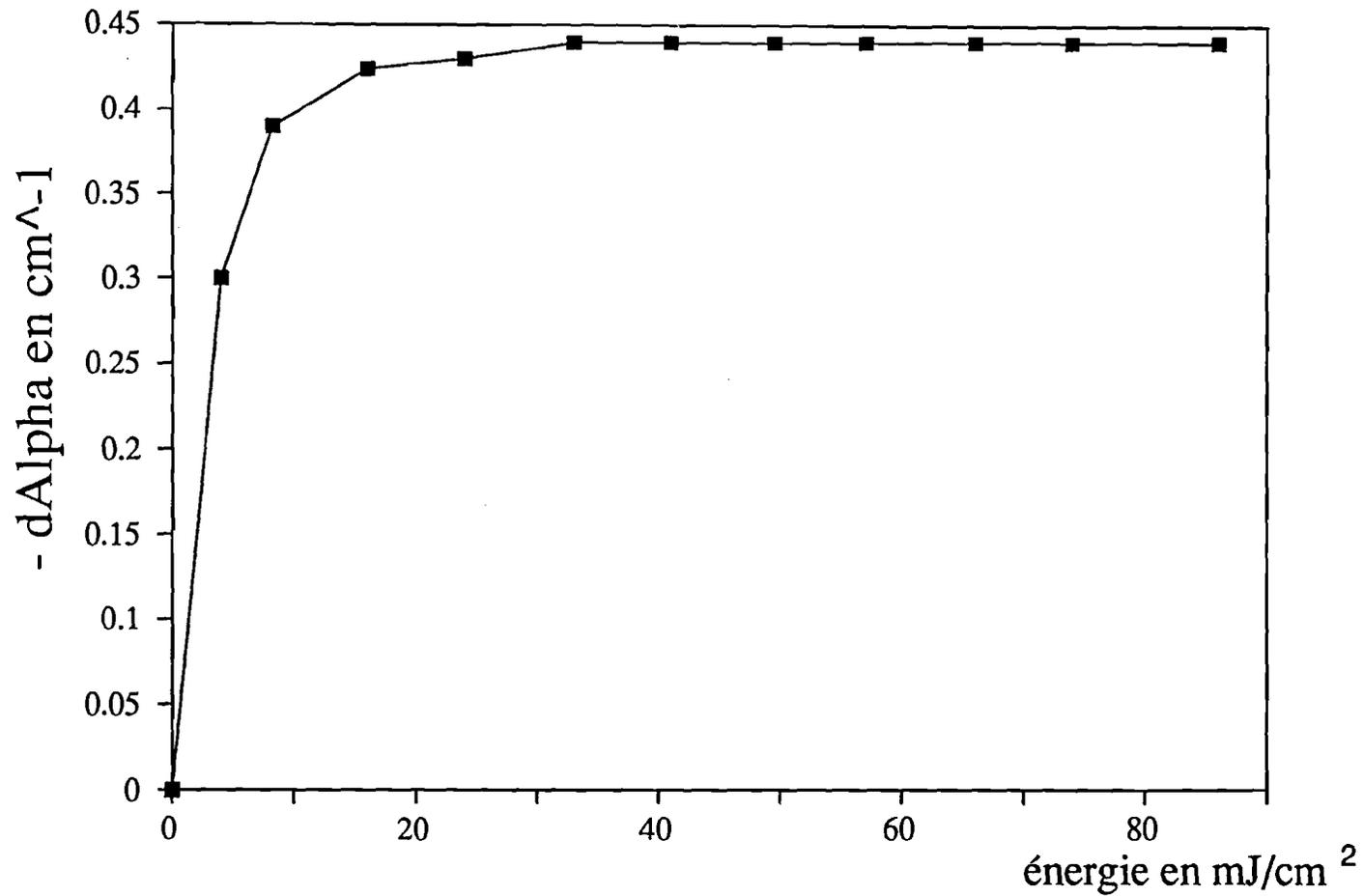


Fig II.17: Variation de l'absorption (dAlpha) due aux centres EL2 en fonction de l'énergie incidente.

La figure II-17 montre la variation d'absorption en fonction de l'énergie de l'impulsion produite par la variation photoinduite de la densité de centres ionisés calculée au sommet de l'impulsion. La variation d'absorption est reliée à la variation de densité de centre ionisés par :

$$\Delta\alpha = (S_n - S_p)(N_{Di}^+ - N_{Do}^+)$$

A faible énergie, la création prédominante d'électrons augmente N_D^+ et l'absorption diminue. Au delà de $10\text{mJ}/\text{cm}^2$, les taux de génération d'électrons et de trous s'égalisent ce qui limite cette diminution de l'absorption.

Chapitre III

Approche théorique de la conjugaison de phase

III - Approche théorique de la conjugaison de phase

III.1 Position du problème :

Afin d'étudier la non-linéarité optique due à la création de paires électrons-trous à partir de centres profonds, deux types d'expériences ont été réalisées. Elles reposent toutes les deux sur le même principe. L'interférence de plusieurs ondes dans le cristal de GaAs provoque une modulation spatiale de l'indice de réfraction. La diffraction de ces ondes sur les réseaux d'indice qu'elles viennent de créer engendre alors une, voire plusieurs ondes. Nous allons voir que la mesure de l'intensité des ondes créées permet alors de remonter aux variations d'indice induites.

a) Choix des configurations

Les deux configurations utilisées sont schématisées sur les figures III-1 et III.2. Sur la figure III -1 est représenté un montage appelé "miroir" à conjugaison de phase par l'avant où deux faisceaux cohérents, l'un intense dit pompe et l'autre faible dit sonde, sont incidents sur la face [001] du cristal. La modulation de l'indice est créée principalement par l'interférence de la pompe et de la sonde. La diffraction des ondes engendre alors plusieurs ordres diffractés. Seul le principal (ordre 1 de la diffraction de la pompe) est représenté sur la figure III-1. Ces ordres diffractés ne sont visibles qu'en milieu mince (quelques centaines de microns) et disparaissent par interférence dans les milieux épais. Si l'on tient compte uniquement du 1er ordre diffracté, celui-ci apparaît comme le conjugué en phase par l'avant de la sonde. Sur la figure III-2 est représenté un montage appelé miroir à conjugaison de phase par l'arrière.

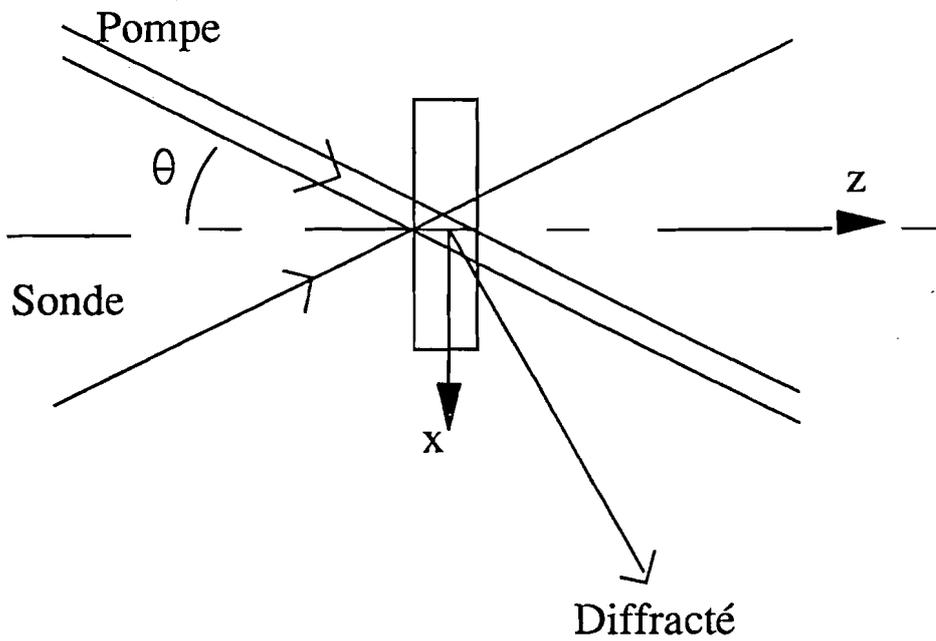


Fig III.1: montage de conjugaison de phase par l'avant.

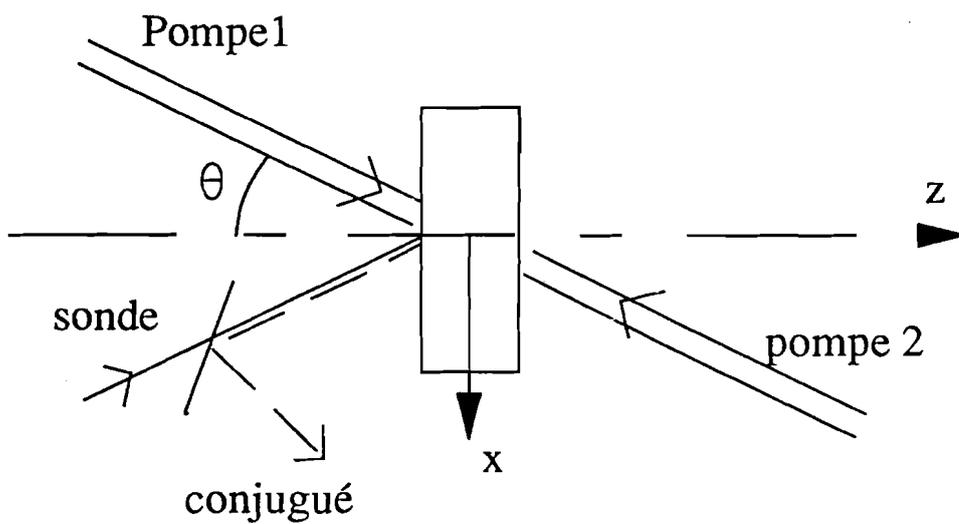


Fig III.2: montage de conjugaison de phase par l'arrière.

Deux pompes contrepropageantes et une sonde sont incidentes sur le cristal. L'apparition d'un quatrième faisceau est dû principalement aux diffractions des deux pompes sur la modulation d'indice créée par interférence des pompes avec la sonde. Ce faisceau est appelé conjugué, car il apparaît comme le conjugué en phase de la sonde. Nous nous proposons dans la suite de ce chapitre d'établir une expression analytique de l'intensité du signal conjugué pour chacune des deux configurations présentées.

b) Formalisation

Quelque soit la configuration retenue, la modélisation analytique est sensiblement la même. Il nous faut résoudre l'équation de propagation, c'est-à-dire :

$$\bar{\nabla}^2 \bar{\mathbf{E}} = \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon_r \bar{\mathbf{E}}).$$

où $\bar{\mathbf{E}}$ est la champ électrique des ondes se propageant dans l'échantillon, μ_0 la perméabilité magnétique et $[\epsilon_r]$ la permittivité relative du matériau aux fréquences optiques modifiées par la présence des ondes.

On décompose $\bar{\mathbf{E}}$ en série de Fourier :

$$\bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{2} \left(\sum_i \bar{\mathbf{E}}_i \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc \right)$$

où \vec{k}_i est le vecteur d'onde de la i ème onde et cc désigne le complexe conjugué.

La permittivité relative se découpe en une partie constante indépendante de l'intensité ϵ_L et une partie $\delta\epsilon$ qui est fonction de l'intensité de sorte que :

$\epsilon_r = \epsilon_L + \delta\epsilon$ où $\sqrt{\epsilon_L}$ est l'indice de réfraction n_b . L'illumination du cristal étant modulée spatialement, la variation de permittivité $\delta\epsilon$ se décompose en un terme constant $\delta\epsilon_0$ et un terme modulé spatialement $\delta\epsilon_1$.

Les mécanismes mis en jeu (création de porteurs libres ou mouvement anharmonique) induisent une variation de $\delta\epsilon_0$ de l'ordre de 10^{-4} qui sera toujours négligée devant $\epsilon_L=13$.

La résolution de l'équation de propagation linéaire (quand ϵ_r est indépendant de l'intensité) est bien connue. Ce sont des ondes planes, à

$$\text{condition bien sûr que : } k_i^2 = \mu_o \epsilon_o \epsilon_L \omega^2 = \frac{n_b^2 \omega^2}{c^2}$$

Le principe de résolution de l'équation de propagation non-linéaire (avec une permittivité variable) consiste à injecter une solution de l'équation de propagation linéaire en supposant que les amplitudes de chaque composante de Fourier peuvent varier au cours de la propagation selon l'axe z. Si on tient compte uniquement des variations d'amplitude de ces ondes selon la direction z, on a alors :

$$\begin{aligned} & \sum_i \left[\frac{\partial^2 \vec{E}_i}{\partial z^2} - 2jk_{iz} \frac{\partial \vec{E}_i}{\partial z} - k_i^2 \vec{E}_i \right] \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc \\ & = -\mu_o \epsilon_o \omega^2 \left(\sum_i (\epsilon_L + \delta\epsilon_1) (\vec{E}_i \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc) \right) \end{aligned}$$

où l'on a négligé les variations temporelles de $\delta\epsilon$ devant celles de la lumière (un cycle optique). k_{iz} est la projection du vecteur d'onde \vec{k}_i sur l'axe z. Nous allons d'autre part supposer que les variations d'amplitude sont lentes devant une longueur d'onde (approximation de l'enveloppe lentement variable).

L'équation de propagation devient alors :

$$\begin{aligned} & \sum_i -2jk_{iz} \frac{\partial \vec{E}_i}{\partial z} \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc \\ & = \sum_i \left(k_i^2 - \mu_o \epsilon_o \omega^2 [\epsilon_L] \right) (\vec{E}_i \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc) \\ & \quad - \mu_o \epsilon_o \omega^2 \left(\sum_i \delta\epsilon_1 (\vec{E}_i \exp(j(\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r})) + cc) \right) \quad \text{éq. III-1} \end{aligned}$$

Le 2ème terme du deuxième membre de l'équation III-1 représente la diffraction des ondes \vec{E}_i sur la modulation spatiale de l'indice. Le 1er terme du deuxième membre de l'équation III-1 représente un éventuel désaccord à l'angle de Bragg des ondes qui se propagent. C'est le cas du diffracté dans le montage de conjugaison de phase par l'avant.

Dans GaAs, en régime d'illumination nanoseconde, la variation de permittivité $\delta\epsilon_1$ résulte de la création de porteurs à partir de centres profonds (GaAs semi-isolant) ou du mouvement anharmonique des porteurs (GaAs dopé n). Nous allons dans la suite de ce chapitre résoudre l'équation de propagation (équation III-1) dans les deux configurations choisies pour ces types de non-linéarités et déduire l'intensité des ondes conjuguées.

III.2 Conjugaison de phase par l'avant

a) Diffraction sur un réseau mince

Nous nous plaçons dans le cas où deux ondes sont incidentes sur le cristal. La pompe \vec{E}_1 est supposée bien plus intense que la sonde \vec{E}_s . On pose:

$$\vec{E}_1 = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})) + cc \right)$$

$$\vec{E}_s = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_s \exp(j(\omega t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})) + cc \right)$$

L'intensité vibratoire du champ total est :

$$I_v = \langle |\vec{E}_1 + \vec{E}_s|^2 \rangle = \frac{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2}{2} + \frac{(\vec{E}_1 \vec{E}_s^* \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) + cc)}{2}$$

On pose $\vec{k} = \vec{k}_s - \vec{k}_1$ vecteur réseau de la figure d'intensité et

$$m = 2 \frac{|\vec{E}_1 \vec{E}_s^*|}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2} \text{ la modulation.}$$

La variation de permittivité due à la création de porteurs libres est :

$$\delta\epsilon_1 = \frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n_1}{m_n^*} + \frac{p_1}{m_p^*} \right) \left(\frac{\exp(jkx) + cc}{2} \right)$$

Nous avons vu que même lorsque les porteurs n'ont pas diffusé, $n_1 \neq mn_o$ et $p_1 \neq mp_o$ du fait de l'existence d'un réseau dans les centres profonds. Nous considérons cependant que n_1 et p_1 varient linéairement avec la modulation de la figure d'intensité, comme cela est suggéré par les expressions analytiques du chapitre II 2. Nous définissons alors deux quantités n'_o et p'_o indépendantes de m telles que : $n'_o = n_1/m$ et $p'_o = p_1/m$. Nous écrivons alors $\delta\epsilon_1$ sous la forme:

$$\delta\epsilon_1 = \frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \left(\frac{\vec{E}_1 \vec{E}_s^* \exp(jkx) + cc}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2} \right) = \frac{\Delta\epsilon_1}{m} \left(\frac{\vec{E}_1 \vec{E}_s^* \exp(jkx) + cc}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2} \right)$$

où $\frac{\Delta\epsilon_1}{m}$ est indépendant de la modulation de la figure d'interférence.

La diffraction de l'onde pompe sur ce réseau s'écrit:

$$\begin{aligned} & (\delta\epsilon_1) \left(\vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})) + cc \right) \\ &= \frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \frac{1}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2} \left(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^* \exp(jkx) + cc \right) \\ & \qquad \qquad \qquad \left(\vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})) + cc \right) \\ &= \frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \left(\frac{1}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_s|^2} \right) \left[\left((\vec{E}_1^* \vec{E}_s) \vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})) \right) \right. \\ & \qquad \qquad \qquad \left. + \left((\vec{E}_1 \vec{E}_s^*) \vec{E}_1 \exp(j(\omega t - (2\vec{k}_1 - \vec{k}_s) \cdot \vec{r})) \right) + cc \right] \end{aligned}$$

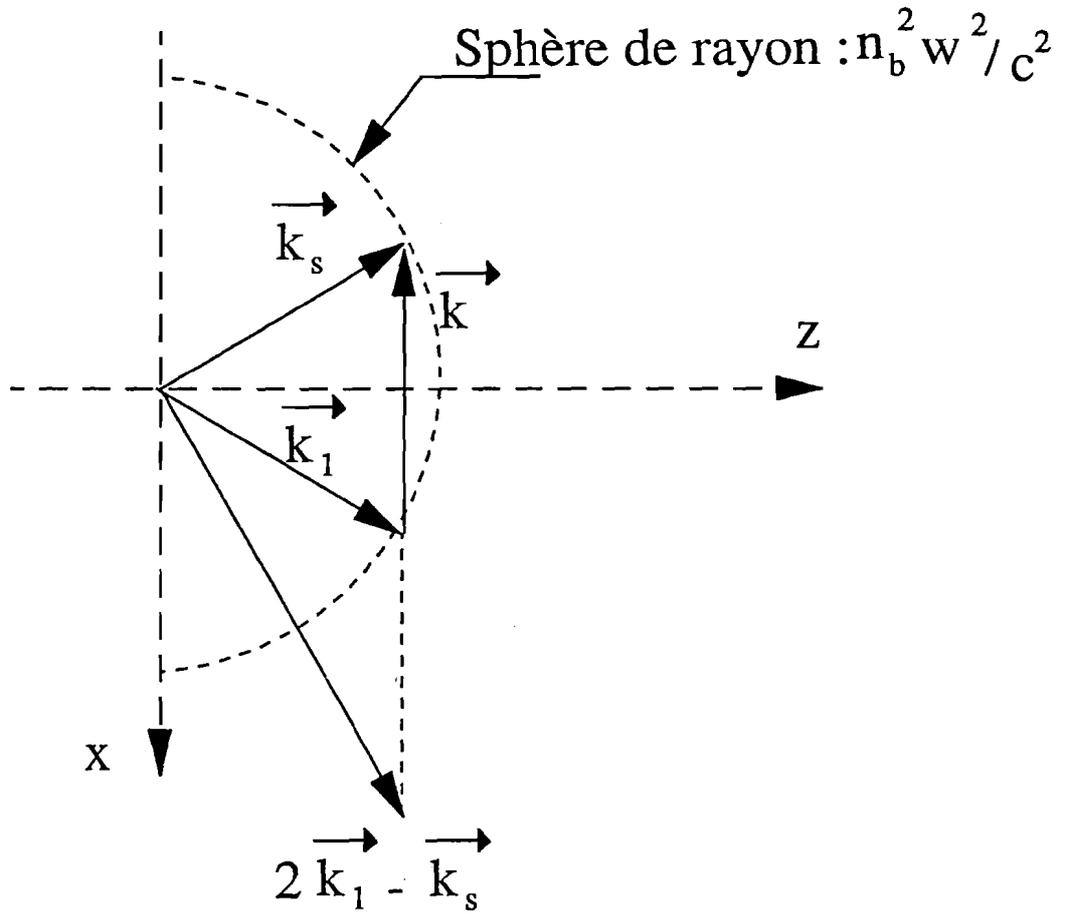


Fig III.3: Désaccord à Bragg du faisceau diffracté

On voit donc que la diffraction de la pompe sur le réseau d'indice redonne une onde se propageant dans la direction de la sonde et fait apparaître une troisième onde $\vec{\epsilon}_d$ différente de la sonde et de la pompe et de vecteur d'onde $2\vec{k}_1 - \vec{k}_s = \vec{k}_d$.

Cependant, l'énergie ne peut se propager dans cette direction que sur une faible épaisseur. En effet, comme on peut le voir sur la figure III-3, cette onde ne vérifie pas la condition d'accord de Bragg puisque

$$|2\vec{k}_1 - \vec{k}_s|^2 \neq \frac{n_b^2 \omega^2}{c^2}. \text{ C'est pour cette raison que cette onde est}$$

habituellement négligée lorsque l'on travaille sur des réseaux épais. Nous allons, dans le cas du mélange d'ondes par l'avant dans le cristal mince, tenir compte de cette troisième onde, ainsi que de son désaccord à l'angle de Bragg. Nous poserons pour la suite :

$$\delta_k = \frac{|2\vec{k}_1 - \vec{k}_s|^2 - \frac{n_b^2 \omega^2}{c^2}}{2k_{dz}} \text{ expression que l'on discutera dans la suite.}$$

A priori, on devrait tenir compte également de tous les autres faisceaux diffractés. Ils seront négligés pour deux raisons. D'une part leur désaccord à l'angle de Bragg augmente, d'autre part, leur terme source issu de la diffraction ne contient au maximum qu'une seule fois le champ de l'onde pompe. Ils ont donc des intensités négligeables devant l'autodiffracté de la pompe dont le terme source dépend du carré du champ de la pompe.

b) Mélange d'ondes dans un milieu mince.

Nous considérons donc trois ondes : la pompe, la sonde et le diffracté (ϵ_d) que nous écrivons :

$$\vec{E}_d = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_d \exp\left(j\left(\omega t - (2\vec{k}_1 - \vec{k}_s) \cdot \vec{r}\right)\right) + cc \right)$$

L'intensité de la pompe est bien supérieure à celles de la sonde et du diffracté. Nous négligeons donc les modulations de permittivité résultant des interférences possibles entre la sonde et le diffracté devant celles créées respectivement par, la pompe et la sonde, la pompe et le diffracté. L'illumination s'écrit :

$$I_v = \frac{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_d|^2 + |\vec{E}_s|^2}{2} \left\{ 1 + \frac{\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^* + \vec{E}_d \cdot \vec{E}_1^*}{|E_1|^2 + |E_s|^2 + |E_d|^2} \exp(jkx) + cc \right\}$$

$$I_v \approx \frac{|\vec{E}_1|^2}{2} \left\{ 1 + \frac{\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^* + \vec{E}_d \cdot \vec{E}_1^*}{|E_1|^2} \exp(jkx) + cc \right\}$$

A partir de l'équation III-1, en regroupant les termes en accord de phase et en incluant l'absorption linéaire α , on a :

$$\frac{\partial \vec{E}_s}{\partial z} = -jK \left[(\vec{E}_s \cdot \vec{E}_1^*) \vec{E}_1 + (\vec{E}_d^* \vec{E}_1) \vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_s$$

$$\frac{\partial \vec{E}_d}{\partial z} = -jK \left[(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^*) \vec{E}_1 + (\vec{E}_1^* \vec{E}_d) \vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_d + j\delta_k \vec{E}_d$$

$$\frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} = -jK \left[(\vec{E}_s^* \cdot \vec{E}_1) \vec{E}_s + (\vec{E}_d^* \vec{E}_1) \vec{E}_d \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_1$$

avec

$$K = \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \frac{\Delta n'}{|E_1|^2}$$

$$\Delta n' = \frac{1}{2n_b} \frac{\Delta \epsilon_1}{m} = \frac{-e^2}{\epsilon_0 \omega^2} \left(\frac{n_0'}{m_n^*} + \frac{p_0'}{m_p^*} \right) \frac{1}{2n_b}$$

$\Delta n'$ est homogène à une variation d'indice.

Notons également que, d'après la courbe II-16, $\Delta\varepsilon_1$ est proportionnel à l'énergie incidente. La modulation étant indépendante de l'énergie totale, la

quantité $\frac{\Delta n'}{|E_1|^2}$ est donc une constante indépendante de l'intensité ou de

l'énergie. $\frac{\Delta n'}{|E_1|^2}$ reste constant au cours de la propagation dans le cristal

malgré l'absorption. Nous prendrons pour valeur de $\Delta n'$ celle calculée pour la valeur de l'intensité à l'entrée du cristal $|E_1(z=0)|^2$. L'intensité de la pompe n'étant que faiblement altérée par le mélange non-linéaire, on néglige ses variations d'intensité. On obtient alors :

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \vec{E}_s}{\partial z} &= -jK \left[(\vec{E}_s \cdot \vec{E}_1^*) \vec{E}_1 + (\vec{E}_d^* \vec{E}_1) \vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_s \\ \frac{\partial \vec{E}_d}{\partial z} &= -jK \left[(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^*) \vec{E}_1 + (\vec{E}_1^* \vec{E}_d) \vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_d + j\delta_k \vec{E}_d \\ \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} &= -\frac{\alpha}{2} \vec{E}_1 \end{aligned} \right\} \text{éq. III - 2}$$

Ce système, dans lequel intervient simultanément l'absorption et le désaccord à Bragg, n'a pas de solution analytique à notre connaissance. Aussi, afin d'estimer l'importance relative du désaccord à Bragg par rapport à l'absorption, nous allons dans un premier temps calculer l'intensité de l'onde diffractée en tenant compte uniquement du couplage et de l'absorption. Compte-tenu de la valeur de nos coefficients d'absorption et de l'épaisseur du matériau, nous verrons que l'influence de l'absorption peut-être négligée. Nous pourrons alors estimer l'influence du désaccord à Bragg.

α) Influence de l'absorption.

Afin d'estimer l'influence de l'absorption, nous négligeons dans un premier temps le désaccord à l'angle de Bragg.

Ecrivons l'amplitude du champ optique de l'onde sous la forme :

$$E_i = A_i \exp\left(-\frac{\alpha}{2}z\right) \text{ pour } i \in \{1, s, d\}.$$

Le système d'équations III-2 devient alors :

$$\begin{cases} A_1(z) = A_1(o) \\ \frac{\partial A_s}{\partial z} = -jKA_1^2(o) \exp(-\alpha z) [A_s + A_d^*] \\ \frac{\partial A_d^*}{\partial z} = -jKA_1^2(o) \exp(-\alpha z) [A_s + A_d^*] \end{cases}$$

En remarquant que $\frac{\partial (A_s + A_d^*)}{\partial z} = 0$, (conservation de l'énergie), on a alors :

$$A_s(z) = A_s(o) \left[1 - jKA_1^2(o) \left(\frac{1 - \exp(-\alpha z)}{\alpha} \right) \right]$$

$$A_d(z) = -jKA_1^2(o) A_s^*(o) \left(\frac{1 - \exp(-\alpha z)}{\alpha} \right)$$

On a donc :

$$\left\{ A_s(z) = A_s(o) \left[1 - j \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha z)}{\alpha} \right) \right] \right. \quad \text{éq. III - 3 a}$$

$$\left. A_d(z) = -jA_s^*(o) \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha z)}{\alpha} \right) \right. \quad \text{éq. III - 3 b}$$

Le diffracté A_d apparait comme le "conjugué en phase" de la sonde A_s , à ceci près qu'il ne se propage pas dans une direction identique à celle de la sonde.

La réflectivité a pour expression :

$$R = \left| \frac{A_d(l)}{A_s^*(o)} \right|^2 = \left(\frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \right)^2 l^2 \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha l} \right)^2 \quad \text{éq. III 4}$$

où l est la longueur du cristal. La réflectivité dépend du carré de la variation d'indice $\Delta n'$.

On peut remarquer que cette expression est formellement identique à celle obtenue lorsque les porteurs sont créés directement par absorption bande à bande. Dans ce cas, on a $n_1 = mn_o$ et $p_1 = mp_o$, en négligeant la

diffusion et
$$\Delta n' = -\frac{1}{2n_b} \frac{e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n_o}{m_n^*} + \frac{p_o}{m_p^*} \right).$$

$\Delta n'$ est donc simplement égale à la variation d'indice induite par l'intensité totale non modulée spatialement.

Dans le cas où les porteurs sont créés à partir de centres profonds,

$$\Delta n' = -\frac{1}{2n_b} \frac{e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right)$$

avec $n'_o = \frac{n_1}{m}$ et $p'_o = \frac{p_1}{m}$.

n'_o et p'_o sont différents de n_o et p_o comme nous l'avons montré lors de l'étude des variations de populations électroniques (voir fig. II-13 et II-14).

D'après l'éq. III-4, la réflectivité dépend aussi du carré de la longueur d'interaction lorsque $\alpha l \ll 1$. Pour le cristal mince, on a $\alpha = 1,2 \text{ cm}^{-1}$, et

$l = 500 \mu\text{m}$, soit $\left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha l} \right)^2 \approx 0,94$. L'absorption a donc une influence

faible pour cet échantillon.

Il est intéressant de remarquer que l'équation III-3-a conduit à (35) :

$$\left| \frac{E_s(l)}{E_s(o)} \right|^2 = \exp(-\alpha l) \left[1 + \left(\frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' l \right)^2 \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha l} \right)^2 \right]$$

Il est donc possible d'obtenir une amplification de la sonde dans un cristal mince si l'on considère le mélange d'ondes entre la pompe, la sonde et l'autodiffracté de la pompe (36-38).

β) Influence du désaccord à Bragg.

Nous reprenons le système d'équations III-2, où l'absorption est cette fois négligée.

On a alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_s}{\partial z} = -jK|E_1|^2 (E_s + E_d^*) \\ \frac{\partial E_d}{\partial z} = -jK|E_1|^2 (E_s^* + E_d) + j\delta_k E_d \\ \frac{\partial E_1}{\partial z} = 0 \end{cases}$$

Combinant les deux premières équations et dérivant la seconde, on obtient :

$$\frac{\partial (E_s^* + E_d)}{\partial z} = j\delta_k E_d \quad \text{et} \quad \frac{\partial E_d^2}{\partial z^2} - j\delta_k \frac{\partial E_d}{\partial z} - K|E_1|^2 \delta_k E_d = 0$$

On cherche des solutions sous la forme :

$$E_d = A \exp(\eta_1 z) + B \exp(\eta_2 z)$$

où A et B sont deux constantes et

$$\eta_{1,2} = \frac{j\delta_k \pm j\sqrt{\delta_k^2 - 4K|E_1|^2 \delta_k}}{2}$$

Les conditions initiales, $E_d(o) = 0$ et $\frac{\partial E_d}{\partial z}(o) = -jK|E_1|^2 E_s^*(o)$ nous

permettent de déterminer les deux constantes A et B et l'on obtient :

$$E_d(z) = -jK|E_1|^2 E_s^*(o) \left(\frac{\exp(\eta_1 z) - \exp(\eta_2 z)}{\eta_1 - \eta_2} \right)$$

$$= -jK|E_1|^2 E_s^*(o) \exp(j\delta_k z) \frac{2 \sin \left(\left(\sqrt{\delta_k^2 - 4K|E_1|^2 \delta_k} \right) \frac{z}{2} \right)}{\sqrt{\delta_k^2 - 4K|E_1|^2 \delta_k}}$$

Posant $\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}$, la réflectivité s'écrit alors :

$$\left| \frac{E_d(l)}{E_s(o)} \right|^2 = \left(\frac{2\pi\Delta n' l}{\lambda \cos \theta} \right) \text{sinc}^2 \left(\frac{l}{2} \sqrt{\delta_k^2 - \frac{8\pi\Delta n'}{\lambda \cos \theta} \delta_k} \right) \quad \text{éq. III-5}$$

La réflectivité apparaît donc comme le produit de la réflectivité calculée sans tenir compte du désaccord à l'angle de Bragg, pondérée par une fonction qui tient compte à la fois des interférences destructives et de la génération au cours de la propagation. δ_k est donné par l'expression :

$$\delta_k = \frac{|2\vec{k}_1 - \vec{k}_s|^2 - \frac{n_b^2 \omega^2}{c^2}}{2k_{dz}}$$

L'expression de δ_k peut s'écrire en fonction du pas Λ du réseau induit et de la longueur d'onde λ d'illumination. Soit θ l'angle entre le faisceau de la pompe et l'axe z (normal à la face d'entrée du cristal) à l'intérieur du cristal. Les coordonnées de \vec{k}_1 dans le repère (\vec{x}, \vec{z}) de la figure III-3 sont :

$$\vec{k}_1 \begin{cases} -\frac{n_b \omega}{c} \sin \theta \\ \frac{n_b \omega}{c} \cos \theta \end{cases}$$

Expérimentalement, nous avons travaillé avec des pas de réseau d'interférence très grands ($\Lambda \approx 100\mu\text{m}$), ce qui conduit à des angles d'incidence θ très petits. On a donc:

$$\vec{k}_1 \begin{cases} \frac{-n_b \omega}{c} \theta \\ \frac{n_b \omega}{c} \left(1 - \frac{\theta^2}{2}\right) \end{cases}$$

Le vecteur réseau \vec{k} a pour coordonnées :

$$\vec{k} \begin{cases} \frac{2n_b \omega}{c} \theta \\ 0 \end{cases}$$

On a donc:

$$|2\vec{k}_1 - \vec{k}_s|^2 = |\vec{k}_1 - \vec{k}|^2 \approx \frac{n_b^2 \omega^2}{c^2} + \frac{8\omega^2 n_b^2}{c^2} \theta^2$$

$$\text{et } \delta_k \approx \frac{2\pi\lambda}{n_b \Lambda^2} \quad \text{avec } \Lambda = \frac{\lambda}{2\theta n_b}$$

Pour minimiser le désaccord à Bragg, on a donc intérêt à ce que le pas du réseau soit bien plus grand que la longueur d'onde. Il faut cependant noter que le terme correctif dû au désaccord à Bragg dépend aussi de la variation d'indice $\Delta n'$ induite et donc de l'intensité incidente. Comme on peut le constater sur la figure III-4, au delà de $50 \mu\text{m}$ et pour $\Delta n = 10^{-5}$, le désaccord à Bragg n'a qu'une faible influence.

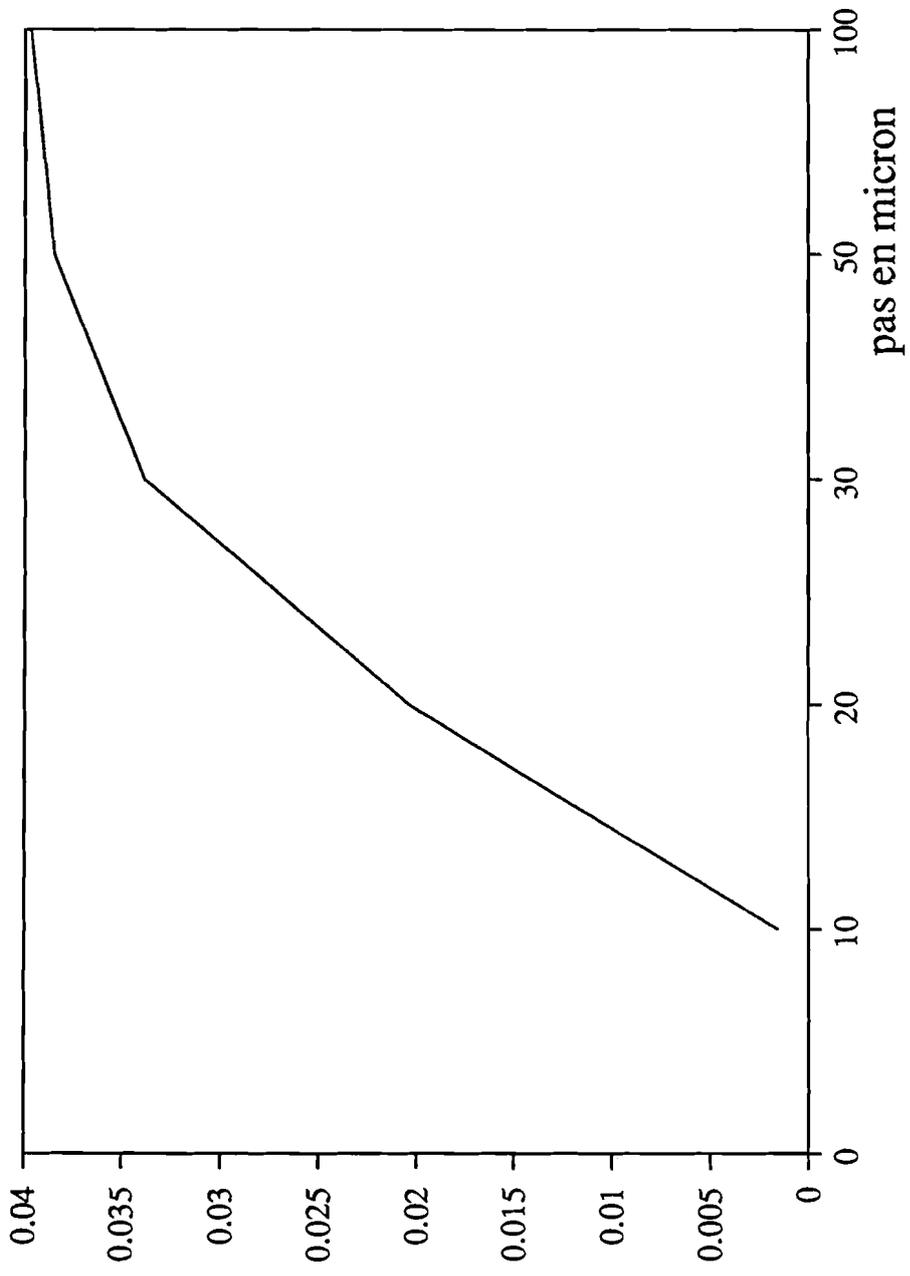


Fig III.4: réflectivité en milieu mince en fonction du pas du réseau pour une variation d'indice constante.

III.3 Conjugaison de phase par l'arrière.

a) Notations et hypothèses.

Nous nous plaçons dans le cas où une pompe avant \vec{E}_1 , une pompe arrière \vec{E}_2 , et une sonde \vec{E}_s sont incidentes sur le cristal. Les deux pompes sont contrepropageantes et nous nous proposons de déterminer la réflectivité

$\left| \frac{\vec{E}_c}{\vec{E}_s} \right|^2$, où \vec{E}_c est le faisceau issu du mélange d'ondes, conjugué en phase de \vec{E}_s .

On pose :

$$\vec{E}_1 = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_1 \exp(j(\omega t - \vec{k}_1 \cdot r)) + cc \right)$$

$$\vec{E}_2 = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_2 \exp(j(\omega t - \vec{k}_2 \cdot r)) + cc \right)$$

$$\vec{E}_s = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_s \exp(j(\omega t - \vec{k}_s \cdot r)) + cc \right)$$

$$\vec{E}_c = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_c \exp(j(\omega t - \vec{k}_c \cdot r)) + cc \right)$$

Nous allons considérer que les deux pompes \vec{E}_1 et \vec{E}_2 sont beaucoup plus puissantes que \vec{E}_s et \vec{E}_c . Nous allons négliger les interférences entre les deux pompes. La diffraction des ondes sur le réseau d'indice éventuellement photoinduit ne génère aucune onde se propageant dans la direction de la sonde ou du faisceau conjugué.

Dans cette hypothèse, l'intensité vibratoire du champ optique,

$$I_v = \left\langle \left| \vec{E}_1 + \vec{E}_2 + \vec{E}_s + \vec{E}_c \right|^2 \right\rangle \text{ s'écrit :}$$

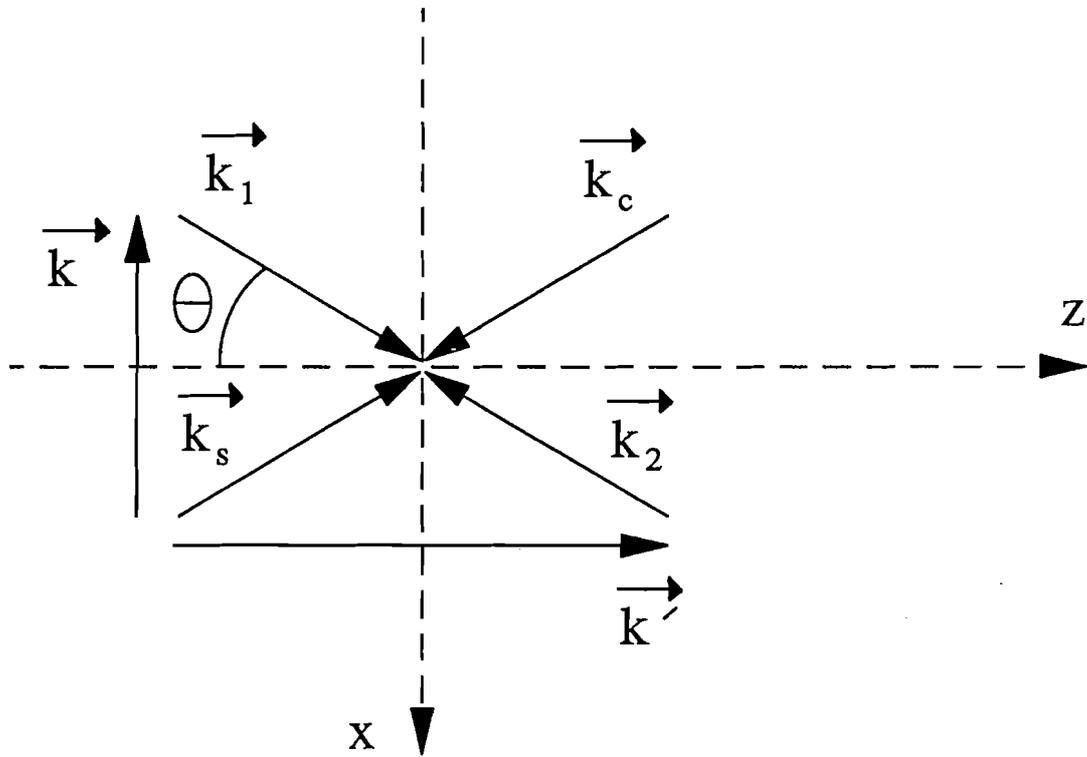


Fig III.5: Vecteurs d'onde des impulsions incidentes et vecteurs réseaux résultant des interférences.

$$I_v = \frac{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_2|^2 + |\vec{E}_s|^2 + |\vec{E}_c|^2}{2} + \frac{1}{2} \left(\vec{E}_1 \vec{E}_s^* \exp(j(\vec{k}_s - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}) \right. \\ \left. + \vec{E}_c \vec{E}_2^* \exp(j(\vec{k}_2 - \vec{k}_c) \cdot \vec{r}) + \vec{E}_1^* \vec{E}_c \exp(j(\vec{k}_1 - \vec{k}_c) \cdot \vec{r}) \right. \\ \left. + \vec{E}_2^* \vec{E}_s \exp(j(\vec{k}_2 - \vec{k}_s) \cdot \vec{r}) + cc \right)$$

Les deux pompes étant contrepropageantes, on a $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{0}$ et \vec{E}_c étant le conjugué de la sonde, on a $\vec{k}_s + \vec{k}_c = \vec{0}$ (voir fig III-5).

Nous posons $\vec{k} = \vec{k}_s - \vec{k}_1 = \vec{k}_2 - \vec{k}_c$ et $\vec{k}' = \vec{k}_1 - \vec{k}_c = \vec{k}_s - \vec{k}_2$

L'intensité I_v s'écrit alors :

$$I_v = \frac{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_2|^2 + |\vec{E}_s|^2 + |\vec{E}_c|^2}{2} + \frac{1}{2} \left\{ \left(\vec{E}_1 \vec{E}_s^* + \vec{E}_c \vec{E}_2^* \right) \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) \right. \\ \left. + \left(\vec{E}_1^* \vec{E}_c + \vec{E}_2 \vec{E}_s^* \right) \exp(j\vec{k}' \cdot \vec{r}) + cc \right\}$$

On distingue deux réseaux d'interférences lumineuses. Lorsque l'angle d'incidence θ est petit, le réseau de grand pas a pour vecteur réseau \vec{k} et le réseau de petit pas a pour vecteur réseau \vec{k}' .

\vec{k} et \vec{k}' sont donnés par :

$$\vec{k} = \frac{-\omega}{2cn_b \sin \theta} \vec{x} \quad \text{et} \quad \vec{k}' = \frac{\omega}{2cn_b \cos \theta} \vec{z}$$

b) Cas des non-linéarités dues à la création de porteurs.

Nous allons négliger la contribution à la non-linéarité du réseau de petit pas puisque le réseau d'indice créé par cette illumination va disparaître quasi-instantanément. En effet, les porteurs créés par ce réseau diffusent en un temps de quelques picosecondes ce qui est bien inférieur à la durée de l'impulsion. L'expérience a confirmé cette hypothèse. En effet, en croisant la polarisation de la pompe arrière par rapport aux polarisations de la pompe avant et de la sonde, aucun changement dans la valeur de la réflectivité n'a été observé.

Tenant compte uniquement du réseau de grand pas, la variation de la permittivité est donnée par :

$$\delta\epsilon_1 = -\frac{e^2}{\epsilon_o\omega^2} \left(\frac{n_1}{m_n^*} + \frac{p_1}{m_p^*} \right) \left(\frac{\exp(jkx) + cc}{2} \right)$$

Avec les mêmes hypothèses qu'au paragraphe III-2-a, nous obtenons :

$$\delta\epsilon_1 = -\frac{e^2}{\epsilon_o\omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \left(\frac{(\vec{E}_1\vec{E}_s^* + \vec{E}_c\vec{E}_2^*)\exp(j\vec{k}\cdot\vec{r}) + cc}{|\vec{E}_1|^2 + |\vec{E}_2|^2} \right)$$

En regroupant les termes en accord de phase dans l'équation de propagation

III-1, on obtient alors :

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} &= -jK \left[(\vec{E}_1\vec{E}_s^*)\vec{E}_s + (\vec{E}_c\vec{E}_2^*)\vec{E}_s \right] - \frac{\alpha}{2}\vec{E}_1 \quad (a) \\ \frac{\partial \vec{E}_2}{\partial z} &= +jK \left[(\vec{E}_1^*\vec{E}_s)\vec{E}_c + (\vec{E}_c^*\vec{E}_2)\vec{E}_c \right] + \frac{\alpha}{2}\vec{E}_2 \quad (b) \\ \frac{\partial \vec{E}_s}{\partial z} &= -jK \left[(\vec{E}_1^*\vec{E}_s)\vec{E}_1 + (\vec{E}_c^*\vec{E}_2)\vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2}\vec{E}_s \quad (c) \\ \frac{\partial \vec{E}_c}{\partial z} &= jK \left[(\vec{E}_1\vec{E}_s^*)\vec{E}_2 + (\vec{E}_c\vec{E}_2^*)\vec{E}_2 \right] + \frac{\alpha}{2}\vec{E}_c \quad (d) \end{aligned} \right\} \text{éq. III - 6}$$

$$\text{avec } K = \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \frac{\Delta n'}{|E_1|^2 + |E_2|^2} \quad \text{et } \Delta n' = \frac{-e^2}{2n_b \epsilon_0 \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right)$$

Nous pouvons remarquer que la polarisation du faisceau conjugué est la polarisation de la pompe arrière (équation III-6 d).

Ainsi que montré lors de l'étude de la génération des porteurs (figure II -16),

$$\Delta \epsilon_1 \text{ donc } \frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \text{ est proportionnel à l'énergie.}$$

Par suite $\frac{\Delta n'}{|E_1|^2 + |E_2|^2}$ est une constante indépendante de z. Elle est donc

égale au rapport de $\Delta n'$, calculé pour une intensité totale incidente $I_v^\circ = E_1^2(o) + E_2^2(l)$, divisé par cette même intensité.

Nous allons négliger les variations des intensités des pompes avant et arrière dues au couplage entre les ondes. Cette hypothèse est justifiée dans le cas où les deux pompes ont des puissances bien supérieures à celles des faisceaux sonde et conjugué. En effet, les variations sur \vec{E}_1 et \vec{E}_2 dues aux couplages sont proportionnelles soit à $|\vec{E}_1|$, soit à $|\vec{E}_2|$ (éq III 6a, 6b). Les variations de \vec{E}_s et \vec{E}_c quant à elles, sont proportionnelles soit à $|E_1|^2$, soit à $|E_2|^2$, soit à $|E_1 E_2|$ (éq III- 6c, 6d).

Les équations III- 6 deviennent alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} = -\frac{\alpha}{2} \vec{E}_1 \\ \frac{\partial \vec{E}_2}{\partial z} = \frac{\alpha}{2} \vec{E}_2 \\ \frac{\partial \vec{E}_s}{\partial z} = -jK \left[(\vec{E}_1^* \vec{E}_s) \vec{E}_1 + (\vec{E}_c^* \vec{E}_2) \vec{E}_1 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_s \\ \frac{\partial \vec{E}_c}{\partial z} = jK \left[(\vec{E}_1 \vec{E}_s^*) \vec{E}_2 + (\vec{E}_c \vec{E}_2^*) \vec{E}_2 \right] + \frac{\alpha}{2} \vec{E}_c \end{array} \right. \quad \text{éq III - 7}$$

Nous allons étudier dans un premier temps l'influence du rapport entre l'intensité des deux pompes sur l'intensité de l'onde conjuguée en négligeant l'absorption. Il apparaîtra alors que la réflectivité est maximale lorsque les deux pompes sont égales. Nous pourrions alors estimer la réflectivité en tenant compte de l'absorption.

α) Influence du rapport entre les deux pompes.

Nous reprenons le système d'équations III-7, que nous réécrivons :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial E_s}{\partial z} = -jK \left(|E_1|^2 E_s + E_1 E_2 E_c^* \right) \\ \frac{\partial E_c^*}{\partial z} = -jK \left(E_1^* E_2^* E_s + |E_2|^2 E_c^* \right) \\ \frac{\partial E_1}{\partial z} = 0 \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} = 0 \end{array} \right.$$

On remarque que :

$$\frac{\partial E_s}{\partial z} - \frac{E_1}{E_2} \frac{\partial E_c^*}{\partial z} = 0$$

$$\frac{\partial E_s}{\partial z} + \frac{E_2}{E_1} \frac{\partial E_c^*}{\partial z} = -jK \left(E_s + \frac{E_2}{E_1} E_c^* \right) \left(|E_1|^2 + |E_2|^2 \right)$$

En tenant compte de la condition initiale $E_c(l) = 0$, on a alors :

$$E_s(z) - \frac{E_1}{E_2} E_c^*(z) = E_s(l)$$

$$E_s(z) + \frac{E_2}{E_1} E_c^*(z) = \left(E_s(0) + \frac{E_2}{E_1} E_c^*(0) \right) \exp\left(-jK(|E_1|^2 + |E_2|^2)z\right)$$

que l'on peut réécrire :

$$E_s(0) - \frac{E_1}{E_2} E_c^*(0) = \left(E_s(0) + \frac{E_2}{E_1} E_c^*(0) \right) \exp\left(-jK(|E_1|^2 + |E_2|^2)l\right)$$

On a alors:

$$\frac{E_c^*(0)}{E_s(0)} = \frac{1 - \exp\left(-jK(|E_1|^2 + |E_2|^2)l\right)}{\frac{E_1}{E_2} + \frac{E_1^*}{E_2}}$$

On constate donc que $E_c(0)$ est bien le conjugué en phase de $E_s(0)$ et la réflectivité s'écrit :

$$R = \left| \frac{E_c^*(0)}{E_s(0)} \right|^2 = \frac{\sin^2\left(K(|E_1|^2 + |E_2|^2)\frac{l}{2}\right)}{\cos^2\left(K(|E_1|^2 + |E_2|^2)\frac{l}{2} + j \ln\left(\left|\frac{E_2}{E_1}\right|\right)\right)}$$

Comme on peut le remarquer sur la figure III- 6, la réflectivité est maximale lorsque les deux faisceaux pompes ont la même intensité.

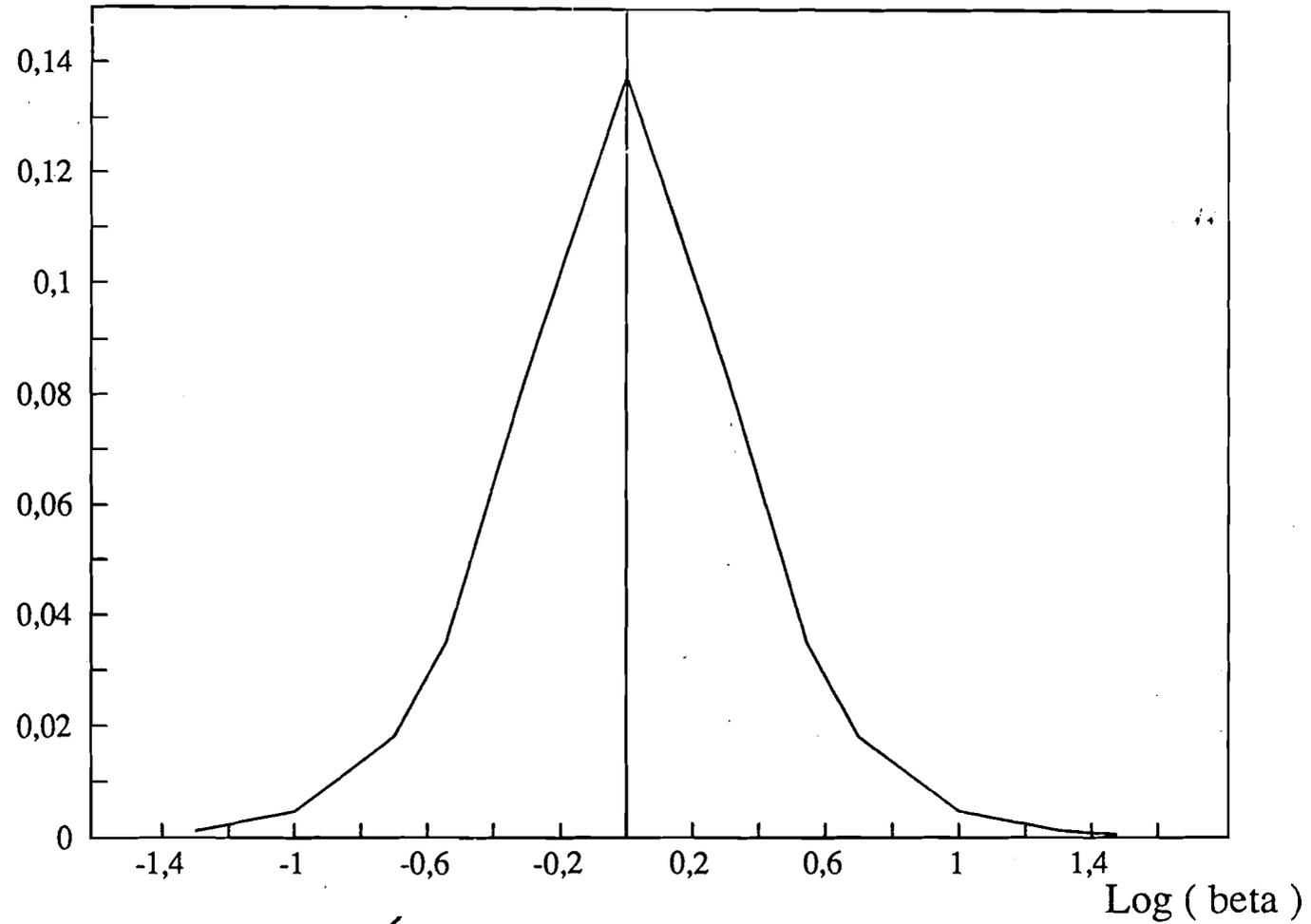


Fig III.6 Reflectivité du mélange à quatre ondes en fonction du rapport β des intensités des deux pompes.

Dans ce cas, la réflectivité est :

$$R = \operatorname{tg}^2 \left(\pi \frac{\Delta n' l}{\lambda \cos \theta} \right) \quad \text{éq. III-8}$$

β) Influence de l'absorption

Nous nous plaçons désormais dans le cas où les deux pompes sont d'égale intensité à l'entrée du cristal.

Nous posons :

$$\begin{aligned} E_1 &= A_1 \exp\left(-\frac{\alpha}{2} z\right) & , & \quad E_s = A_s \exp\left(-\frac{\alpha}{2} z\right) \\ E_2 &= A_2 \exp\left(+\frac{\alpha}{2} z\right) & , & \quad E_c = A_c \exp\left(+\frac{\alpha}{2} z\right) \end{aligned}$$

Les deux pompes étant égales à l'entrée du cristal, on a :

$$A_1 = A_2 \exp\left(+\frac{\alpha}{2} l\right)$$

Le système d'équations III-7 nous donne alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_s}{\partial z} &= -jK \left[|A_1|^2 A_s \exp(-\alpha z) + A_2 A_1 A_c^* \exp(\alpha z) \right] \\ \frac{\partial A_c^*}{\partial z} &= -jK \left[|A_2|^2 A_c^* \exp(\alpha z) + A_2^* A_1^* A_s \exp(-\alpha z) \right] \\ \frac{\partial A_1}{\partial z} &= 0 \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} &= 0 \end{aligned}$$

Comme au paragraphe précédent, on a :

$$\frac{\partial A_s}{\partial z} - \frac{A_1}{A_2^*} \frac{\partial A_c^*}{\partial z} = 0$$

$$\frac{\partial A_s}{\partial z} + \frac{A_2}{A_1^*} \frac{\partial A_c^*}{\partial z} = -jK \left[|A_1|^2 \exp(-\alpha z) + |A_2|^2 \exp(\alpha z) \right] \left(A_s + \frac{A_2}{A_1^*} A_c^* \right)$$

l'intégration des équations précédentes donne :

$$\ln \left(\frac{A_s(z) + \frac{A_2}{A_1^*} A_c^*(z)}{A_s(l)} \right) = \frac{jK}{\alpha} \left[|A_1|^2 (\exp(-\alpha z) - \exp(-\alpha l)) \right. \\ \left. + |A_2|^2 (\exp(\alpha l) - \exp(\alpha z)) \right]$$

qui se réécrit :

$$\ln \left(\frac{A_s(0) + \exp(-\frac{\alpha l}{2}) A_c^*(0)}{A_s(l)} \right) = jK \left[|E_1(0)|^2 + |E_2(l)|^2 \right] \frac{(1 - \exp(-\alpha l))}{\alpha}$$

où l'on a utilisé le fait que les deux pompes ont même intensité à l'entrée du cristal.

Comme $|E_1(0)|^2 + |E_2(l)|^2$ représente l'intensité vibratoire totale initiale, on a alors :

$$K \left[|E_1(0)|^2 + |E_2(l)|^2 \right] = \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' (I_v \text{ incident})$$

comme expliqué au début de ce paragraphe (III-3 a).

Le rapport des champs des ondes conjuguée et sonde à l'entrée du cristal est :

$$\frac{E_c^*(0)}{E_s(0)} = \frac{\sin\left(\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha}\right)\right)}{\cos\left(\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha}\right) - j \frac{\alpha l}{2}\right)}$$

la réflectivité R est donnée par :

$$R = \left| \frac{E_c^*(0)}{E_s(0)} \right|^2 = \frac{tg^2 \left[\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha}\right) \right]}{ch^2 \left(\frac{\alpha l}{2}\right) + sh^2 \left(\frac{\alpha l}{2}\right) tg^2 \left[\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n' \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha}\right) \right]} \quad \text{éq III - 9}$$

où nous avons utilisé la formule trigonométrique suivante :

a et b étant deux réels, $\cos(a + jb) = \cos(a)ch(b) + j \sin(a)sh(b)$.

Lorsque α devient proche de 0, on a:

$$\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha} \approx l$$

On retrouve l'expression de la réflectivité donnée par l'équation III-8.

c) Cas des non-linéarités dues au mouvement non-linéaire des porteurs.

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'établir rapidement les expressions de la réflectivité lorsque la non-linéarité est due aux mouvements non-linéaires des porteurs libres. Nous avons vu au chapitre I que cette non-linéarité était sensible uniquement à l'intensité des ondes et non à l'énergie comme dans le cas de la génération des porteurs libres.

D'autre part, le mouvement non-linéaire des porteurs ne fait intervenir aucun mécanisme de diffusion. Il est donc a priori indépendant du pas du réseau lumineux. Nous nous plaçons dans le cas du miroir à conjugaison de phase par l'arrière et nous reprenons les notations du chapitre III -3-a.

La variation de permittivité relative est ($\chi_{effr}^{(3)} = \frac{\chi_{eff}^{(3)}}{\epsilon_0}$):

$$\Delta\epsilon_r = \chi_{effr}^{(3)} \left[(\vec{E}_1 \vec{E}_s^* + \vec{E}_c \vec{E}_2^*) \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) + (\vec{E}_1^* \vec{E}_c + \vec{E}_2^* \vec{E}_s) \exp(j\vec{k}' \cdot \vec{r}) + cc \right]$$

et $\vec{k} = \vec{k}_s - \vec{k}_1$, $\vec{k}' = \vec{k}_1 + \vec{k}_s$ et $\chi_{effr}^{(3)} = \frac{e^4 n}{\epsilon_0 E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \frac{2\tau_{th}}{\tau_m} \frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3}$

Cette fois, tous les réseaux d'intensité interviennent dans la variation de permittivité, à condition bien sûr que toutes les polarisations des ondes soient parallèles. En regroupant les termes en accord de phase dans l'équation III -1, on obtient:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} &= -jK' \left[(\vec{E}_1 \vec{E}_s^*) \vec{E}_s + (\vec{E}_c \vec{E}_2^*) \vec{E}_s + (\vec{E}_1 \vec{E}_c^*) \vec{E}_c + (\vec{E}_s \vec{E}_2^*) \vec{E}_c \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_1 \\ \frac{\partial \vec{E}_2}{\partial z} &= +jK' \left[(\vec{E}_1^* \cdot \vec{E}_s) \vec{E}_c + (\vec{E}_c^* \vec{E}_2) \vec{E}_c + (\vec{E}_1^* \cdot \vec{E}_c) \vec{E}_s + (\vec{E}_s^* \cdot \vec{E}_2) \vec{E}_s \right] + \frac{\alpha}{2} \vec{E}_2 \\ \frac{\partial \vec{E}_s}{\partial z} &= -jK' \left[(\vec{E}_1^* \vec{E}_s) \vec{E}_1 + (\vec{E}_c^* \vec{E}_2) \vec{E}_1 + (\vec{E}_c^* \vec{E}_1) \vec{E}_2 + (\vec{E}_2^* \vec{E}_s) \vec{E}_2 \right] - \frac{\alpha}{2} \vec{E}_s \\ \frac{\partial \vec{E}_c}{\partial z} &= +jK' \left[(\vec{E}_1 \vec{E}_s^*) \vec{E}_2 + (\vec{E}_c \vec{E}_2^*) \vec{E}_2 + (\vec{E}_c \vec{E}_1^*) \vec{E}_1 + (\vec{E}_2 \vec{E}_s^*) \vec{E}_1 \right] + \frac{\alpha}{2} \vec{E}_c \end{aligned}$$

$$\text{avec } K' = \frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \frac{\chi_{effr}^{(3)}}{2n_b}$$

Nous nous plaçons dans le cas où les deux pompes ont même intensité.

Dans le cas où toutes les polarisations sont parallèles, on a :

$$\frac{\partial A_s}{\partial z} = -jK' \left[\left(|A_1|^2 \exp(-\alpha z) + |A_2|^2 \exp(\alpha z) \right) A_s + 2A_2 A_1 A_c^* \exp(\alpha z) \right]$$

$$\frac{\partial A_c^*}{\partial z} = -jK' \left[\left(|A_1|^2 \exp(-\alpha z) + |A_2|^2 \exp(\alpha z) \right) A_c^* + 2A_2^* A_1^* A_s \exp(-\alpha z) \right]$$

donc la solution est (39):

$$\frac{A_c^*(0)}{A_s(0)} = \frac{-4j \frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \exp\left(-\frac{\alpha l}{2}\right) \operatorname{tg}(\xi l)}{\alpha \operatorname{tg}(\xi l) + 2\xi}$$

$$\text{avec } \xi = \sqrt{\left(\frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \right)^2 - \left(\frac{\alpha}{2} \right)^2} \quad \text{et} \quad \Delta n = \frac{\chi_{eff}^{(3)}}{2n_b} \left(|E_1(0)|^2 + |E_2(l)|^2 \right)$$

Δn est égal à la variation d'indice induite par l'intensité totale non modulée et est relié à la densité de puissance lumineuse par :

$$\Delta n = n_2 I \quad \text{où} \quad n_2 = \frac{\chi_{eff}^{(3)}}{n_b^2 c}$$

La réflectivité est alors donnée par :

$$R = \frac{\left(\frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \right)^2 \exp(-\alpha l) \operatorname{tg}^2(\xi l)}{\left(\xi + \frac{\alpha}{2} \operatorname{tg}(\xi l) \right)^2} \quad \text{éq. III-10}$$

Dans le cas où la polarisation de la pompe arrière est orthogonale aux polarisations de la pompe avant et de la sonde, le calcul est identique à celui du paragraphe précédent III-2-b, et l'on a :

$$R = \left| \frac{E_c^*(0)}{E_s(0)} \right|^2 = \frac{tg^2 \left[\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha} \right) \right]}{ch^2 \left(\frac{\alpha l}{2} \right) + sh^2 \left(\frac{\alpha l}{2} \right) tg^2 \left[\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \left(\frac{1 - \exp(-\alpha l)}{\alpha} \right) \right]} \quad \text{éq. III - 11}$$

Ainsi, la réflectivité, dans le cas où toutes les polarisations des ondes sont parallèles, est environ quatre fois plus forte que dans le cas où les polarisations de la pompe avant et de la pompe arrière sont croisées.

Ceci apparait clairement lorsque l'on néglige l'absorption dans les équations III-10 et III-11. En effet, restant dans le cas de faibles non-linéarités, la réflectivité s'écrit :

$$\text{pour } \vec{e}_1 \text{ orthogonal à } \vec{e}_2 \quad R = tg^2 \left(\pi \frac{\Delta n l}{\lambda \cos \theta} \right) \approx \left(\pi \frac{\Delta n l}{\lambda \cos \theta} \right)^2$$

$$\text{pour } \vec{e}_1 \text{ parallèle à } \vec{e}_2 \quad R = tg^2 \left(2\pi \frac{\Delta n l}{\lambda \cos \theta} \right) \approx 4 \left(\pi \frac{\Delta n l}{\lambda \cos \theta} \right)^2$$

Dans le cas où $\vec{\epsilon}_1$ est parallèle à $\vec{\epsilon}_2$, il y a deux contributions principales à la génération de l'onde conjuguée. L'une provient de la diffraction de la pompe arrière sur le réseau créé par l'interférence de la pompe avant et de la sonde. L'autre provient de la diffraction de la pompe avant sur le réseau créé par l'interférence de la sonde et de la pompe arrière. Dans le cas où $\vec{\epsilon}_1$ est orthogonal à $\vec{\epsilon}_2$, seule la contribution du réseau entre la pompe avant et la sonde est à prendre en compte.

III.4 Discussion

Dans ce chapitre, nous avons montré que l'on peut obtenir des expressions analytiques pour les deux configurations de conjugaison de phase, par l'avant et par l'arrière.

Nous avons considéré que les densités électroniques modulées spatialement étaient proportionnelles à la modulation de la figure d'intensité comme cela était suggéré par nos expressions analytiques du chapitre II. Compte-tenu de cette hypothèse, nous avons résolu l'équation de propagation de Maxwell dans le cas où l'atténuation sur les pompes, due aux couplages, est négligeable. Cette dernière hypothèse, classique, est vérifiée uniquement lorsque les intensités des pompes sont bien plus puissantes que celle de la sonde.

Dans le cas du montage de conjugaison de phase par l'avant, nous avons établi une expression théorique tenant compte du désaccord à l'angle de Bragg du conjugué en phase. Pour nos conditions expérimentales, ce désaccord n'est pas négligeable et dépend de l'intensité incidente.

Dans le cas du montage de conjugaison de phase par l'arrière, nous avons vu que seules les interférences entre, la pompe avant et la sonde, la pompe arrière et le conjugué, étaient à prendre en compte pour les nonlinearités dues à la création de porteurs. Nous avons pu alors établir une expression analytique de la réflectivité dans le cas où les deux pompes ont même intensité à l'entrée du cristal.

Dans les deux configurations, il nous faut définir une modulation d'indice équivalente donnée par :

$$\Delta n' = \frac{-e^2}{2n_b \epsilon_0 \omega^2} \left(\frac{n'_0}{m_n^*} + \frac{p'_0}{m_p^*} \right) \text{ avec } n'_0 = \frac{n_1}{m} \text{ et } p'_0 = \frac{p_1}{m}$$

Cela résulte de la différence entre les modulations des réseaux d'électrons, de trous et d'illumination due à l'existence d'un réseau de charge dans les centres profonds.

Enfin, nous avons montré que dans le cas du mouvement anharmonique des porteurs libres, l'absence de phénomène de diffusion conduit à des expressions théoriques de la réflectivité différentes selon que les pompes ont des polarisations croisées ou parallèles. Cela permettra, dans nos expériences, de différencier ces deux non-linéarités.

Chapitre IV

Etude expérimentale

IV - Etude expérimentale

IV.1 Montages expérimentaux

Les montages expérimentaux sont représentés sur les figures IV-1 et IV-2. Nous disposons d'un laser Nd YAG émettant des impulsions de largeur à mi-hauteur 8 nanosecondes. Il est constitué d'un oscillateur et de deux barreaux amplificateurs. La longueur d'onde d'émission est $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$. La polarisation du laser est à sa sortie circulaire. Elle est rendue rectiligne à l'aide d'un prisme de Glan, la polarisation rejetée servant à une autre expérience. A l'aide d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur, nous pouvons alors contrôler l'énergie incidente sur le cristal. La tache laser, à la sortie du cube polariseur est très large, de l'ordre de 1 cm, et son profil spatial est assimilable à une forme rectangulaire plutôt que gaussienne (fig. IV-3). La polarisation du faisceau à la sortie du cube polariseur est perpendiculaire au plan de la figure IV-1 et IV-2.

La réflexion sur les faces avant et arrière d'une lame de verre prismatique LV1 forme le faisceau sonde et un faisceau de référence analysé par un joulemètre pour la mesure d'énergie.

Le faisceau transmis à travers la première lame (LV1) est divisé en deux faisceaux d'égale intensité par une séparatrice (S) (fig IV-1). Ces deux faisceaux constitueront les pompes avant et arrière de notre montage de conjugaison de phase par l'arrière. Les deux pompes traversent alors chacune une lentille (L1 et L2) de très grande distance focale (quelques mètres) de manière à augmenter par légère focalisation des faisceaux, l'énergie par unité de surface au niveau du cristal.

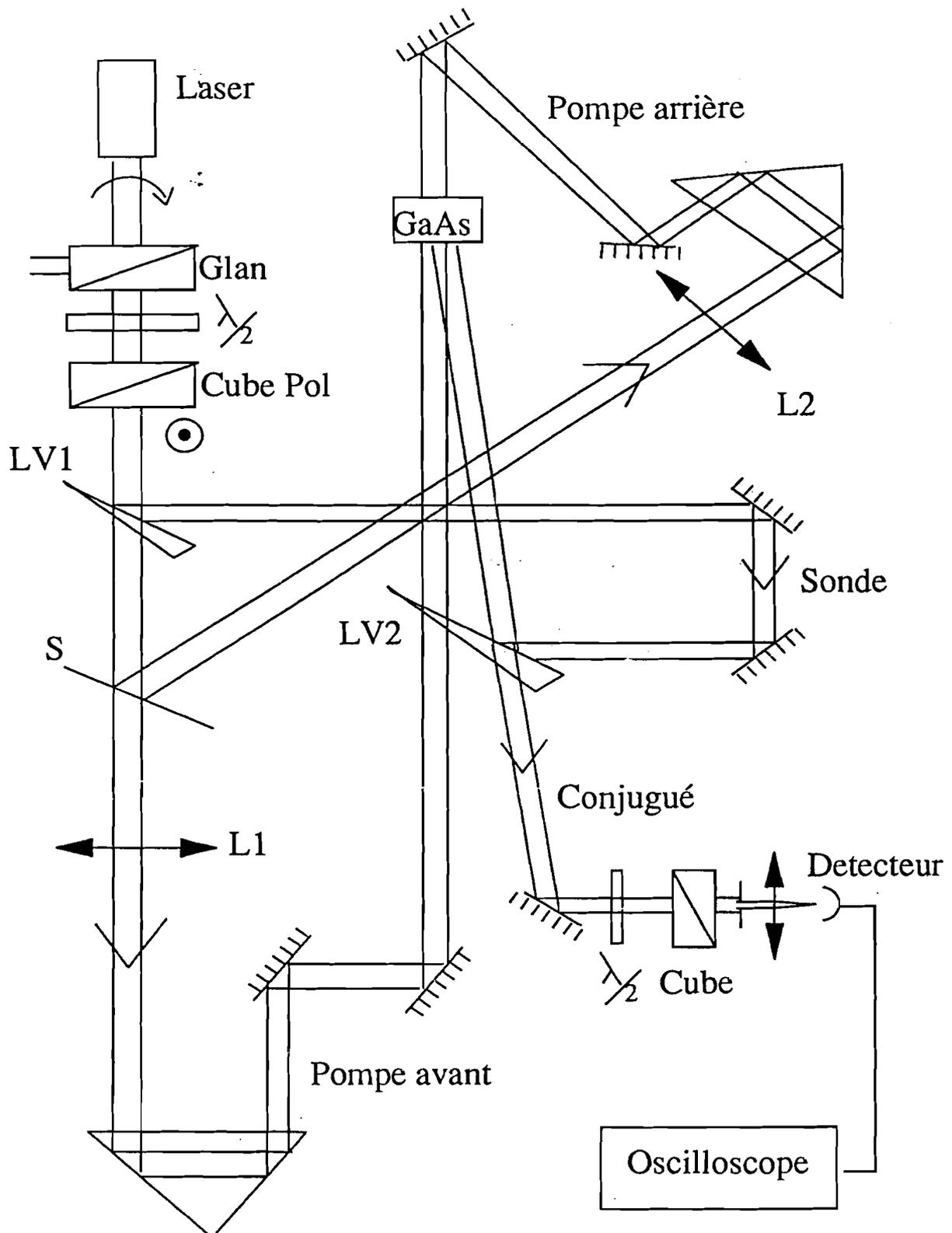


Fig IV.1: Montage expérimental de conjugaison de phase par l'arrière.

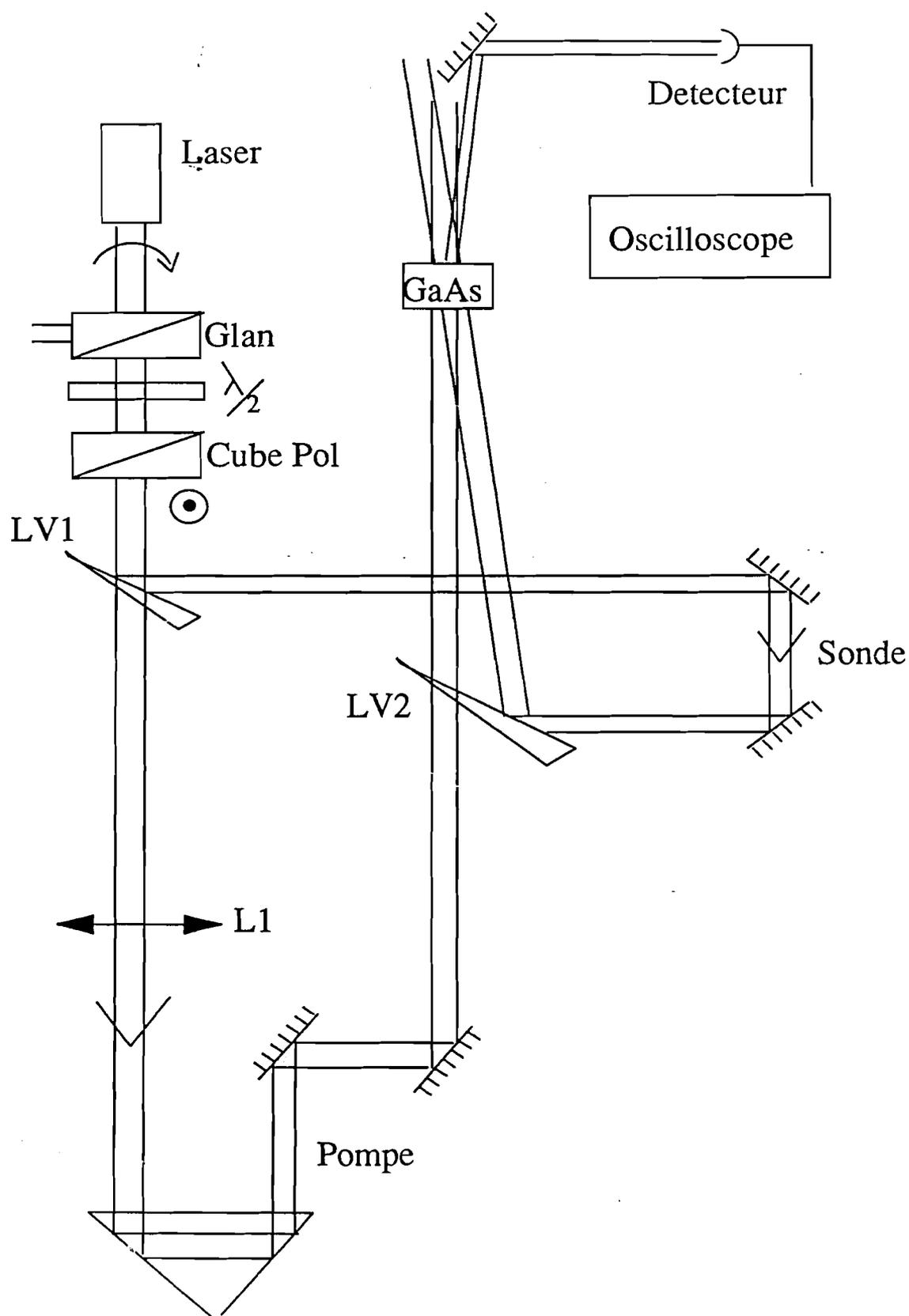


Fig IV.2: Montage expérimental de conjugaison de phase par l'avant.

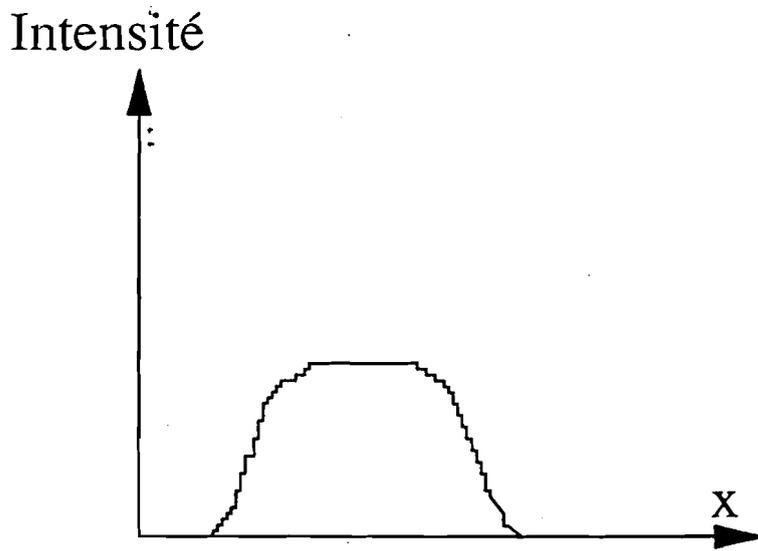


Fig IV.3: repartition de l'intensité dans la tache laser.

Ces deux pompes sont alors envoyées chacune sur un prisme, monté sur une platine de translation. Ce dispositif (ligne à retard) nous permet d'égaliser les chemins optiques entre chaque pompe et la sonde.

La sonde est de nouveau réfléchi par la face avant d'une lame de verre (LV2) prismatique. La pompe avant, quant à elle, traverse cette même lame de verre. On peut donc amener pratiquement en coïncidence la pompe avant et la sonde. Il est ainsi possible de réaliser de petits angles ($\approx 0,1^\circ$) entre la pompe et la sonde sans être trop gêné par les encombrements matériels des miroirs. Dans le cas du montage de conjugaison de phase par l'avant, (fig IV-2) la séparatrice S est enlevée et il n'y a plus alors que deux ondes incidentes sur le cristal.

Pour égaliser les chemins optiques entre la pompe avant et la sonde, on observe au microscope les franges d'interférence au niveau du cristal. La coïncidence des impulsions sonde et pompe avant est réalisée lorsque le contraste des franges est maximum. Ce réglage nous a permis de mesurer d'une part la longueur de cohérence de nos impulsions qui est d'environ 1,5 cm et d'autre part le pas du réseau d'interférence $\Lambda = 100\mu\text{m}$. Ce pas correspond à un angle de $0,15^\circ$ entre les faisceaux pompe et sonde à l'extérieur du cristal, soit 43 millidegré à l'intérieur du cristal. La ligne à retard de la pompe arrière est quant à elle réglée en mesurant les chemins optiques à l'aide d'un mètre avec une incertitude inférieure à 5 mm qui est bien inférieure à la longueur de cohérence. Le faisceau conjugué traverse une lame demi-onde et un cube polariseur qui servira à analyser sa polarisation.

Le faisceau conjugué est filtré par un trou T (diamètre 1,5mm) placé au centre de la tache puis focalisé sur une photodiode rapide. Nous sommes ainsi arrivés à nous affranchir de la diffusion de la pompe arrière par le cristal sur le détecteur pour le montage de conjugaison de phase par l'arrière et de celle de la pompe avant dans le cas de la conjugaison de phase par l'avant.

La distance entre le détecteur et le cristal est d'environ 3 m, ce qui permet d'isoler plus aisément le faisceau conjugué.

La photodiode rapide (temps de montée 0,5 ns) utilisée pour mesurer l'intensité du faisceau conjugué est reliée à un oscilloscope rapide de bande passante 350 MHz. Le signal est numérisé par une caméra reliée à un ordinateur puis moyenné sur environ 50 coups. Ne disposant pas à cette époque d'un système d'acquisition simultanée de deux signaux, le signal sonde et le signal conjugué sont mesurés l'un après l'autre. Le faisceau sonde est détecté par le même procédé, en remplaçant le cristal par un miroir. La réflectivité est alors calculée comme étant le rapport entre ces deux signaux (signal du conjugué divisé par le signal de la sonde).

Cette méthode de mesure induit une erreur systématique du fait des fluctuations de l'énergie. En effet, l'intensité du signal conjugué est proportionnelle au cube de l'énergie incidente tandis que celle de la sonde est proportionnelle à cette énergie.

Soit $\langle E \rangle$ l'énergie moyenne, et $\langle E^2 \rangle$ la moyenne du carré de l'énergie. Le signal conjugué moyen que nous mesurons est donc proportionnel à $\langle E \rangle^3 + 3\langle E^2 \rangle \langle E \rangle$ tandis que le signal sonde est proportionnel à $\langle E \rangle$.

La réflectivité mesurée est donc proportionnelle à $\langle E \rangle^2 + 3\langle E^2 \rangle$.

Les fluctuations relatives en moyenne de l'énergie $\frac{\sqrt{\langle E^2 \rangle}}{\langle E \rangle}$ sont de l'ordre de

10% à 20%. La réflectivité mesurée est donc comprise entre $\langle E \rangle^2(1 + 3\%)$ et $\langle E^2 \rangle(1 + 12\%)$. On commet donc une erreur systématique de mesure d'environ 10% liée au système de détection.

Pour les mesures d'absorption non-linéaire, nous avons utilisé un tiroir d'oscilloscope qui permet d'obtenir la différence entre deux signaux extraits d'une même impulsion. Nous avons pu mesurer ainsi la différence entre l'impulsion sonde, après qu'elle ait traversé le cristal, et une impulsion de référence. Lorsque la pompe est absente, la différence est rendue nulle par un choix convenable de densités sur l'impulsion référence. La variation de la différence entre le signal sonde et le signal de référence lorsque le cristal est illuminé par l'onde pompe peut être mesurée avec une précision de l'ordre de 4% environ.

L'énergie incidente sur le cristal est mesurée en remplaçant le cristal de GaAs par un trou de diamètre 1,5 mm derrière lequel nous plaçons un joulemètre. Le diamètre du trou a été choisi inférieur à la largeur spatiale de l'impulsion laser au niveau de notre échantillon ($\approx 3\text{mm}$). Le joulemètre nous permet alors de mesurer l'énergie efficace incidente sur notre cristal. Connaissant la fréquence de tir, nous pouvons alors remonter à l'énergie moyenne par impulsion. Dans nos expériences, la densité totale d'énergie à l'intérieur du cristal variera de $1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ à $80 \text{ mJ}/\text{cm}^2$.

IV.2 Résultats expérimentaux dans GaAs semi-isolant.

Deux phénomènes non-linéaires ont été mis en évidence : d'une part une absorption non-linéaire, et d'autre part la création d'un faisceau conjugué en phase.

a) Absorption non-linéaire

Pour étudier la variation de transmission du cristal de GaAs induite par l'illumination, on utilise le montage de la figure IV-2 et on mesure les intensités du faisceau sonde à la sortie du cristal en présence (I_s avec pompe) et en l'absence (I_s sans pompe) du faisceau pompe.

Les polarisations respectives de la pompe et de la sonde sont croisées afin d'éliminer toute possibilité éventuelle de couplage entre ces deux faisceaux. La variation de transmission a été mesurée sur l'échantillon long. Elle est présentée sur la figure IV-4. A basse énergie, aux alentours de 20 mJ/cm^2 , on observe une augmentation de transmission. Comme nous l'avons expliqué au chapitre II, cette diminution d'absorption est due à la redistribution de concentration entre les centres ionisés EL2^+ et non ionisés $\text{EL2} - \text{EL2}^+$ qui conduit à une égalisation des taux de génération des électrons et des trous. A haute énergie, ce phénomène est masqué par l'apparition d'autres mécanismes, l'absorption des porteurs libres et l'absorption à deux photons ainsi que nous allons le montrer.

La variation d'absorption $\Delta\alpha$ est reliée aux intensités mesurées par :

$$\frac{I_s \text{ (sans pompe)}}{I_s \text{ (avec pompe)}} \approx \exp(\Delta\alpha\ell)$$

$$\text{avec } \Delta\alpha = (S_n - S_p) \left(N_{D1}^+ - N_D^+ \right) + S_e n_o + \beta I \quad \text{éq. IV - 1}$$

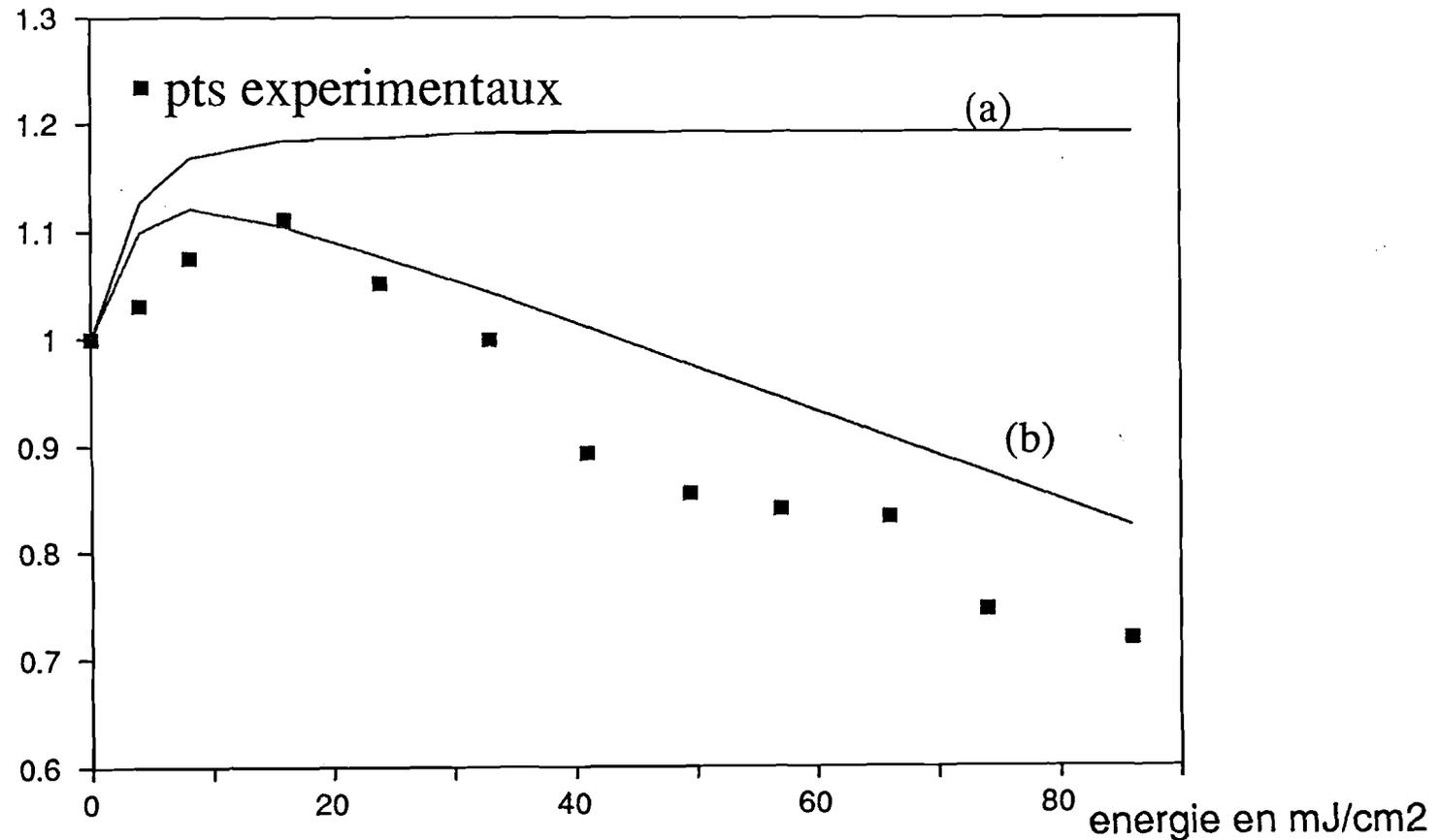


Fig IV.4: Variation de transmission de GaAs semi-insolant en fonction de l'énergie incidente. Les courbes théoriques (a-b) représentent la variation de transmission en tenant compte uniquement de l'évolution de EL2+ (a), ou bien de l'évolution de EL2+, de l'absorption à 2 photons et l'absorption par les porteurs libres (b).

Le premier terme de l'équation IV- 1 représente la variation d'absorption causée par la redistribution des charges dans les centres profonds, le second est la contribution des porteurs libres avec une section efficace S_e ($S_e = 0,610^{-18} \text{ cm}^2$), et le troisième terme correspond à l'absorption à deux photons ($\beta = 25 \text{ cm/GW}$).

La valeur de N_{D0}^+ est calculée au sommet de l'impulsion à l'aide de notre programme de simulation (chapitre II). Si l'on tient compte uniquement de la redistribution de concentration dans les centres EL2, on obtient alors la courbe 16 du chapitre II reportée en courbe (a) sur la figure IV-4.

L'accord entre la courbe (a) et les résultats expérimentaux pour des énergies inférieures à 20 mJ/ cm^2 montre que l'absorption par les électrons libres ainsi que l'absorption à deux photons sont négligeables à ces énergies. La contribution des électrons libres à l'absorption est calculée en donnant à la densité d'électrons n_o la valeur déterminée au sommet de l'impulsion à l'aide de notre programme de simulation. L'intensité est prise également au sommet de l'impulsion. Elle est donnée par $I \approx E/T_L$. La variation d'absorption $\Delta\alpha$ (équation IV-1) ainsi calculée conduit à la courbe (b) de la figure IV-4 qui rend compte de l'augmentation de transmission à basse énergie et de l'augmentation d'absorption à haute énergie. L'accord entre les résultats expérimentaux et la courbe (b) montre que ces variations d'absorption peuvent être décrites à l'aide de ces trois mécanismes.

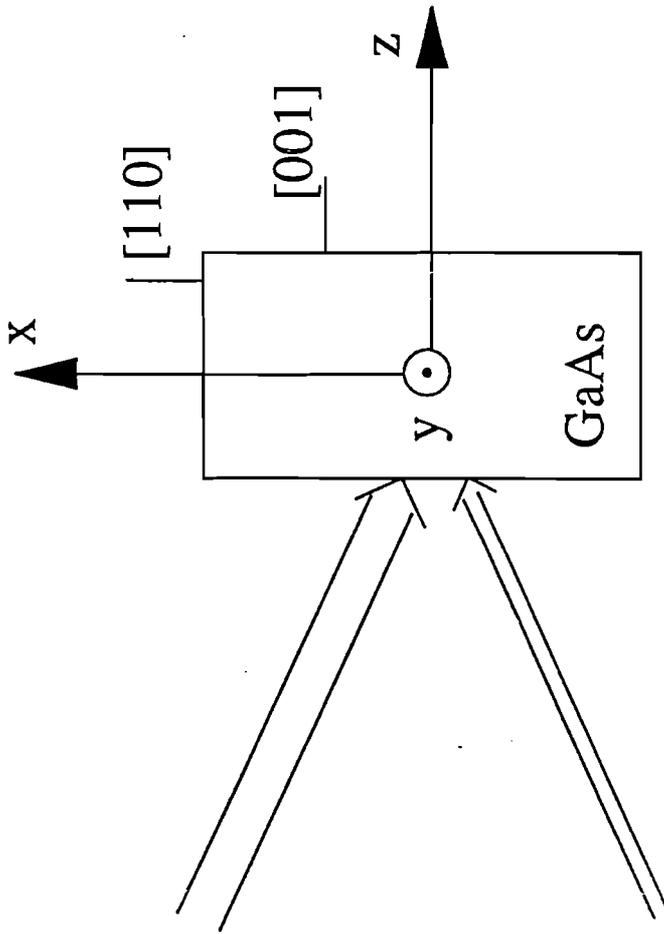


Fig IV.5: Orientation des x,y et z par rapport aux axes cristallographiques.

b) Conjugaison de phase.

Le cristal est orienté de manière à ce que les faisceaux se propagent le long de l'axe (001) (fig IV-5). Le vecteur réseau est alors orienté le long de la direction (110). Cette configuration nous permet d'éviter toute contribution photoréfractive⁽⁴⁰⁾ à la non-linéarité produisant l'onde conjuguée. Dans les deux configurations étudiées (conjugaison de phase par l'avant et par l'arrière), afin d'identifier le faisceau conjugué, nous vérifions qu'il n'apparaît que lorsque les deux ondes ou trois ondes incidentes sont présentes dans le cristal.

Ensuite, en croisant la polarisation de la pompe avant par rapport à la sonde, nous vérifions également que le faisceau conjugué disparaît confirmant que le réseau de petit pas formé par interférence de la sonde et de la pompe arrière ne contribue pas à la non linéarité due à la création de porteurs dans GaAs semi-isolant.

α) Conjugaison de phase vers l'avant

Dans un premier temps, nous étudions la réflectivité du montage conjugaison de phase vers l'avant avec l'échantillon mince. La modulation de la figure d'interférence est 0,2 , soit un rapport entre les intensités des faisceaux pompe et la sonde de 100. Sur la figure IV-6 sont présentés les résultats expérimentaux de conjugaison de phase par l'avant. La réflectivité corrigée des réflexions de Fresnel croît avec l'énergie selon un comportement quadratique jusqu'à une énergie d'environ $70 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. La valeur théorique de la réflectivité est calculée en utilisant l'équation III -4 où $\Delta n'$ est calculé au sommet de l'impulsion à l'aide de notre programme de simulation (chapitre II). Au delà notre premier modèle ne rend pas compte de la saturation observée expérimentalement. Nous reviendrons sur ce point plus loin.

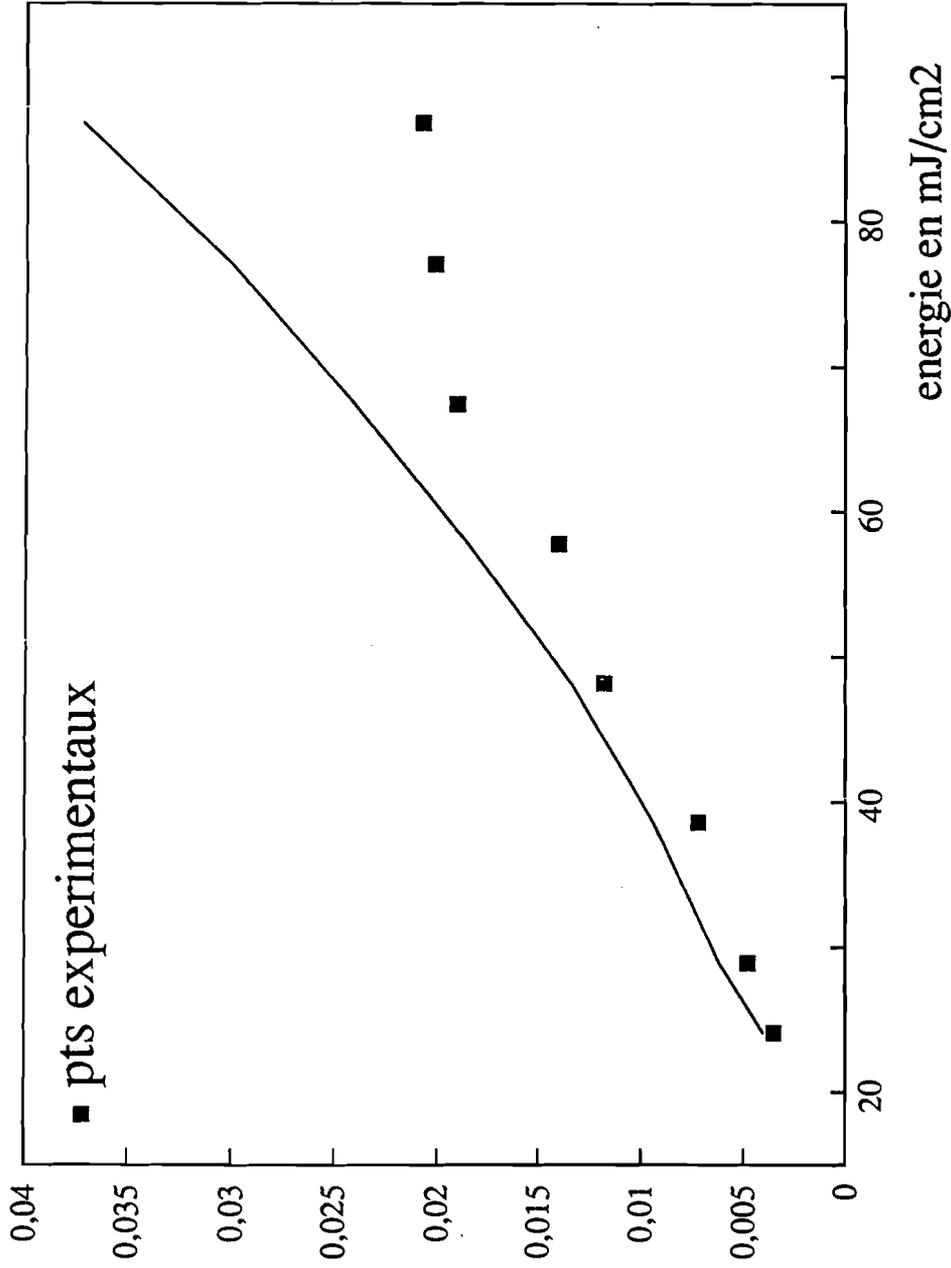


Fig IV.6: Réflectivité dans GaAs semi-isolant mince ($l=500$ micron) en fonction de l'énergie incidente. La courbe théorique (—) est déduite de l'équation III.4.

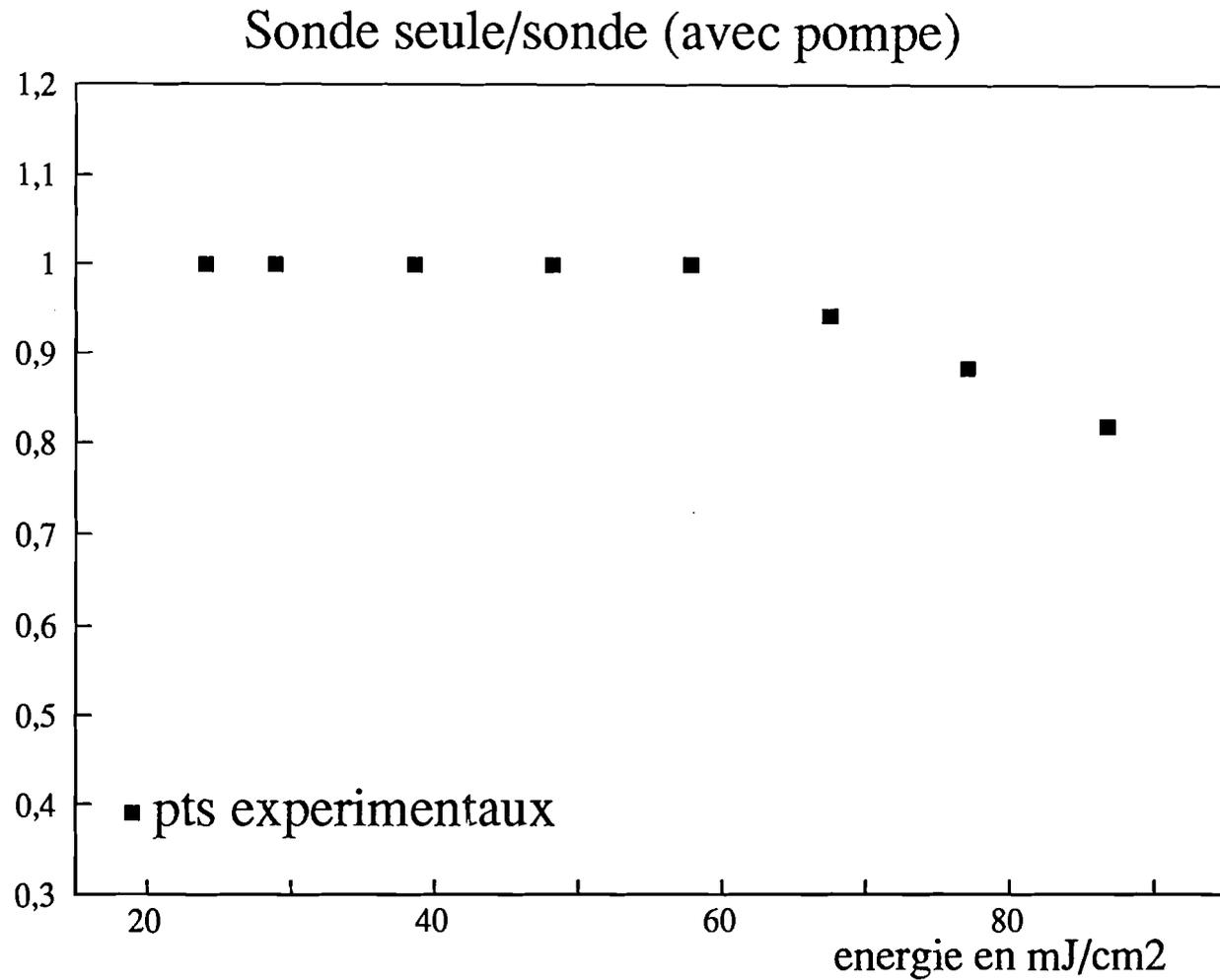


Fig IV.7: Variation de transmission de GaAs semi-isolant mince ($l = 500$ micron) en fonction de l'énergie incidente.

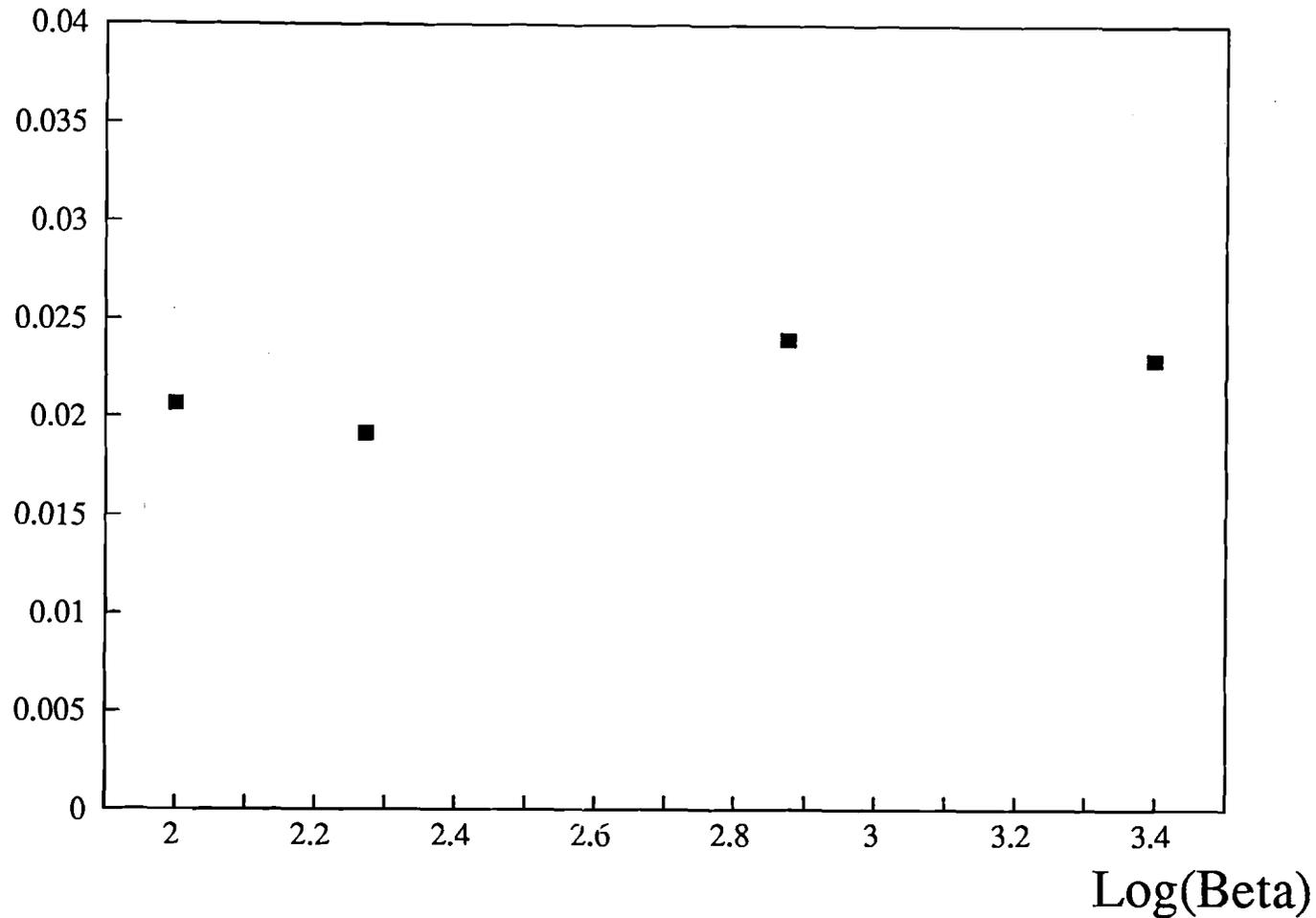


Fig IV.8: Variation de la réflectivité en conjugaison de phase par l'avant dans GaAs semi-isolant en fonction du rapport beta entre la pompe et la sonde pour une énergie incidente de 86 mJ/cm².

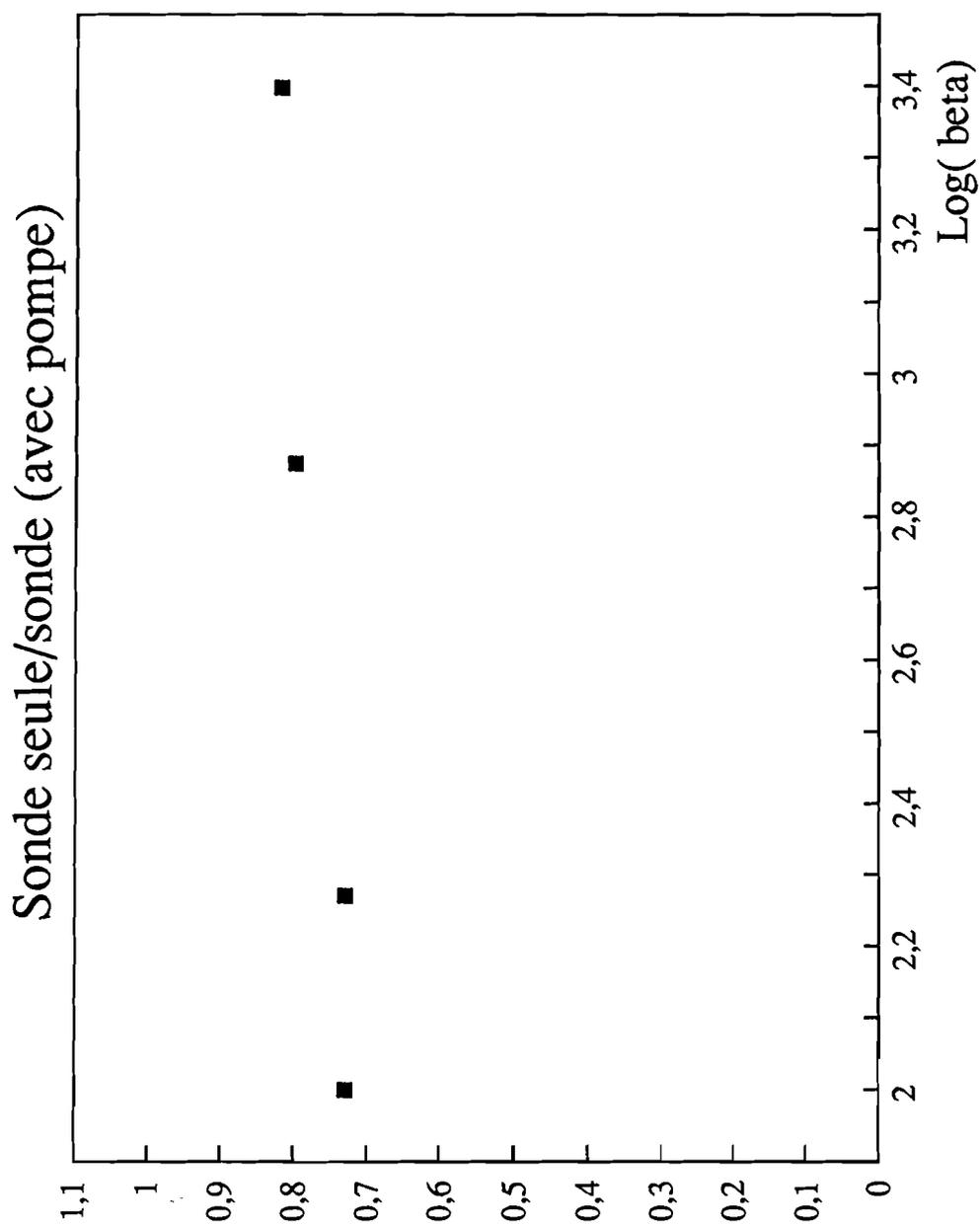


Fig IV.9: Variation de transmission de GaAs semi isolant mince ($l= 500$ micron) en fonction du rapport beta entre la pompe et la sonde pour une énergie de 86 mJ/cm.^2

Une des applications envisagée était l'amplification d'un signal par un mélange à ondes multiples. Il est en effet possible d'obtenir un transfert d'énergie d'un faisceau pompe intense vers un signal faible dans les milieux minces comme nous l'avons montré au chapitre III.

Nos expériences montrent que ce n'est pas efficace dans GaAs semi-insolant car la variation d'indice $\Delta n'$ est trop faible. La variation relative de transmission attendue est en effet égale à la réflectivité du miroir à conjugaison de phase par l'avant. Celle-ci valant environ 1% à 30 mJ/cm^2 , elle était trop faible pour être détectée étant donnée l'imprécision des mesures (erreur systématique de 10%) due aux fluctuations du laser et aux limitations du système de détection. Nous avons même observé une légère atténuation de la sonde aux très hautes énergies (fig IV-7). Ce phénomène est indépendant des polarisations respectives de la pompe et de la sonde et est expliqué par l'absorption non-linéaire que nous avons déjà dû introduire précédemment. Nous avons également fait varier le rapport entre les intensités des faisceaux sonde et pompe. La réflectivité et l'absorption non-linéaire apparaissent alors comme indépendantes du rapport entre l'intensité de la pompe et de la sonde (fig IV-8 et IV- 9) à condition qu'il reste grand.

β) Conjugaison de phase par l'arrière.

Les réflectivités expérimentales, corrigées des pertes de Fresnel, sont présentées sur la figure IV- 10 pour l'échantillon mince et sur la figure IV- 11 pour l'échantillon épais. La modulation des franges d'interférence entre la pompe avant et la sonde est de 0,2. Cela équivaut à un rapport entre les intensités de chaque pompe et l'intensité de la sonde de $\beta = 25$. La réflectivité mesurée est indépendante de la direction de polarisation de la pompe arrière.

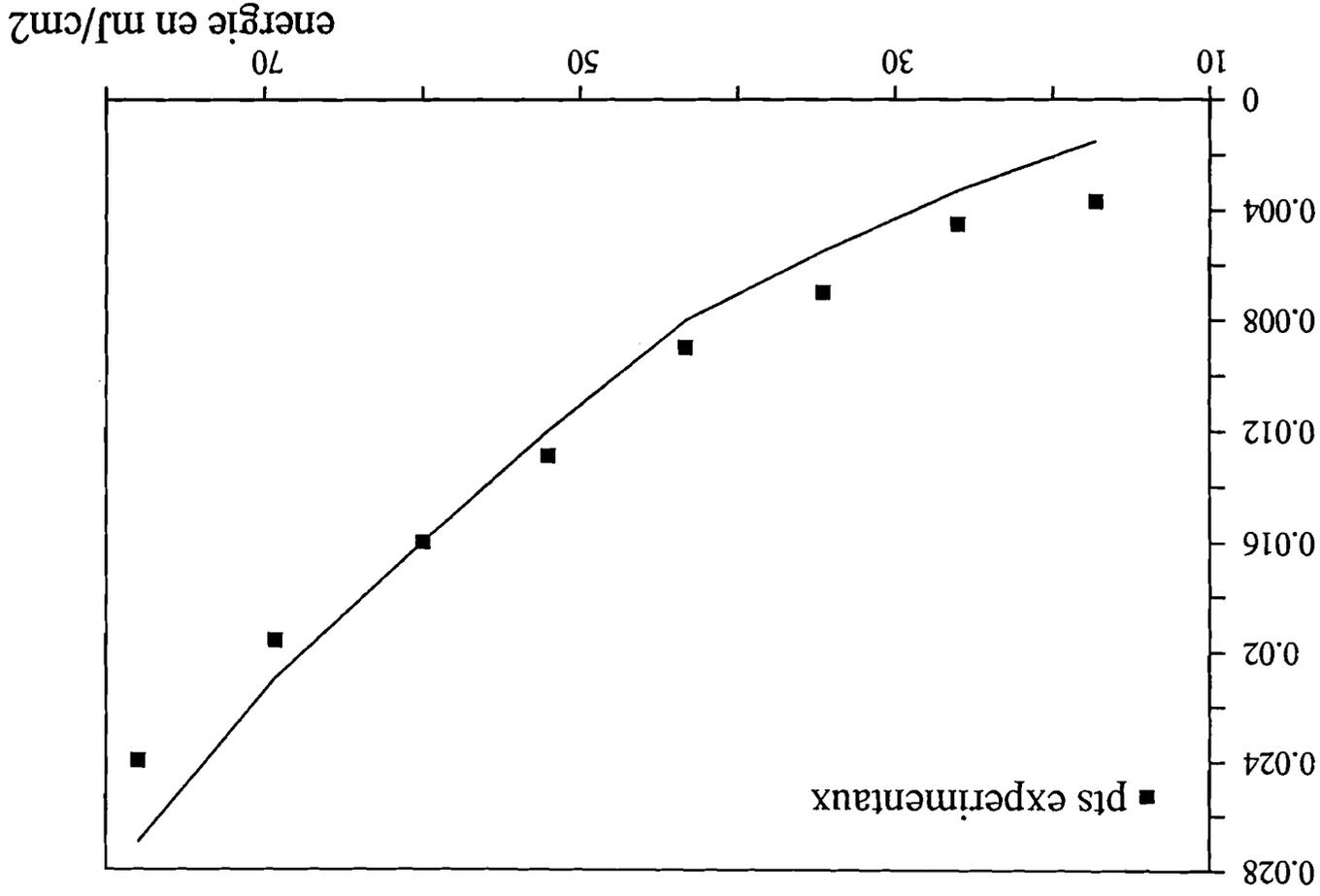


Fig IV.10: Réflectivité en conjugaison de phase par l'arrière dans GAs semi-isolant mince ($\lambda = 500$ micron) en fonction de l'énergie incidente. La courbe théorique (—) est déduite de l'équation III.9.

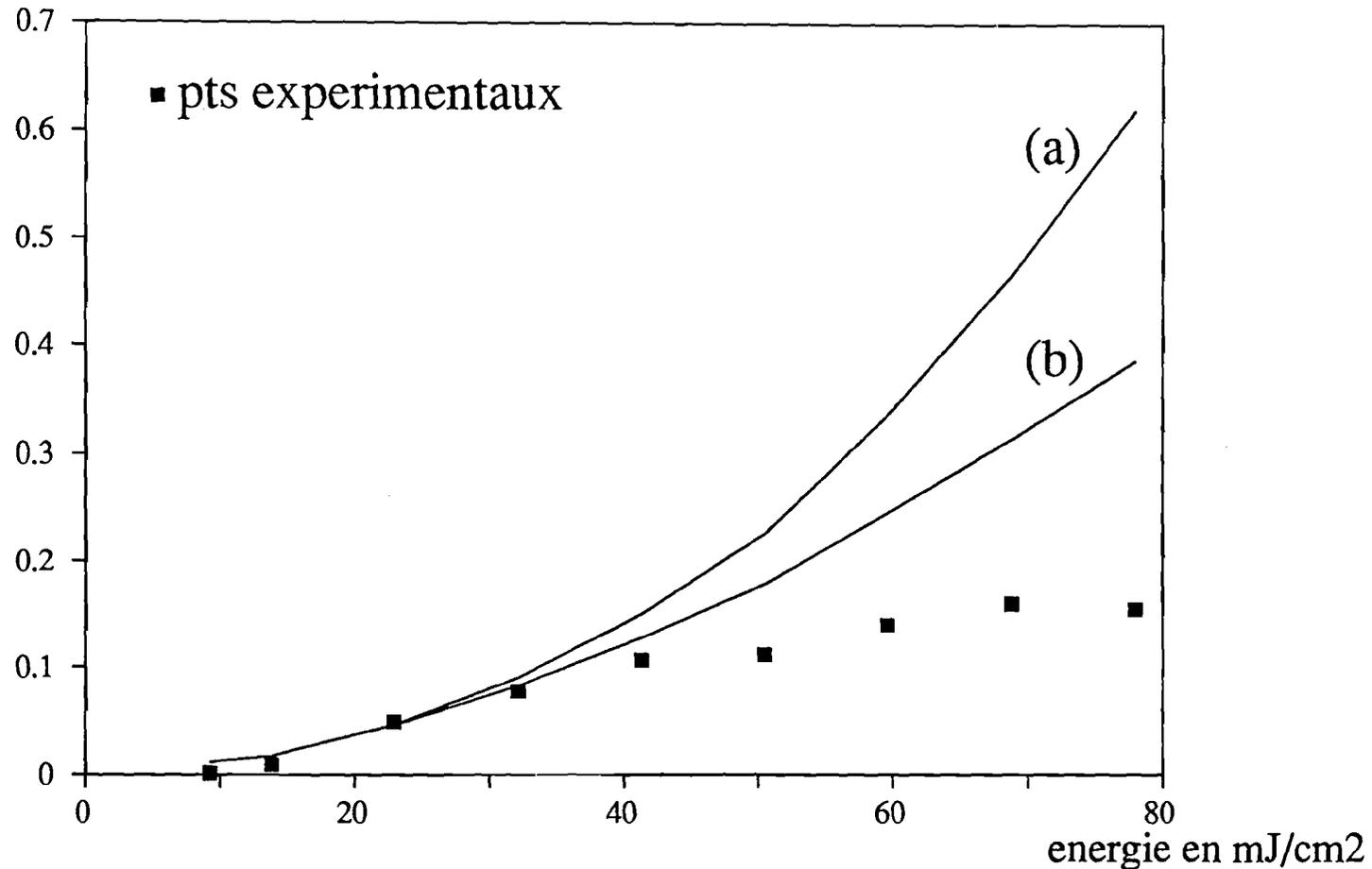


Fig IV.11: Réflectivité en conjugaison de phase par l'arrière dans GaAs semi-isolant épais en fonction de l'énergie incidente. Les courbes théoriques (a) et (b) sont déduites de l'équation III.9 . On prend en compte l'absorption nonlinéaire dans la courbe (b).

Ceci confirme l'hypothèse du chapitre III. Le réseau d'indice créé par interférence entre la pompe arrière et la sonde disparaît instantanément. Sa contribution est négligeable et peut-être omise dans le calcul de la réflectivité. Nous avons d'autre part vérifié que le faisceau conjugué en phase a bien la même polarisation que le faisceau pompe arrière, comme il a été prévu lors de la résolution des équations complexes au chapitre III.

La valeur théorique de la réflectivité est calculée à l'aide de l'équation 9 du chapitre III où $\Delta n'$ est évalué au sommet de l'impulsion à l'aide de notre programme de simulation (Ch. II).

Sur la figure IV- 10, on observe un bon accord entre la réflectivité mesurée dans l'échantillon mince et la courbe théorique tant que l'énergie reste en deçà de $70 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Nous reviendrons par la suite sur ce point. Sur la figure IV- 11, sont comparées les réflectivités théorique (courbe IV- 11 a) et expérimentale obtenues pour l'échantillon long. La courbe théorique s'écarte fortement de la réflectivité mesurée pour les densités d'énergies supérieures à $50 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Au delà le modèle ne rend pas compte de la saturation. Un premier complément peut-être apporté en tenant compte, dans l'expression de la réflectivité, de l'absorption non-linéaire observée précédemment. En toute rigueur, on devrait introduire un coefficient d'absorption dépendant de l'énergie dans les équations de propagation. Il n'y a pas de solution analytique à ce problème. Aussi nous nous sommes contentés de remplacer, dans l'équation III-9, le coefficient d'absorption linéaire par le coefficient d'absorption linéaire plus l'absorption non-linéaire calculée avec l'équation IV-1 pour l'énergie totale incidente. Cela revient à surestimer l'influence de l'absorption non-linéaire. Moyennant cette hypothèse, nous avons obtenu la courbe (b) de la figure IV- 11.

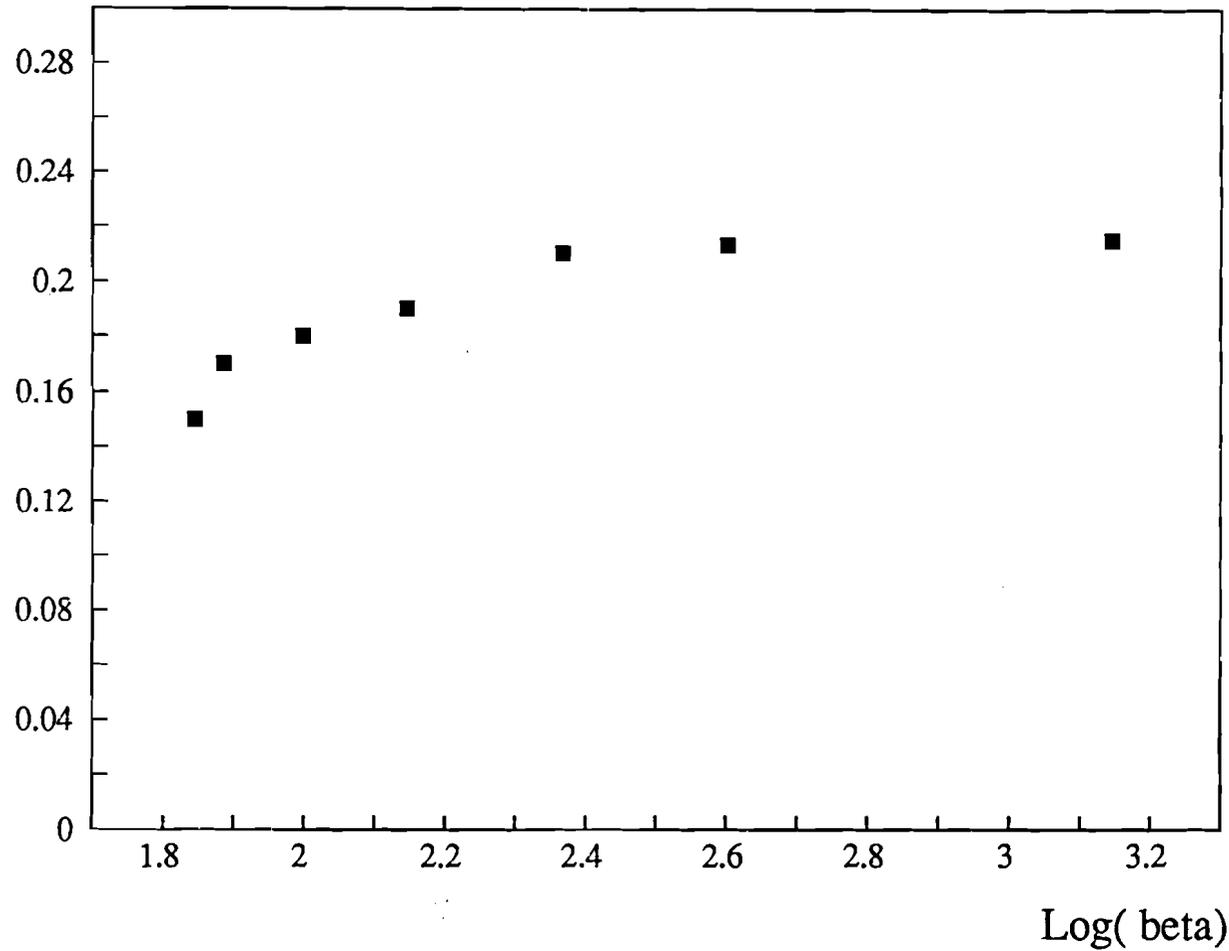


Fig IV.12: Variation de la réflectivité dans GaAs semi isolant épais en fonction du rapport β entre la pompe et la sonde pour une energie de 80 mJ/cm^2 .

On constate alors que si l'accord est toujours acceptable pour une énergie inférieure ou égale à $50 \text{mJ}/\text{cm}^2$, cette absorption non-linéaire ne rend pas compte de la saturation de la réflectivité observée malgré la légère surestimation de son influence. Nous reviendrons par la suite sur ce point. La réflectivité mesurée en fonction de l'énergie apparaît indépendante du rapport entre chaque pompe et la sonde dès lors qu'il excède 300 (fig IV- 12). La valeur atteinte est d'environ 20% et se situe toujours en deçà de la valeur prédite par notre modèle.

c) Discussion.

Nous avons pu mettre en évidence expérimentalement la possibilité de créer des réseaux d'indices dans GaAs à $1,06 \mu\text{m}$ en excitant des électrons et des trous à partir des centres profonds EL2. Cela conduit à une redistribution entre les concentrations en EL2^0 et EL2^+ que nous mettons en évidence en mesurant les variations de transmission de l'échantillon induites par le faisceau pompe. Les courbes de réflectivité théorique sont en accord avec nos valeurs mesurées pour l'échantillon mince tant que l'énergie ne dépasse pas $70 \text{mJ}/\text{cm}^2$. Au delà l'écart reste faible. L'accord est moins bon pour notre échantillon long et au delà de $50 \text{mJ}/\text{cm}^2$, le désaccord peut atteindre jusqu'à 100%. L'absorption non-linéaire ne permet pas d'expliquer cet écart. Il nous faut donc introduire d'autres mécanismes physiques limitant l'augmentation de la variation d'indice avec l'énergie. Nous pensons que le mouvement anharmonique des électrons doit intervenir à haute énergie. Ce mécanisme non-linéaire étant prépondérant dans les cristaux de GaAs dopés n, nous mesurerons sa contribution à la réflectivité dans un tel échantillon et ferons ensuite la correction nécessaire pour le cristal de GaAs semi-isolant pour lequel cet effet se superpose à la non linéarité résultant de la génération de porteurs.

IV.3 Résultats expérimentaux dans GaAs dopé n.

Comme nous l'avons dit au chapitre I, la contribution du mouvement non-linéaire des porteurs a déjà été mesurée dans GaAs à $1,06\mu\text{m}$ par une expérience de type plasmon (8). Cependant, le manque d'information sur les conditions expérimentales et les caractéristiques du cristal utilisé nous ont conduit à refaire l'étude de cette non-linéarité par une expérience de mélange à quatre ondes.

Notre échantillon de GaAs dopé n a une densité d'électrons libres dans la bande de conduction $n \approx 210^{18} \text{cm}^{-3}$, une épaisseur de $300\mu\text{m}$ et son absorption vaut 10cm^{-1} . Cet échantillon est introduit dans notre interféromètre de la figure IV-1. Les ondes se propageant selon la direction (001) et les vecteurs réseaux \vec{k} et \vec{k}' sont inscrits selon les directions (110) et (001) (petit angle entre les faisceaux sonde et pompe avant). La modulation du réseau d'intensité entre la pompe avant et la sonde et la pompe arrière et la sonde est de 0,2.

La non linéarité est analysée en mesurant l'intensité du faisceau conjugué par l'arrière. La réflectivité obtenue est représentée sur la figure IV-13. Elle dépend de la direction de polarisation de la pompe arrière. Lorsque les polarisations de toutes les ondes sont parallèles on observe une réflectivité quatre fois plus forte que lorsque les polarisations des deux pompes sont orthogonales entre elles. Ceci confirme que la non linéarité due aux mouvements non-linéaires des porteurs est indépendante du pas du réseau induit. Les contributions des réseaux de petit pas (interférence entre la pompe arrière et la sonde) et de grand pas (interférence entre la pompe avant et la sonde) sont égales. La valeur de la réflectivité est calculée à l'aide des équations III-10 et III-11 et ajustée aux résultats expérimentaux en faisant varier Δn la variation d'indice induite.

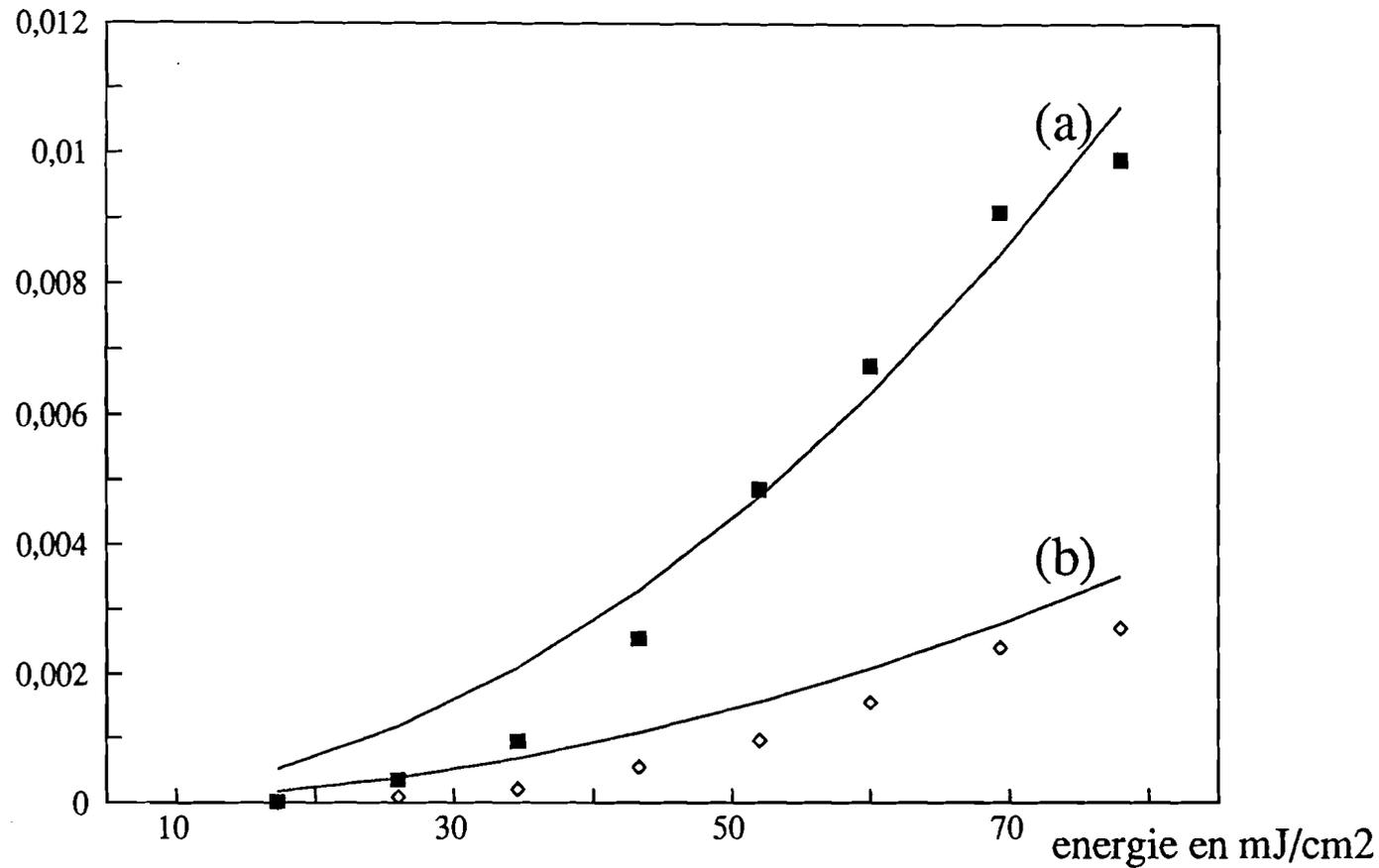


Fig IV.13: Réflectivité en conjugaison de phase par l'arrière dans GaAs dopé n en fonction de l'énergie incidente lorsque les polarisations des pompes sont parallèles (■) ou croisées (◊). Les courbes théoriques (a) et (b) sont déduites des équations III.10 et III.11.

Un bon accord est obtenu pour $n_2 = 810^{-7} \text{ cm}^2/\text{MW}$.

A titre de comparaison, une estimation de n_2 peut-être obtenue à partir de paramètres publiés dans la littérature. Sachant que :

$$n_2 = \frac{\chi_{effr}^{(3)}}{n_b^2 c} \quad \text{et que } \chi_{effr}^{(3)} \text{ est donné par :}$$

$$\chi_{effr}^{(3)} = \frac{e^4 n}{\epsilon_o E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \frac{2\tau_{th}}{\tau_m} \frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3}$$

et que le rapport $\frac{2\tau_{th}}{\tau_m}$ vaut entre 10 et 20 (10), nous calculons un indice non-

linéaire n_2 de : $n_2 = 4,4 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{MW}$ (en prenant $\frac{2\tau_{th}}{\tau_m} = 15$).

La génération d'une onde conjuguée en phase vers l'avant a aussi été obtenue avec ce cristal de GaAs dopé n (montage de la figure IV.2). La réflectivité, mesurée pour une modulation d'intensité de 0,2 est présentée sur la fig IV.14. La réflectivité est peu différente de celle obtenue avec le montage de conjugaison de phase par l'arrière lorsque toutes les polarisations sont parallèles et nous redonne un coefficient non-linéaire n_2 de l'ordre de $8 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{MW}$.

L'ordre de grandeur de la réflectivité expérimentale est en accord avec ce que l'on a pu estimer à l'aide de notre modèle théorique basé sur le mouvement anharmonique des porteurs. La dépendance du conjugué en phase en fonction de la polarisation de la pompe arrière nous montre que cette non-linéarité ne dépend pas d'un processus de diffusion des porteurs. Ces deux points nous montrent que la contribution du mouvement anharmonique des porteurs est à l'origine de la création de l'onde conjuguée dans l'échantillon de GaAs dopé n.

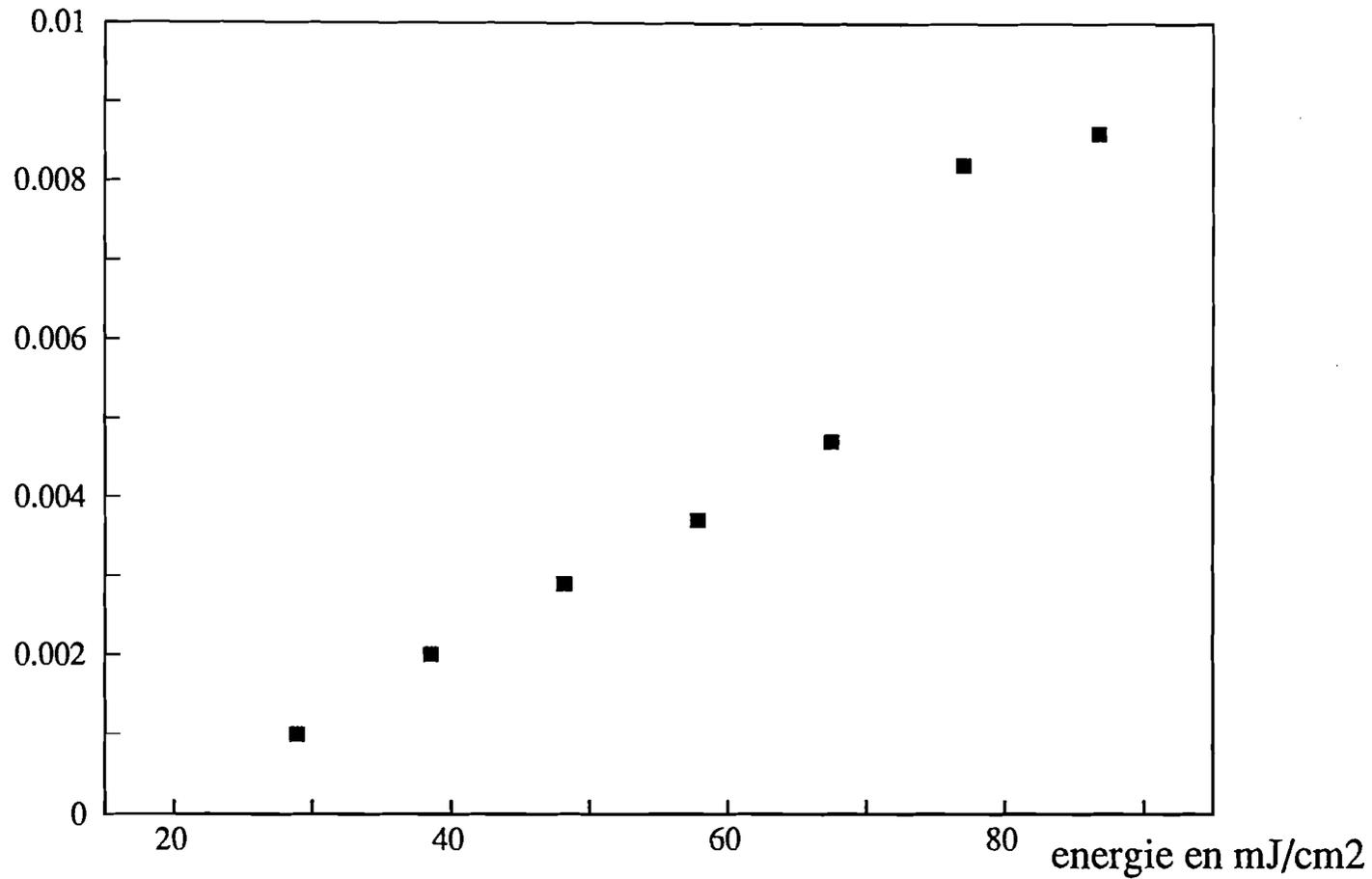


Fig IV.14: Réflectivité en conjugaison de phase par l'avant dans GaAs dopé n en fonction de l'énergie incidente.

La valeur de la réflectivité, voisine de 2% pour une énergie de 70 mJ/cm^2 et un échantillon d'épaisseur $300 \text{ }\mu\text{m}$, montre que cette non-linéarité est importante et pourrait éventuellement intervenir à haute énergie dans GaAs semi-isolant.

IV.4 Saturation de la réflectivité dans GaAs EL2.

Afin de donner une explication de la saturation de la réflectivité observée dans nos échantillons de GaAs semi-isolants, nous allons tenir compte maintenant des deux non-linéarités discutées précédemment. Nous prenons toujours en compte la variation spatiale de permittivité due à la création de porteurs libres ($\delta\epsilon_1$). Ces porteurs libres ayant été créés, nous tenons compte alors de la contribution du mouvement anharmonique des électrons (photocréés) dans la variation de permittivité ($\delta\epsilon_{NP}$). La densité d'électrons n dans la bande de conduction créée par l'interférence des deux ondes \vec{E}_1 et \vec{E}_s s'écrit: $n = n_o + n_1 \cos kx$.

Nous considérons deux ondes \vec{E}_1 et \vec{E}_s qui interfèrent dans l'échantillon, nous avons toujours la contribution due à la création de porteurs à partir des centres profonds :

$$\delta\epsilon_1 = \frac{-e^2}{\omega^2} \left(\frac{n_1}{m_n^*} + \frac{p_1}{m_p^*} \right) \cos kx$$

La contribution à la partie modulée spatialement de la permittivité due aux mouvements non-linéaires des porteurs s'écrit alors en introduisant la densité n d'électrons tant uniforme que modulée spatialement dans le formalisme développé au chapitre I-2-b. On obtient la composante modulée spatialement de $\delta\epsilon_{NP}$:

$$\delta\epsilon_{1NP} = \frac{e^4 2\tau_{th}/\tau_m}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \left\{ n_o \left((\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s) \exp(j(\vec{k} \cdot \vec{r}) + cc) \right) \right. \\ \left. + n_1 \left(\frac{1}{2} \exp(ikx) + cc \right) (|E_1|^2 + |E_s|^2) \right\}$$

On a deux contributions de signes opposées, l'une provenant de la densité d'électrons libres non modulée spatialement (n_o), l'autre de la densité d'électrons libres modulée spatialement (n_1). Nous faisons alors une hypothèse identique à celle utilisée au chapitre III-2-a, c'est-à-dire que nous posons $n_1 = mn'_o$ et $p_1 = mp'_o$, où n'_o et p'_o sont indépendants de la modulation. La variation totale de permittivité est alors :

$$\delta\epsilon_1 + \delta\epsilon_{1NP} = (\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^* \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) + cc) \left[\frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \frac{1}{|E_1|^2 + |E_s|^2} \right. \\ \left. + \frac{e^4 2\tau_{th}/\tau_m}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \left(\frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \right) (n_o + n'_o) \right]$$

La quantité $\left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \frac{1}{|E_1|^2 + |E_s|^2}$ reste toujours constante comme cela

a déjà été expliqué. Par contre, un calcul rigoureux de la réflectivité devrait tenir compte des variations spatiales selon la direction de propagation, dues à l'absorption, de $(n_o + n'_o)$, quantités qui apparaissent maintenant dans la variation de permittivité. Ce problème n'a pas de solution analytique. Une résolution numérique nécessiterait des moyens lourds sans pour autant améliorer la compréhension des mécanismes physiques mis en jeu .

On peut cependant estimer la contribution du mouvement non-linéaire des porteurs en négligeant les variations spatiales de $(n_o + n'_o)$. Cela revient à surestimer légèrement l'influence de ce terme dans la variation de permittivité.

Moyennant cette hypothèse, la démarche pour calculer la réflectivité du miroir à conjugaison de phase par l'avant est identique à celle décrite au chapitre III 2 et nous trouvons :

$$R = \left(\frac{2\pi\Delta n_{D+NP}\ell}{\lambda \cos \theta} \right)^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\ell}{2} \sqrt{\delta_k^2 - \frac{8\pi\Delta n_{D+NP}}{\lambda \cos \theta} \delta_k} \right)$$

$$\text{avec } \Delta n_{D+NP} = \frac{1}{2n_b} \left(\frac{-e^2}{\epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) \right.$$

$$\left. + \frac{e^4 2\tau_{th}/\tau_m}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \left(\frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \right) (n_o + n'_o) |E_1(o)|^2 \right)$$

Pour calculer la réflectivité du miroir à conjugaison de phase par l'arrière nous reprenons la démarche décrite au chapitre III 3. Si nous considérons les quatre ondes qui interfèrent dans notre échantillon $\vec{E}_s, \vec{E}_c, \vec{E}_1, \vec{E}_2$, la partie modulée spatialement de la permittivité liée aux mouvements non-linéaires des porteurs s'écrit alors :

$$\Delta \epsilon_{NP} = \frac{e^4 2\tau_{th}/\tau_m}{E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \left(\frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \right) \left[n_o \left[(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^*) + (\vec{E}_c \cdot \vec{E}_2^*) \right] \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) \right.$$

$$\left. + n_o \left[(\vec{E}_1^* \cdot \vec{E}_c) + (\vec{E}_2^* \cdot \vec{E}_s) \right] \exp(j\vec{k}' \cdot \vec{r}) + n'_o \left[(\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_s^*) + (\vec{E}_c \cdot \vec{E}_2^*) \right] \exp(j\vec{k} \cdot \vec{r}) + cc \right]$$

éq. IV-1

Plaçons-nous dans le cas où les polarisations des pompes avant et arrière sont croisées, où le réseau de petit pas n'existe pas ($k' = 0$). Nous négligeons toujours les variations spatiales de $(n_o + n'_o)$ et nous trouvons par un calcul identique à celui développé au chapitre III-3:

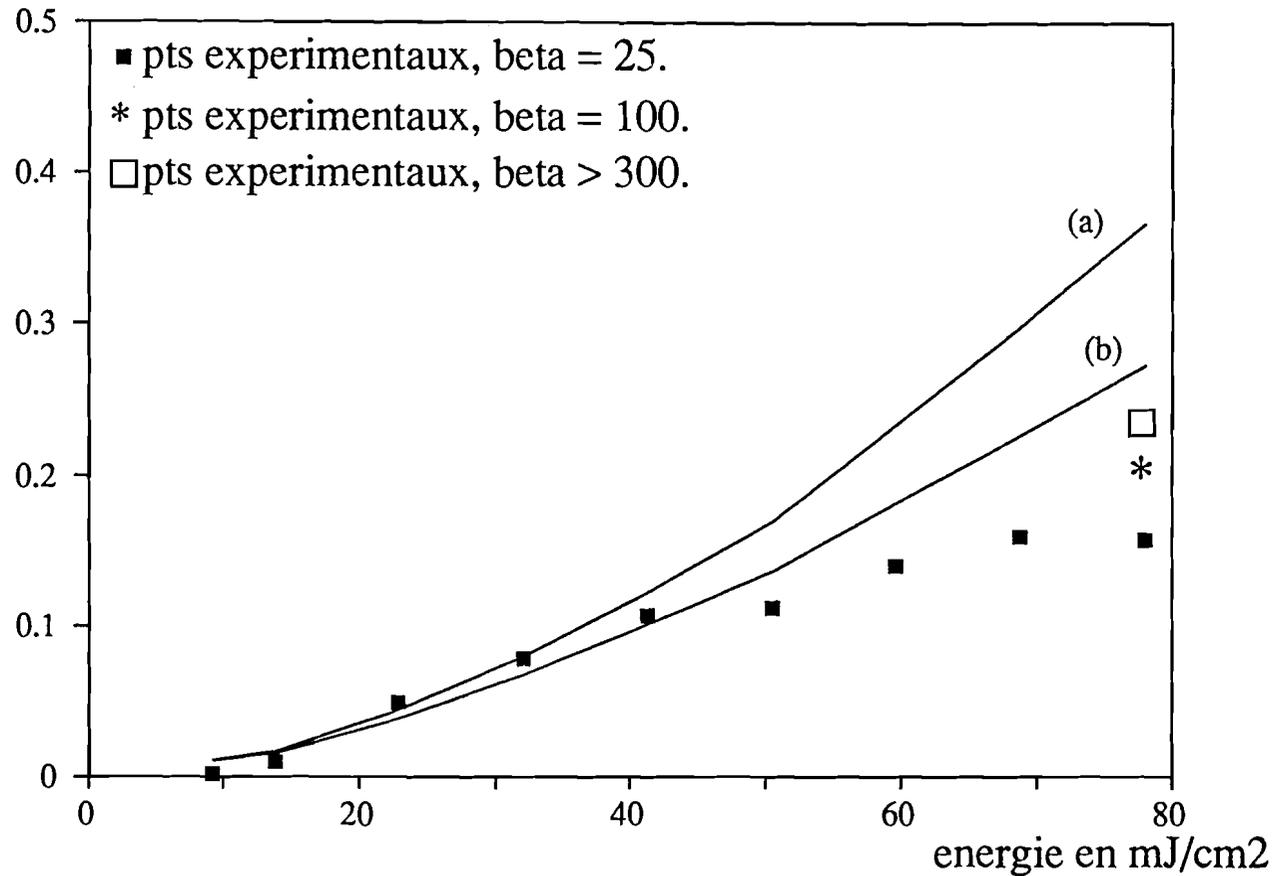


Fig IV.15: Réflectivité en fonction de l'énergie incidente dans GaAs semi-isolant épais. Les courbes théoriques (a) et (b) sont déduites de l'équation III-9. La variation d'indice est calculée soit par le modèle de Drüde-Lorentz (a) soit en tenant compte de ce modèle et du mouvement anharmonique des porteurs photocréés (b).

$$R = \frac{tg^2 \left(\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n_{D+NP} \left(\frac{1 - \exp(-\alpha \ell)}{\alpha} \right) \right)}{ch^2 \frac{\alpha \ell}{2} + tg^2 \left(\frac{\pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n_{D+NP} \left(\frac{1 - \exp(-\alpha \ell)}{\alpha} \right) \right) sh^2 \left(\frac{\alpha \ell}{2} \right)} \quad \text{éq IV - 2}$$

$$\text{avec } \Delta n_{D+NP} = \frac{-e^2}{2n_b \epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) + \frac{e^4 2 \tau_{th} / \tau_m}{2n_b E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \left(\frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \right)$$

$$(n_o + n'_o) (E_1^2(o) + E_2^2(\ell))$$

Sur la figure IV-15 sont représentés, les résultats expérimentaux de conjugaison de phase par l'arrière obtenus dans l'échantillon épais. La réflectivité prédite en tenant compte de la non-linéarité due uniquement à la création de porteurs libres et l'influence de l'absorption non-linéaire a déjà été discutée (fig IV- 11 b) et est reportée pour comparaison sur la figure IV- 15 a. La réflectivité prédite en tenant compte des deux non-linéarités (création de porteurs libres et mouvement non-linéaire des porteurs) et de l'absorption non-linéaire est présentée sur la fig IV- 15 b. La contribution du mouvement non-linéaire des porteurs photocréés réduit la variation de permittivité et donc la réflectivité du miroir à conjugaison de phase. La correction entre la courbe (a) et (b) est au maximum d'environ 8%.

La courbe théorique (fig IV-15-b) a été calculée en supposant que l'intensité du faisceau sonde est faible devant celle des deux faisceaux pompes. Les intensités pompe et sonde n'interviennent donc pas dans l'expression calculée de la réflectivité. C'est aussi le cas expérimentalement lorsque $\beta > 250$ (fig IV- 12). La valeur de la réflectivité mesurée (20%) pour une énergie de $80 \text{ mJ} / \text{ cm}^2$ se situe bien sur la courbe théorique (b) de la figure IV-15.

La courbe expérimentale de la figure IV- 15 a été obtenue dans un régime où la réflectivité n'est pas maximale et dépend de l'intensité du faisceau sonde ($\beta = 25$).

Lorsque toutes les polarisations sont parallèles, l'expression de la réflectivité est toujours donnée par l'équation IV-2, mais Δn_{D+NP} vaut maintenant :

$$\Delta n_{D+NP} = \frac{-e^2}{2n_b \epsilon_o \omega^2} \left(\frac{n'_o}{m_n^*} + \frac{p'_o}{m_p^*} \right) + \left(\frac{e^4 2 \tau_{th} / \tau_m}{2n_b E_G (m_n^*)^2 \omega^4} \right) \left(\frac{\omega_g^4 (3\omega_g^2 + \omega^2)}{3(\omega_g^2 - \omega^2)^3} \right) (2n_o + n'_o) (E_1^2(o) + E_2^2(\ell))$$

Par rapport au cas précédent (polarisations des faisceaux pompes orthogonales), la contribution du mouvement non-linéaire des porteurs est $2n_o + n'_o$ au lieu de $n_o + n'_o$. A haute énergie, il n'y a plus de réseau dans les centres profonds et $n_o \approx n'_o$.

Nous avons montré que le terme en $n_o + n'_o$ apporte une correction de 8%. La différence entre les réflectivités en conjugaison de phase par l'arrière obtenues pour des polarisations de pompes parallèles ou croisées sera donc au maximum d'environ 4%. Une telle variation est largement dans nos marges d'erreurs et nous pensons que c'est pour cette raison que nous n'avons pas observé expérimentalement une dépendance de la réflectivité en fonction de la polarisation de la pompe arrière.

Sur les figures IV- 16 et IV- 17 sont présentés les résultats expérimentaux de conjugaison de phase par l'avant et par l'arrière sur l'échantillon mince.

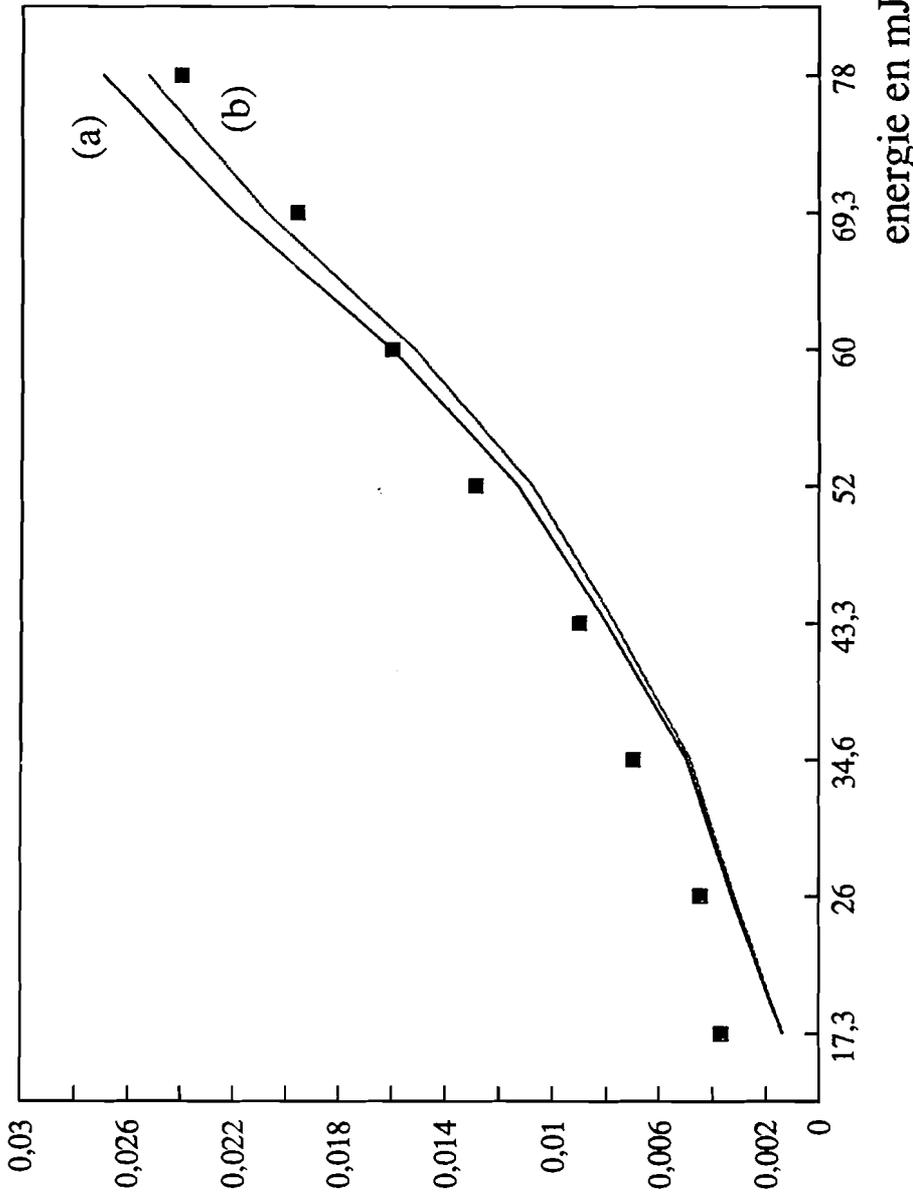


Fig IV.16: Réflectivité en fonction de l'énergie incidente dans GaAs semi-isolant mince. Les courbes théoriques (a) et (b) sont déduites de l'équation III-9. La variation d'indice est calculée soit par le modèle de Drüde-Lorentz (a) soit en tenant compte de ce modèle et du mouvement anharmonique des porteurs photocréés (b).

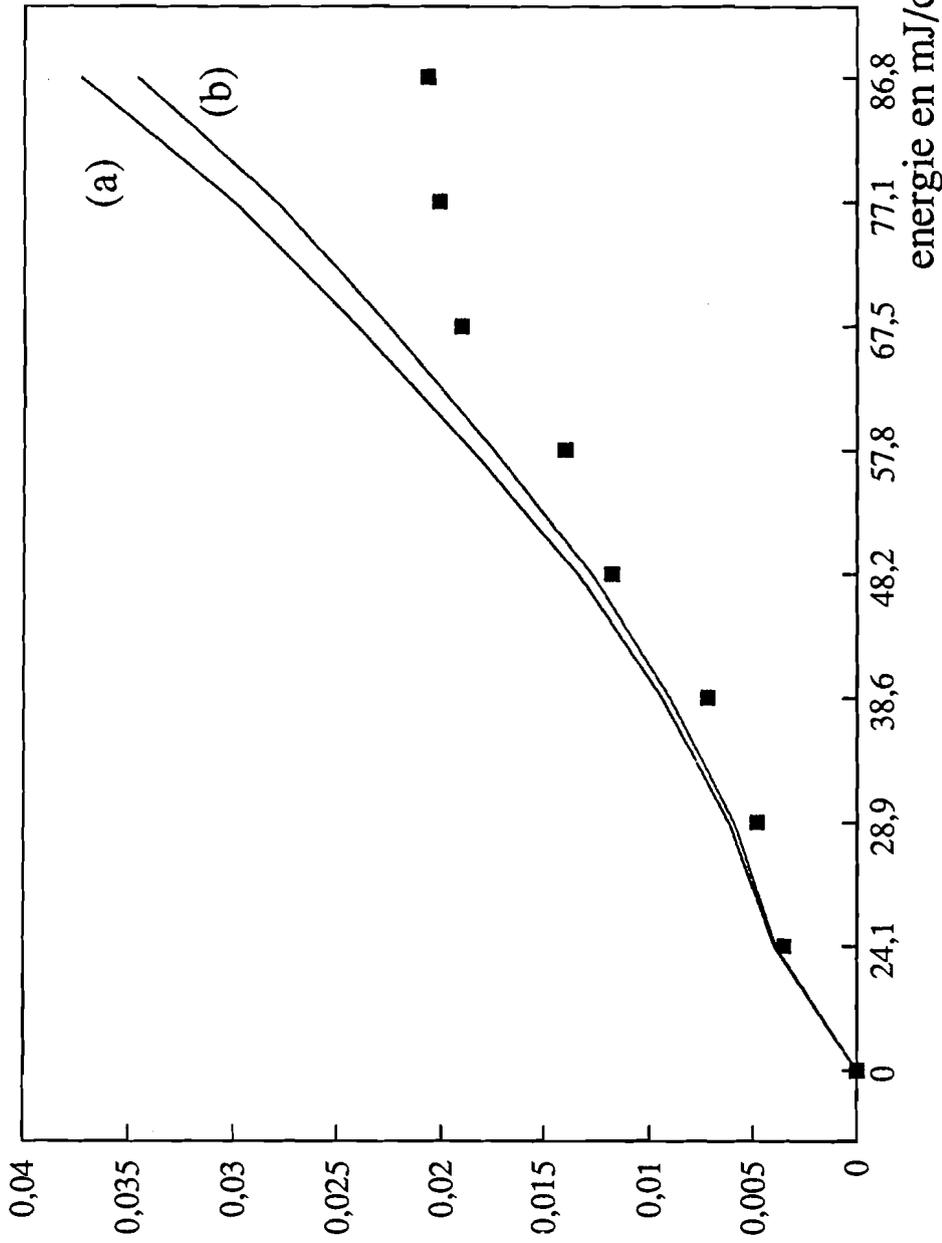


Fig IV.17: Réflectivité en fonction de l'énergie incidente dans GaAs semi-insolant mince. Les courbes théoriques (a) et (b) sont déduites de l'équation III-5. La variation d'indice est calculée soit par le modèle de Drüde Lorentz (a) soit en tenant compte de ce modèle et du mouvement anharmonique des porteurs photocréés (b).

La réflectivité calculée, tenant compte seulement, de la non-linéarité due à la création de porteurs libres, est représentée sur la courbe (a) des figures IV- 16 et IV- 17, tandis que la courbe (b) représente la réflectivité tenant en compte des deux non-linéarités. L'écart entre les courbes (a) et (b) est moindre que précédemment parce que la longueur d'interaction est plus faible. L'accord avec les résultats expérimentaux est acceptable.

En conclusion, le mouvement non-linéaire des électrons qui ont été photocréés par excitation des centres profonds contribue à la saturation de la réflectivité à haute énergie.

IV.5 Discussion

Nous avons pu mettre en évidence des non-linéarités optiques dues à la création de porteurs libres à partir des centres profonds EL2 dans GaAs.

Pour cela, nous avons réalisé deux montages de conjugaison de phase, l'un par l'avant et l'autre par l'arrière et avons étudié la réflectivité en fonction de l'énergie et du rapport entre les intensités des faisceaux pompe et sonde.

Les variations de la transmission de la sonde en présence de la pompe observée expérimentalement s'explique par la redistribution entre les concentrations en centres ionisés et non ionisés. Ce phénomène apparaît pour des énergies inférieures ou égales à $20\text{mJ}/\text{cm}^2$. Au delà, il est masqué par une augmentation d'absorption due à la présence des électrons dans la bande de conduction et à l'absorption à deux photons.

Nous avons aussi mesuré la variation d'indice due aux mouvements non-linéaires des porteurs dans la bande de conduction à l'aide d'un échantillon dopé n.

Le bon accord entre les estimations théoriques, ainsi que la dépendance de la réflectivité en fonction de la polarisation de la pompe arrière nous montrent que cette non linéarité n'est pas négligeable dans GaAs à 1,06 μm .

En incluant à la fois la génération de porteurs libres et le mouvement anharmonique des électrons dans la bande de conduction, la réflectivité calculée pour GaAs semi-isolant est en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Chapitre V

**Etude du transfert d'énergie dans
GaAs semi-isolant**

V- Etude du transfert d'énergie dans GaAs semi-isolant.

Une des applications envisagées de ces non-linéarités est l'amplification de signaux optiques impulsionnels. Contrairement à des effets non-linéaires comme l'effet photoréfractif, le réseau d'indice créé par la génération de porteurs libres est quasiment en phase avec les franges lumineuses, ce qui interdit tout transfert d'énergie en régime permanent (durée de l'impulsion supérieure aux temps caractéristiques du phénomène non-linéaire). Il n'y a plus alors qu'une alternative : on peut obtenir une amplification soit en faisant intervenir un mélange à ondes multiples, comme par exemple dans les milieux minces où il y a plusieurs ondes diffractées, soit en milieu épais en déphasant le réseau d'indice par rapport à la figure d'interférence par l'un des procédés que nous allons détailler dans la suite de ce travail.

Nous avons vu que la variation d'indice induite en régime nanoseconde dans GaAs EL2 était trop faible pour obtenir une amplification sur la sonde en milieu mince. En milieu épais, c'est un problème à deux ondes, c'est-à-dire que l'on considère uniquement deux directions différentes de la propagation de l'énergie. Nous allons étudier plusieurs techniques pour déphaser le réseau et obtenir un échange d'énergie entre la pompe et la sonde.

Nous discuterons ces méthodes d'amplification consistant à :

- appliquer un champ électrique statique sur l'échantillon, ce qui a pour effet d'inscrire un déphasage entre les franges lumineuses et le réseau de porteurs libres.

- induire une variation de fréquence sur l'un des deux faisceaux de manière à avoir un réseau de franges mobiles dans le matériau.

Dans les milieux à fortes non-linéarités ($\Delta n \approx 10^{-3}$), il est possible d'observer une amplification sans provoquer le déphasage de façon externe^(41 - 43). Dans ce cas, le déphasage entre le réseau d'indice et d'illumination se construit alors au cours de la propagation des impulsions.

V.1 Amplification par mélange à 2 ondes en milieu épais : approche générale

a) Hypothèses

Nous allons nous placer dans le cas d'une non-linéarité de type bande à bande. Nous allons considérer uniquement la contribution des électrons dans la variation de permittivité. Nous supposons également que la cinétique des électrons est gouvernée par quatre processus : la recombinaison et la diffusion de temps caractéristiques τ_r et τ_D , un terme d'entraînement sous champ, supposé statique et une génération de type bande à bande avec un coefficient d'absorption α constant.

L'équation d'évolution des électrons est alors :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \alpha I - \frac{n}{\tau_r} + D_n \Delta n + \mu_n \operatorname{div}(n \vec{E}_0)$$

Ces hypothèses sont restreignantes par rapport à ce qui vient d'être exposé dans les chapitres précédents. Leur but est simplement de clarifier l'approche théorique et de dégager les mécanismes prépondérants dans le couplage d'ondes. Lors de la comparaison des résultats expérimentaux dans GaAs semi-isolant, nous tiendrons compte des mécanismes de génération des porteurs à partir des centres profonds et par absorption à deux photons.

Nous considérons toujours l'illumination résultant de l'interférence de deux faisceaux :

$$I = I_0 (1 + m \cos kx)$$

En faisant un développement de Fourier du premier ordre pour n , on a alors :

$$n = n_0 + \frac{1}{2} (n_1 \exp(jkx) + cc)$$

$$\text{avec } \frac{\partial n_0}{\partial t} = \alpha I_0 - \frac{n_0}{\tau_r}$$

$$\text{et } \frac{\partial n_1}{\partial t} = m \alpha I_0 - \frac{n_1}{\tau_r} - \frac{n_1}{\tau_D} + j \mu_n E_0 k n_1$$

Dans le cas où l'on n'applique pas de champ statique mais où les franges défilent à la fréquence Ω , on a :

$$I = I_0 (1 + m \cos(kx - \Omega t))$$

et en cherchant des solutions sous la forme :

$$n = n_0 + \frac{1}{2} (n_1 \exp(j(kx - \Omega t)) + cc)$$

le système d'équations précédentes devient :

$$\frac{\partial n_0}{\partial t} = \alpha I_0 - \frac{n_0}{\tau_r}$$

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = m\alpha I_0 - \frac{n_1}{\tau_r} - \frac{n_1}{\tau_D} + j\Omega n_1$$

Dans ces deux configurations, champ statique appliqué ou franges mobiles, la phase de n_1 représente le déphasage du réseau de charge par rapport à la figure d'intensité pourvu que l'on prenne l'origine des phases sur le réseau d'intensité.

Dans ces deux configurations, l'équation d'évolution de n_1 se réduit à :

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = m\alpha I_0 - \frac{n_1}{\tau} \quad \text{où } \tau \text{ est un temps de disparition complexe.}$$

Pour le réseau de frange mobile, on a : $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_D} - j\Omega$

ou dans le cas du champ statique appliqué: $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_D} - j\mu_n E_0 k$

on pose pour les deux configurations: $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_d} + j\frac{1}{\tau_v}$

L'expression de la densité d'électrons modulée spatialement est :

$$n_1(t) = \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \int_{-\infty}^t m\alpha I_0(t') \exp\left(\frac{t'}{\tau}\right) dt'$$

b) Théorie du transfert d'énergie

Nous considérons maintenant les deux ondes \vec{E}_p pompe et \vec{E}_s sonde se propageant dans l'échantillon. On pose comme précédemment :

$$\vec{E}_p = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_p \exp(j(\omega t - \vec{k}_p \cdot \vec{r})) + cc \right)$$

$$\vec{E}_s = \frac{1}{2} \left(\vec{E}_s \exp(j(\omega t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})) + cc \right)$$

et on définit le vecteur réseau par :

$$\vec{k} = \vec{k}_s - \vec{k}_p$$

La variation de permittivité induite par la génération de porteurs est :

$$\Delta \epsilon_r = \frac{-e^2}{m_n^* \omega^2 \epsilon_0} \left[\frac{1}{2} (n_1 \exp(jkx) + cc) \right]$$

En regroupant les termes en accord de phase dans l'équation de propagation,

on a alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_s}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1^* E_p \\ \frac{\partial E_p}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1 E_s \end{cases} \quad \text{éq. V-1}$$

la constante de couplage vaut :

$$K = \left(\frac{2\pi}{\lambda \cos \theta} \right) \left(\frac{-e^2}{2n_b m_n^* \omega^2 \epsilon_0} \right)$$

A une distance z de la face d'entrée du cristal, la densité d'électrons modulée est:

$$n_1(z, t) = \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \int_{-\infty}^t \alpha E_s^* E_p \exp\left(\frac{t'}{\tau}\right) dt' \quad \text{éq. V-2}$$

On pose $E_p = 2\sqrt{I_p} \exp(j\varphi_p)$ et $E_s = 2\sqrt{I_s} \exp(j\varphi_s)$

Les équations V-1 se réécrivent :

$$\begin{cases} \frac{1}{2I_s} \frac{\partial I_s}{\partial z} + j \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1^* \sqrt{\frac{I_p}{I_s}} \exp(j(\varphi_p - \varphi_s)) \\ \frac{1}{2I_p} \frac{\partial I_p}{\partial z} + j \frac{\partial \varphi_p}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1 \sqrt{\frac{I_s}{I_p}} \exp(j(\varphi_s - \varphi_p)) \end{cases}$$

En identifiant les parties réelles et imaginaires, on a alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial I_s}{\partial z} = -2 \operatorname{Im} \left(\frac{K}{2} n_1^* \sqrt{I_p I_s} \exp(j(\varphi_p - \varphi_s)) \right) \\ \frac{\partial I_p}{\partial z} = -\frac{\partial I_s}{\partial z} \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} = \operatorname{Re} \left(K n_1^* \sqrt{\frac{I_p}{I_s}} \exp(j(\varphi_p - \varphi_s)) \right) \\ \frac{\partial \varphi_p}{\partial z} = \operatorname{Re} \left(K n_1 \sqrt{\frac{I_s}{I_p}} \exp(j(\varphi_s - \varphi_p)) \right) \end{cases}$$

$$\text{et } n_1(z, t) = \int_{-\infty}^t 2\alpha \sqrt{I_p I_s(z, t')} \exp(j(\varphi_p - \varphi_s)(z, t')) \exp\left(\frac{t' - t}{\tau}\right) dt'$$

où Im et Re désignent la partie imaginaire et réelle.

Posons $\varphi = \varphi_p - \varphi_s$, on a alors (41):

$$\begin{cases} \frac{\partial I_s}{\partial z} = j(A - A^*) \quad (\text{a}) \\ \frac{\partial \varphi}{\partial z} = \left(\frac{A + A^*}{2} \right) \left(\frac{1}{I_s} - \frac{1}{I_p} \right) \quad (\text{b}) \\ A(z, t) = \alpha K \sqrt{I_p I_s(z, t)} \int_{-\infty}^t \alpha \sqrt{I_p I_s(z, t')} \exp\left(j(\varphi(z, t') - \varphi(z, t))\right) \exp\left(\frac{t' - t}{\tau}\right) dt' \quad (\text{c}) \end{cases} \quad \text{éq. V - 3}$$

L'équation V-3-b montre qu'il y a un transfert de phase entre les deux ondes au cours de la propagation, ce qui conduit à courber les franges lumineuses dans l'épaisseur du matériau. On constate qu'il est possible d'avoir une amplification de la sonde en présence de la pompe lorsque la partie imaginaire de la quantité A est non nulle (équation V-3-a) . Pour cela, il y a deux possibilités :

- Soit la non-linéarité est assez forte (constante de couplage K importante) et dans ce cas la phase relative ϕ varie de manière significative durant le passage de l'impulsion (équation V-3-b). Ce changement de phase rend la partie imaginaire de A non nulle (équation V-3-c) et on peut alors obtenir un transfert d'énergie (équation V-3-a). Ceci se produit à condition que la pompe et la sonde soient d'intensités inégales (équation V-3-b). Dans la suite, ce mécanisme sera appelé transfert d'énergie d'ordre 2.

- Dans le cas où la non-linéarité est faible, on peut aussi obtenir un transfert d'énergie dès lors que la constante de temps τ de disparition est complexe (équation V-3 c). Comme nous l'avons indiqué cela peut être réalisé soit en appliquant un champ statique, soit en induisant un décalage en fréquence entre la pompe et la sonde. Le transfert d'énergie sera appelé transfert d'énergie d'ordre 1.

α) transfert d'énergie d'ordre 1

Nous considérons premièrement le cas où le temps de disparition est complexe : $\tau_v \neq 0$.

On effectue un développement limité au 1er ordre par rapport a z, ce qui revient à résoudre le système d'équations V-3 pour une tranche mince de cristal.

On pose :

$$\begin{cases} \varphi(z,t) = \varphi^{(0)}(0,t) + \varphi^{(1)}(z,t) = \varphi^{(1)}(z,t) \\ I_{s,p}(z,t) = I_{s,p}^{(0)}(0,t) + I_{s,p}^{(1)}(z,t) \end{cases}$$

On a alors⁽⁴¹⁾ :

$$\begin{cases} \varphi^{(1)}(z,t) = Kz \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \int_{-\infty}^t \alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}}(t') \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) \cos\left(\frac{t'-t}{\tau_v}\right) dt' \\ I_s^{(1)}(z,t) = -2Kz \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \int_{-\infty}^t \alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}}(t') \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) \sin\left(\frac{t'-t}{\tau_v}\right) dt' \end{cases}$$

Si l'on considère les impulsions rectangulaires de largeur T_L représentées sur la figure V-1, on a pour $t < T_L$:

$$\begin{cases} \varphi^{(1)}(z,t) = Kz \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \alpha I_s^{(0)} I_p^{(0)} \int_0^t \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) \cos\left(\frac{t'-t}{\tau_v}\right) dt' \\ I_s^{(1)}(z,t) = -2Kz \alpha I_s^{(0)} I_p^{(0)} \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) \sin\left(\frac{t'-t}{\tau_v}\right) dt' \end{cases}$$

Le transfert d'énergie apparaît alors comme une fonction linéaire du produit KI_p de la constante de couplage et de l'intensité pompe. Pour obtenir une amplification, il faut que la constante de temps de disparition complexe τ_v

soit de l'ordre de la durée de l'impulsion c'est-à-dire $\frac{T_L}{\tau_v} \approx \pi$. Le sens du

transfert d'énergie dépend du signe de τ_v , c'est-à-dire du sens de déplacement des franges ou sens du champ appliqué.

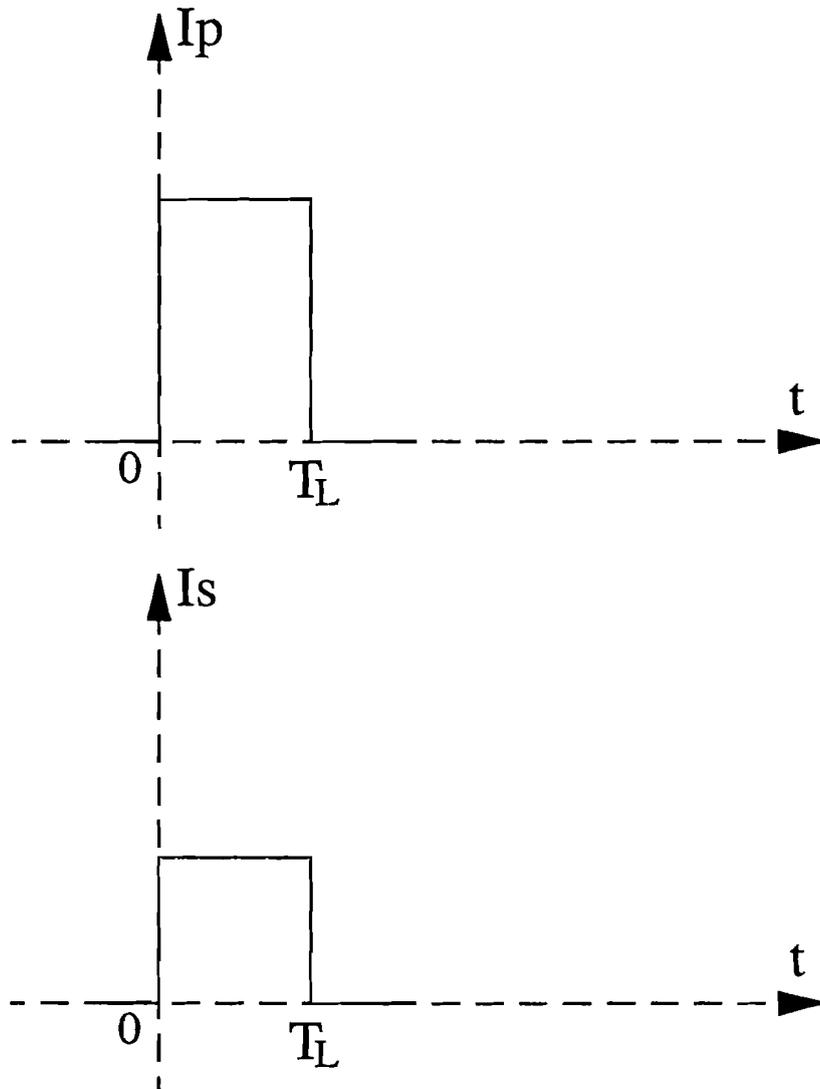


Fig V.1: Impulsions sonde et pompe.

En régime nanoseconde, cela conduit à un décalage en fréquence Ω de l'ordre du gigahertz, ou à un champ appliqué de l'ordre de 50 V/cm pour un pas de réseau de 100 μ m.

β) transfert d'énergie d'ordre 2

Nous considérons maintenant le cas où le temps de disparition du réseau est purement réel, $\tau_v = 0$. Il n'y a plus de transfert d'énergie au 1er ordre $I_s^{(1)} = 0$.

Ce transfert d'énergie va provenir d'un processus au second ordre.

En effet, au départ les termes en exponentiel dans l'équation V-3 sont nuls et A est réel. Il n'y a donc pas de transfert d'intensité entre les ondes mais uniquement transfert de phase ce qui va rendre A complexe et permettre le transfert d'intensité.

Le développement au second ordre sur $I_{s,p}$ s'écrit :

$$I_s^{(2)}(z,t) = -2K \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \int_{-\infty}^t \alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}(t')} \exp\left(\frac{t' - t}{\tau_d}\right) \int_0^z \sin\left(\varphi^{(1)}(z', t') - \varphi^{(1)}(z', t)\right) dz' dt'$$

$$\text{où } \varphi^{(1)}(z,t) = Kz \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \int_{-\infty}^t \alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}(t')} \exp\left(\frac{t' - t}{\tau_d}\right) \cos\left(\frac{t' - t}{\tau_v}\right)$$

Afin de simplifier ces expressions, nous reprenons les impulsions carrées représentées sur la figure V-1.

On a alors:

$$\varphi^{(1)}(z, t) = \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) Kz\alpha I_s^{(0)} I_p^{(0)} \tau_d \left[1 - \exp\left(\frac{1}{\tau_d}\right) \right]$$

En faisant l'approximation des faibles variations de phase $\sin\left(\varphi^{(1)}(z', t') - \varphi^{(1)}(z', t)\right) \approx \varphi^{(1)}(z', t') - \varphi^{(1)}(z', t)$

On a alors :

$$I_s^{(2)}(z, t) = -2K^2\alpha^2 \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \left(I_s^{(0)} I_p^{(0)} \right)^2 \frac{z^2}{2} \tau_d \int_0^t \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) \left(\exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) - \exp\left(\frac{-t'}{\tau_d}\right) \right) dt'$$

$$I_s^{(2)}(z, t) = K^2 z^2 \alpha^2 \left(I_p^{(0)} - I_s^{(0)} \right) I_s^{(0)} I_p^{(0)} \tau_d \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \left[t - \tau_d + \tau_d \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right]$$

Cette dernière équation montre qu'il y a un transfert d'énergie entre les deux faisceaux. Ce transfert d'énergie se fait toujours du faisceau fort vers le faisceau faible (signe de $I_p^{(0)} - I_s^{(0)}$). Lorsque les deux ondes ont même intensité, il n'y a aucune amplification possible. Dans le cas où l'intensité de la pompe est très supérieure à celle de la pompe, on a alors (41) :

$$\frac{I_s^{(2)}}{I_s^{(0)}} \approx \left(Kz\alpha I_p^{(0)} z \right)^2 \tau_d \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \left[t - \tau_d + \tau_d \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right]$$

Le transfert d'énergie apparaît comme une fonction quadratique du produit de la constante de couplage et intensité de la pompe. Ce phénomène ne se produit que pour des non-linéarités très fortes comparées à celles nécessaires pour obtenir le même gain avec un transfert d'énergie d'ordre 1.

D'autre part, le transfert d'énergie d'ordre 2 n'est présent que si la constante τ_d n'est pas négligeable devant la durée de l'illumination.

En effet, pour $\tau_d = 0$ on a $I_s^{(2)} = 0$. Par contre le gain est d'autant plus grand à un instant donné de l'illumination que le temps de disparition est important.

L'origine de ce couplage d'énergie vient du déphasage, qui se construit au cours de la propagation, entre le réseau lumineux et le réseau de charge (ou d'indice). En effet, calculons la phase du réseau de charge n_1 en reprenant l'équation V-2. $n_1(z,t)$ est donné par :

$$\begin{aligned} n_1(z,t) &= 2\alpha \sqrt{I_p^{(0)} I_s^{(0)}} \int_0^t \exp(j\varphi(z,t')) \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) dt' \\ &\approx 2\alpha \sqrt{I_p^{(0)} I_s^{(0)}} \int_0^t (1 + j\varphi(z,t')) \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) dt' \quad \text{pour } \varphi^{(1)} \leq 1 \end{aligned}$$

La partie imaginaire de $n_1(z,t)$ est alors donnée par :

$$\begin{aligned} \text{Im}(n_1(z,t)) &= 2\alpha^2 Kz \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \left(I_s^{(0)} I_p^{(0)} \right) \sqrt{I_p^{(0)} I_s^{(0)}} \\ &\quad \int_0^t \tau_d \left[1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right] \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) dt' \\ &= 2\alpha^2 Kz \left(\frac{1}{I_s^{(0)}} - \frac{1}{I_p^{(0)}} \right) \left(I_s^{(0)} I_p^{(0)} \right) \sqrt{I_p^{(0)} I_s^{(0)}} \tau_d \\ &\quad \left[\tau_d \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right) - t \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right] \end{aligned}$$

La partie réelle est donnée par :

$$\begin{aligned} \text{Re}(n_1(t)) &= 2\alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \int_0^t \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_d}\right) dt' \\ &= 2\alpha \sqrt{I_s^{(0)} I_p^{(0)}} \tau_d \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_d}\right) \right) \end{aligned}$$

La phase Ψ de n_1 est alors donnée par :

$$tg\Psi \approx \Psi = k\alpha \left(I_p^{(0)} - I_s^{(0)} \right) \left[\tau_d + \frac{t \exp(-t/\tau_d)}{\exp(-t/\tau_d) - 1} \right] z$$

Le déphasage Θ entre le réseau d'illumination et le réseau d'indice est donc⁽⁴¹⁾ :

$$\Theta = \Psi - \varphi = k\alpha \left(I_p^{(0)} - I_s^{(0)} \right) \tau_d \exp(-t/\tau_d) \left[1 - \frac{t}{\tau_d (1 - \exp(-t/\tau_d))} \right] z$$

Ce déphasage dépend des valeurs relatives des durées d'illumination t et du

$$\text{temps de disparition } \tau_d \left(\frac{1}{\tau_d} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_D} \right).$$

Lorsque $t \ll \tau_d$ le déphasage est maximum et $\Theta = -k\alpha \left(I_p^{(0)} - I_s^{(0)} \right) tz$. Dans ce cas, le transfert d'énergie est aussi maximum.

Lorsque la durée de l'illumination augmente, le déphasage se réduit. Il devient nul lorsque $t \gg \tau_d$, le réseau d'indice s'est mis en phase avec le réseau d'illumination et il n'y a plus de transfert d'énergie.

c) Discussion

Dans un mélange à deux ondes, de type pompe-sonde, nous venons de voir qu'il existe plusieurs possibilités d'obtenir un transfert d'énergie entre les deux faisceaux.

Il est possible d'une part d'induire un déphasage entre le réseau d'illumination et le réseau d'indice par un moyen extérieur tel que l'application d'un champ électrique ou le décalage en fréquence d'un des faisceaux. Le sens du transfert d'énergie dépend du signe du champ électrique appliqué ou du signe de la vitesse des franges mobiles.

D'autre part, lorsque les non-linéarités sont fortes, on peut obtenir un transfert d'énergie lorsque la durée de l'impulsion est courte devant le temps de disparition τ_d . Le déphasage entre le réseau d'indice et le réseau d'illumination se construit alors au cours de la propagation des ondes dans le matériau et le transfert d'énergie se fait toujours du faisceau fort vers le faisceau faible.

V.2 Amplification par mélange à 2 ondes dans GaAs

a) Régime nanoseconde.

Nous avons dans un premier temps tenté d'obtenir un transfert d'énergie en régime nanoseconde. Au vu premièrement de la faiblesse des non-linéarités mesurées en conjugaison de phase et deuxièmement des valeurs similaires des durées d'illumination et de disparition du réseau, on ne pouvait pas obtenir de transfert d'énergie sans appliquer un champ ou induire un décalage en fréquence. Il nous a semblé très délicat d'induire un décalage en fréquence sur l'un des faisceaux. En effet, les modulateurs de phase capables de décaler de quelques gigahertz une onde infrarouge ont une très faible ouverture, de quelques centaines de μm^2 et ne sont pas adaptés à des lasers impulsionnels puissants.

Nous avons repris le montage de la fig IV-2, en appliquant un champ électrique le long de la direction (110). Le montage est représenté sur la figure V-2. Une capacité C est chargée de maintenir le champ pendant le passage des impulsions. En effet, lorsque l'on illumine le cristal semi-isolant de GaAs, sa résistance R passe de quelques $M\Omega$ à moins de 10^{-1} à $10^{-2} \Omega$. La constante de temps de décharge RC doit être, même sous illumination, supérieure à la durée de l'impulsion. Cela nous conduit à utiliser des capacités de l'ordre de la dizaine de nanofarad.

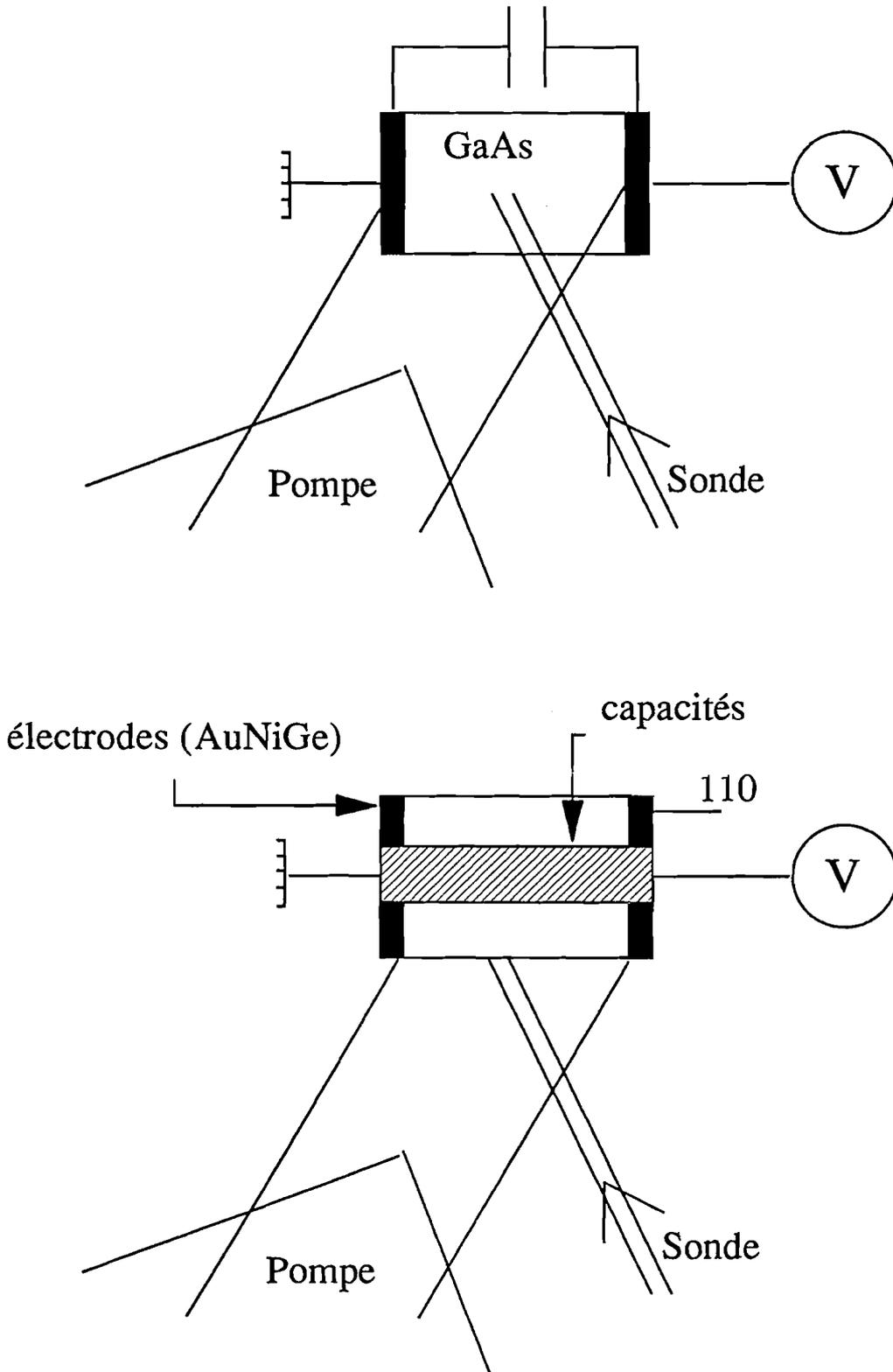


Fig V.2: Application d'un champ statique sur GaAs semi-isolant.

En pratique, notre tentative s'est soldée par un échec. Nous pensons que cela provenait des résistances de contacts R_c entre l'échantillon de GaAs et la capacité. En effet cette résistance de contact doit être inférieure à la résistance R de GaAs sous illumination, c'est-à-dire inférieure à 10^{-1} à $10^{-2} \Omega$. Nous avons essayé de minimiser cette résistance de contact en réalisant sur GaAs des électrodes de très faible résistivité. Un alliage d'or, nickel et germanium a été déposé sous vide, sur une épaisseur de quelques microns. Nous avons également pris une capacité avec des contacts apparents très peu résistifs. Le cristal a été taillé et ramené aux dimensions de la capacité de manière à éviter les fils de contact entre les électrodes sur les faces du cristal et la capacité. Les contacts de la capacité furent collés à l'aide d'une laque d'argent faiblement résistive. Malgré ces précautions, la tension aux bornes de la capacité s'effondrait pendant l'impulsion et aucun transfert d'énergie n'a pu être mesuré.

Nous avons donc abandonné cette idée et nous nous sommes consacrés à l'obtention d'un transfert d'énergie d'ordre 2. La durée des impulsions devant être bien plus brèves que les temps de diffusion et de recombinaison, cette étude sera réalisée avec des impulsions picosecondes.

b) Cinétique des porteurs libres en régime picoseconde.

Les mécanismes intervenant en régime picoseconde sont en partie identiques à ceux du régime nanoseconde.

La génération de porteurs est déterminée par l'absorption à deux photons et la génération à partir des niveaux profonds EL2.

La recombinaison sur les centres EL2 se produit avec des constantes de temps supérieures ou égales à la nanoseconde. Elle sera donc négligée. La constante de temps de recombinaison directe électron-trou est, pour une densité de porteurs de $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, de l'ordre de 1 nanoseconde. Nous verrons que dans nos expériences la densité d'électrons ou de trous ne dépasse pas la valeur de $5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. La recombinaison électron-trou sera donc négligée. En incluant les termes de diffusion et d'entraînement sous champ, les équations d'évolution sont alors :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\beta I^2}{2h\nu} + \frac{S_n IN_D^\circ}{h\nu} + D_n \Delta n + \mu_n \operatorname{div}(n \vec{E}_{sc})$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = \frac{\beta I^2}{2h\nu} + \frac{S_p IN_D^+}{h\nu} + D_p \Delta p - \mu_p \operatorname{div}(p \vec{E}_{sc})$$

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = \frac{S_n IN_D^\circ}{h\nu} - \frac{S_p IN_D^+}{h\nu}$$

$$\operatorname{div}(\vec{E}_{sc}) = \frac{e}{\epsilon_s} (p - n + N_D^+ - N_{Di}^+)$$

$$I = I_o (1 + m \cos kx)$$

Nous allons supposer que la modulation m est faible devant 1 et nous reconduisons alors un développement de Fourier au 1er ordre sur les grandeurs spatiales. On a :

pour les grandeurs non modulées spatialement :

$$\frac{\partial n_0}{\partial t} = \frac{\beta I_o^2}{2h\nu} + \frac{S_n I_o N_{Do}^\circ}{h\nu}$$

$$\frac{\partial p_0}{\partial t} = \frac{\beta I_o^2}{2h\nu} + \frac{S_p I_o N_{Do}^+}{h\nu}$$

éq. V-4-a

pour les quantités modulées spatialement :

$$\begin{aligned}\frac{\partial n_1}{\partial t} &= \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} - \frac{S_n I_o N_{D1}^+}{h\nu} + \frac{mS_n I_o N_{Do}^{\circ}}{h\nu} - \frac{n_1}{\tau_{Dn}} + \frac{e\mu_n n_o}{\epsilon_s} (p_1 - n_1 + N_{D1}^+) \\ \frac{\partial p_1}{\partial t} &= \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} + \frac{S_p I_o N_{D1}^+}{h\nu} + \frac{mS_p I_o N_{Do}^+}{h\nu} - \frac{p_1}{\tau_{Dp}} + \frac{e\mu_p p_o}{\epsilon_s} (p_1 - n_1 + N_{D1}^+)\end{aligned}$$

éq. V-4-b

Sur les figures V-3 et V-4 sont présentées les évolutions de n_o et p_o pour une impulsion de 30 picosecondes de durée et d'énergie $10 \text{ mJ} / \text{cm}^2$. Sur les deux figures, on compare l'évolution de n_o et p_o gouvernée par les équations V-4 lorsque l'on tient compte du rôle des centres profonds (a-b) et lorsqu'il est négligé (c). L'étude montre que la contribution des centres profonds est négligeable pour une énergie supérieure à $20 \text{ mJ} / \text{cm}^2$. En négligeant la contribution des niveaux profonds EL2, on a alors ⁽⁴²⁾ :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial n_o}{\partial t} &= \frac{\beta I_o^2}{2h\nu} \quad (\text{a}) \\ \frac{\partial p_o}{\partial t} &= \frac{\beta I_o^2}{2h\nu} \quad (\text{b}) \\ \frac{\partial n_1}{\partial t} &= \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} + \frac{e\mu_n n_o}{\epsilon_s} (p_1 - n_1) - \frac{n_1}{\tau_{Dn}} \quad (\text{c}) \\ \frac{\partial p_1}{\partial t} &= \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} - \frac{e\mu_p p_o}{\epsilon_s} (p_1 - n_1) - \frac{p_1}{\tau_{Dp}} \quad (\text{d}) \end{aligned} \right. \quad \text{éq. V-5}$$

Posons $\tau_{din} = \epsilon_s / e\mu_n n_o$ et $\tau_{dip} = \epsilon_s / e\mu_p p_o$

τ_{din} et τ_{dip} représente les temps de relaxation diélectrique pour les électrons et les trous.

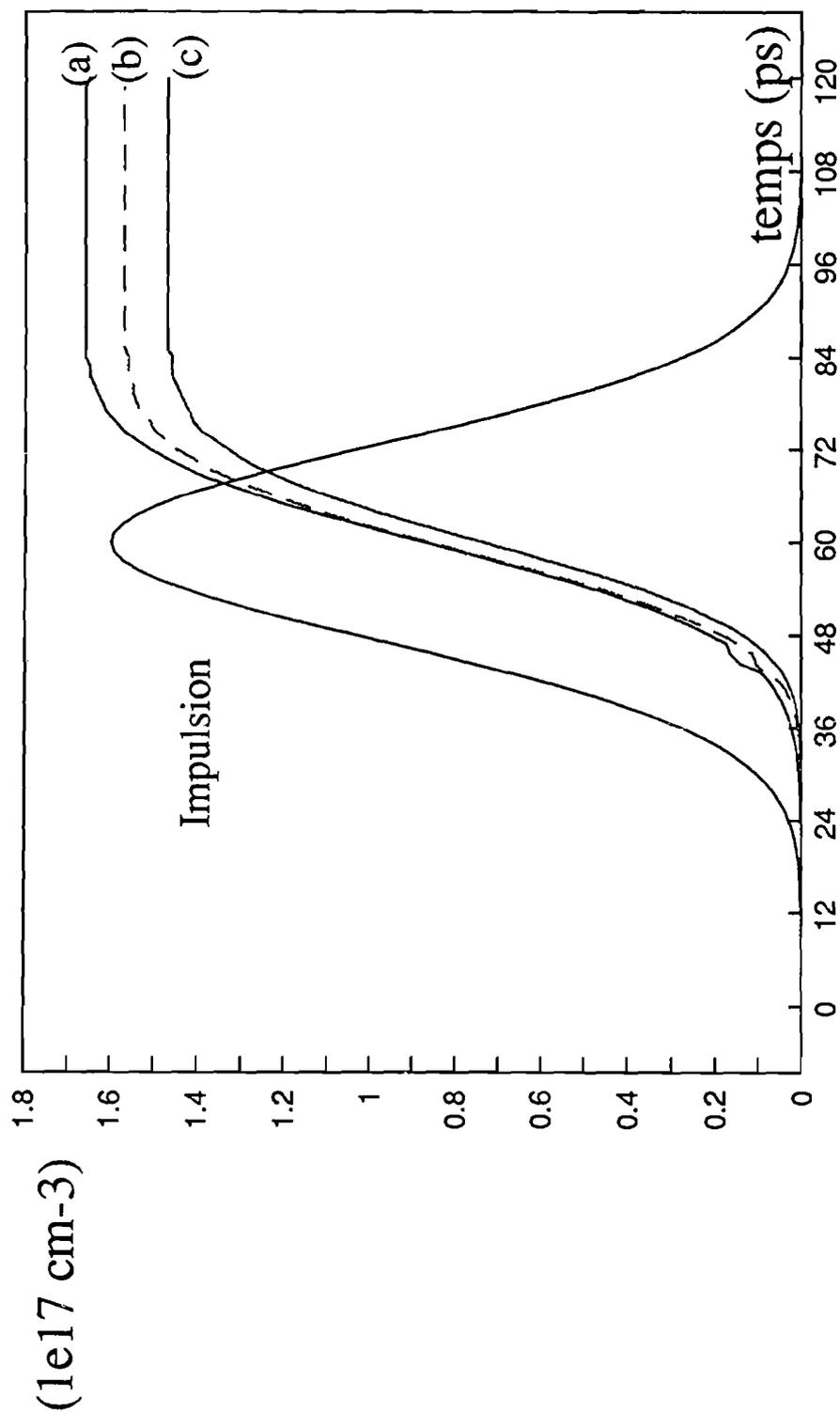


Fig V.3: Evolution de n_0 et p_0 après les simulations numériques pour une énergie totale de 10 mJ/cm^2 . Les densités d'électrons (a) et de trous (b) sont calculées en tenant compte des centres EL2, tandis qu'intervient seulement l'absorption à deux photons dans la courbe (c) (électrons ou trous).

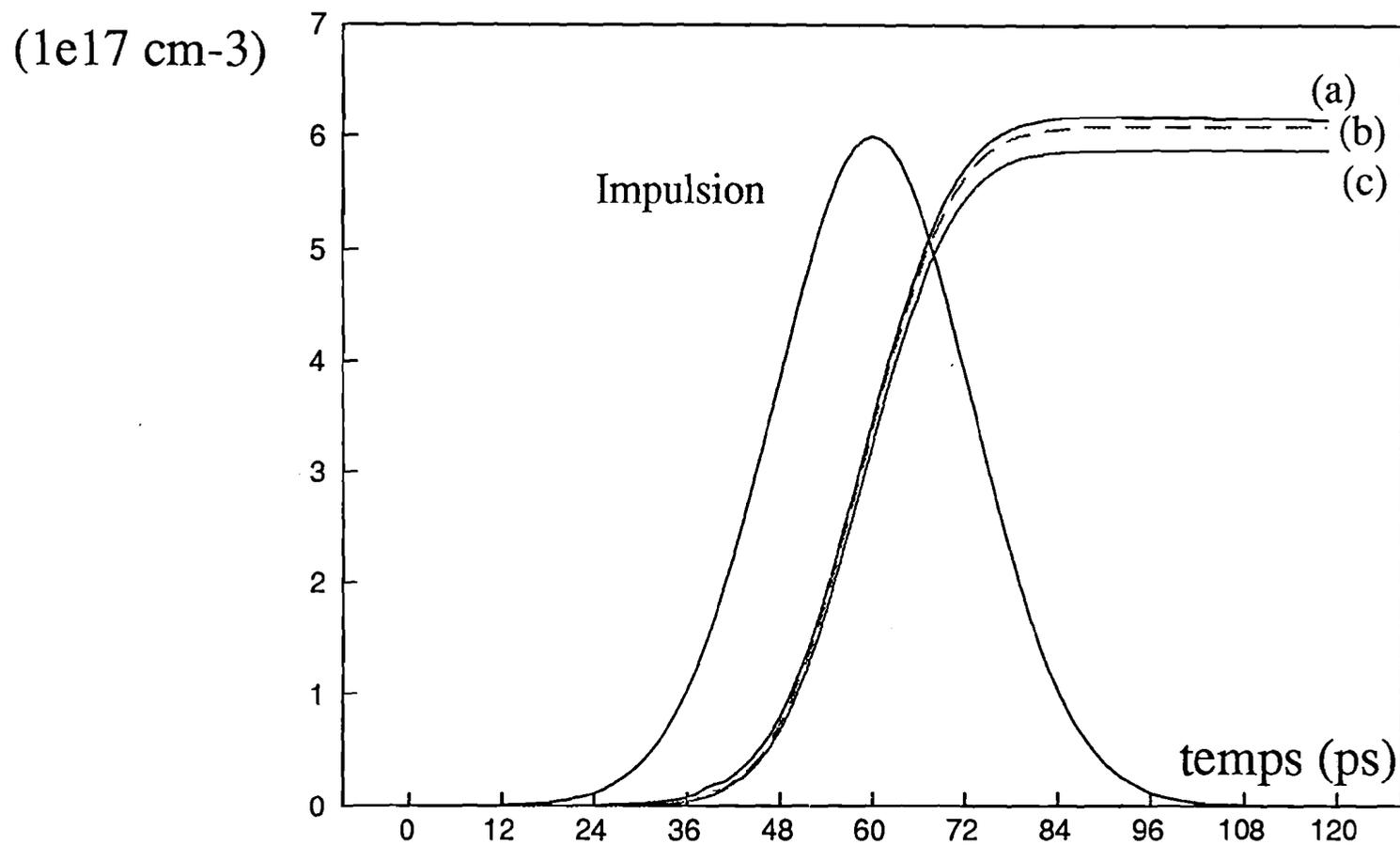


Fig V.4: Evolution de n_0 et p_0 d'après les simulations numériques pour une énergie totale de 20 mJ/cm^2 . Les densités d'électrons (a) et de trous (b) sont calculées en tenant compte des centres EL2, tandis qu'intervient seulement l'absorption à deux photons dans la courbe (c) (électrons ou trous).

En éliminant p_1 de l'équation V-5 c, on obtient alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 n_1}{\partial t^2} + \left(\frac{1}{\tau_{dip}} + \frac{1}{\tau_{din}} + \frac{1}{\tau_{Dn}} + \frac{1}{\tau_{Dp}} + \frac{\partial \ln(\tau_{din})}{\partial t} \right) \frac{\partial n_1}{\partial t} \\ + \left(\frac{1}{\tau_{din}\tau_{Dp}} + \frac{1}{\tau_{dip}\tau_{Dn}} + \frac{1}{\tau_{Dn}\tau_{Dp}} + \frac{1}{\tau_{Dn}} + \frac{\partial \ln(\tau_{din})}{\partial t} \right) n_1 \\ + \left(\frac{1}{\tau_{din}} + \frac{1}{\tau_{dip}} + \frac{1}{\tau_{Dp}} + \frac{\partial \ln(\tau_{din})}{\partial t} \right) \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} + \frac{\beta}{h\nu} \frac{\partial}{\partial t} (mI_o^2) \end{aligned}$$

Dès que l'énergie absorbée dépasse quelques mJ / cm^2 , et pour un pas de réseau $1\mu m$, les temps de relaxation diélectrique des électrons et des trous sont bien inférieurs aux constantes de temps de diffusion τ_{Dn} et τ_{Dp} ainsi qu'au temps caractérisant l'évolution temporelle de n_1 , on a alors :

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} + \frac{1}{\tau_{Da}} n_1 = \frac{m\beta I_o^2}{h\nu} \quad \text{éq. V-6}$$

$$\text{avec } \frac{1}{\tau_{Da}} = \frac{\frac{1}{\tau_{Dn}\tau_{dip}} + \frac{1}{\tau_{Dp}\tau_{din}}}{\frac{1}{\tau_{din}} + \frac{1}{\tau_{dip}}} = k^2 \frac{(D_n\mu_p + D_p\mu_n)}{\mu_p + \mu_n}$$

La même équation est obtenue en ce qui concerne les trous.

C'est l'approximation de la diffusion ambipolaire. La diffusion des électrons et des trous est gouvernée par le champ de diffusion et par le champ de charge d'espace ou de Dember qui se crée entre électrons et trous.

Ceci nous permet alors de définir un coefficient de diffusion apparent ou diffusion ambipolaire D_a donné par :

$$D_a = \frac{(D_p\mu_n + D_n\mu_p)}{\mu_n + \mu_p}$$

Cette approximation n'est valable que pour des temps de relaxation diélectrique faibles. Elle dépend des densités d'électrons et de trous non modulées n_o et p_o et donc de l'énergie incidente.

Ayant vu que dans le cas de GaAs semi-isolant, la contribution des centres EL2 n'est négligeable que pour des énergies supérieures ou égales à $20 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, l'approximation de la diffusion ambipolaire sera valable dans notre échantillon pour des énergies supérieures ou égales à $20 \text{ mJ} / \text{cm}^2$.

c) Etude expérimentale en picoseconde.

α) Montage expérimental

Le montage expérimental est présenté sur la figure V-5. Nous disposons d'un laser Nd YAG à modes bloqués émettant des impulsions de largeur à mi-hauteur 30 picosecondes. Il est constitué d'un oscillateur et d'un barreau amplificateur. Le laser est polarisé à l'aide d'un prisme de Glan. Une lame demi-onde L1 et un cube polariseur C1 nous permettent de contrôler l'énergie. Le faisceau est divisé en deux à l'aide d'une séparatrice S traitée anti-reflet. L'onde réfléchie par la séparatrice, constitue la sonde. Elle est envoyée sur une ligne à retard ce qui nous permet d'égaliser les chemins optiques entre la pompe et la sonde. La sonde traverse une lame demi-onde L2 et un cube polariseur C2 pour ensuite interférer avec la pompe dans l'échantillon.

Tout d'abord, nous égalisons les intensités des faisceaux dans les deux bras de l'interféromètre en orientant L2 et nous plaçons un cristal de KDP à la place de l'échantillon de GaAs.

Ce cristal de KDP est taillé de façon à donner lorsque les impulsions se recouvrent, un signal doublé en fréquence dans la direction bissectrice à leurs directions de propagation. Cela permet d'égaliser les chemins optiques des deux bras de l'interféromètre et en analysant le signal d'autocorrélation, de largeur à mi-hauteur 42 picosecondes, d'obtenir la durée de l'impulsion supposée gaussienne 30ps.

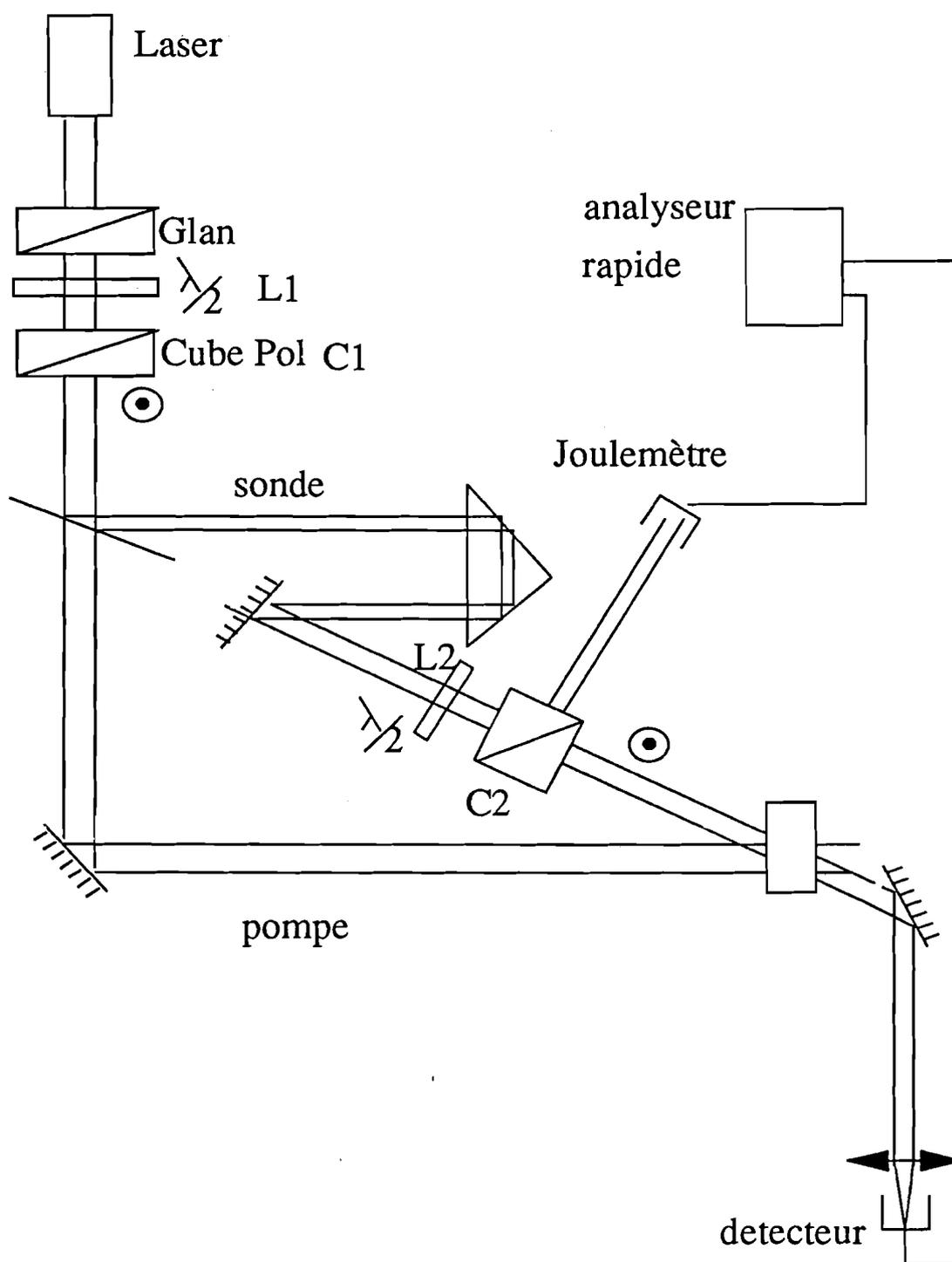


Fig V.5: Montage expérimental de couplage d'onde en picoseconde.

Lors de l'étude de l'amplification par mélange d'ondes, la lame demi-onde L2 est orientée de façon que le rapport des intensités des faisceaux pompe et sonde soit de 500 lorsqu'ils arrivent sur le cristal.

La tache laser a un diamètre de 1 mm et la densité d'énergie à l'intérieur de l'échantillon variera de 0 à $60 \text{ mJ} / \text{cm}^2$. Les deux faisceaux pompe et sonde ne sont pas focalisés sur le détecteur. L'énergie de la sonde avant le cristal est mesurée à l'aide d'un joulemètre et constitue la référence. Le signal sonde et la référence sont alors simultanément envoyés sur un système d'acquisition rapide, de type boxcar, réalisé au laboratoire, puis numérisés et traités par un ordinateur. Avec ce nouveau système qui permet de traiter simultanément la référence et la sonde amplifiée pour la même impulsion, le facteur d'amplification est obtenu sans avoir recours à des moyennes sur un grand nombre d'impulsions présentant nécessairement une dispersion en énergie.

β) Résultats expérimentaux

Nos expériences sont réalisées dans l'échantillon mince de GaAs semi-isolant. Les faisceaux se propagent le long de l'axe (001) et le vecteur réseau est dirigé selon la direction (110).

Mise en évidence de la non-linéarité.

Nous avons tout d'abord observé une défocalisation importante de la sonde en présence de la pompe. Pour une énergie totale de $60 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, le diamètre de la sonde observée à 30 cm environ derrière le cristal est plus que triplé. Cet effet est indépendant des orientations des polarisations respectives des deux faisceaux. Nous interprétons ce phénomène comme étant dû au caractère gaussien des faisceaux.

La variation de permittivité étant ici proportionnelle au carré de l'intensité, la variation d'indice au centre de l'impulsion est beaucoup plus importante que sur les extrémités. Nous induisons donc une variation spatiale importante de l'indice, et l'échantillon de GaAs se comporte alors comme une "lentille" divergente pour la sonde (variation d'indice induite négative).

Pour les mêmes raisons, on observe un effet de prisme induit par la pompe lorsque les faisceaux ne se superposent pas exactement dans le cristal. Cet effet est visible à l'oeil nu à quelques 30 cm derrière le cristal et la déviation est de 5 mn environ. Cela correspond à un angle de déviation dont l'ordre de grandeur est de 1° .

Enfin pour des angles de 10 ou 6 degré entre la pompe et la sonde, plusieurs ordres diffractés sont visibles sur l'échantillon mince de GaAs. Ils sont plus aisément observables lorsque les intensités de la pompe et la sonde sont égales mais le premier ordre diffracté de la pompe est également présent lorsque le rapport pompe-sonde est de 500. Ces ordres diffractés disparaissent lorsque l'on croise les polarisations de la sonde et de la pompe, ce qui atteste donc de la présence d'un réseau dans l'échantillon. Les pas du réseau lumineux pour des angles de 6 et 10 degré sont de 5 et 3 μm , ce qui est largement inférieur à l'épaisseur de notre échantillon (500 μm). La présence de ces ordres diffractés, bien que l'on se situe en régime de Bragg (réseau épais) est due aux fortes non-linéarités induites en régime picoseconde.

Transfert d'énergie

La défocalisation du faisceau sonde due au faisceau pompe influence notre mesure de gain. En effet, ce phénomène contribue à diminuer la densité d'énergie de la sonde en présence de la pompe indépendamment des polarisations respectives des deux ondes.

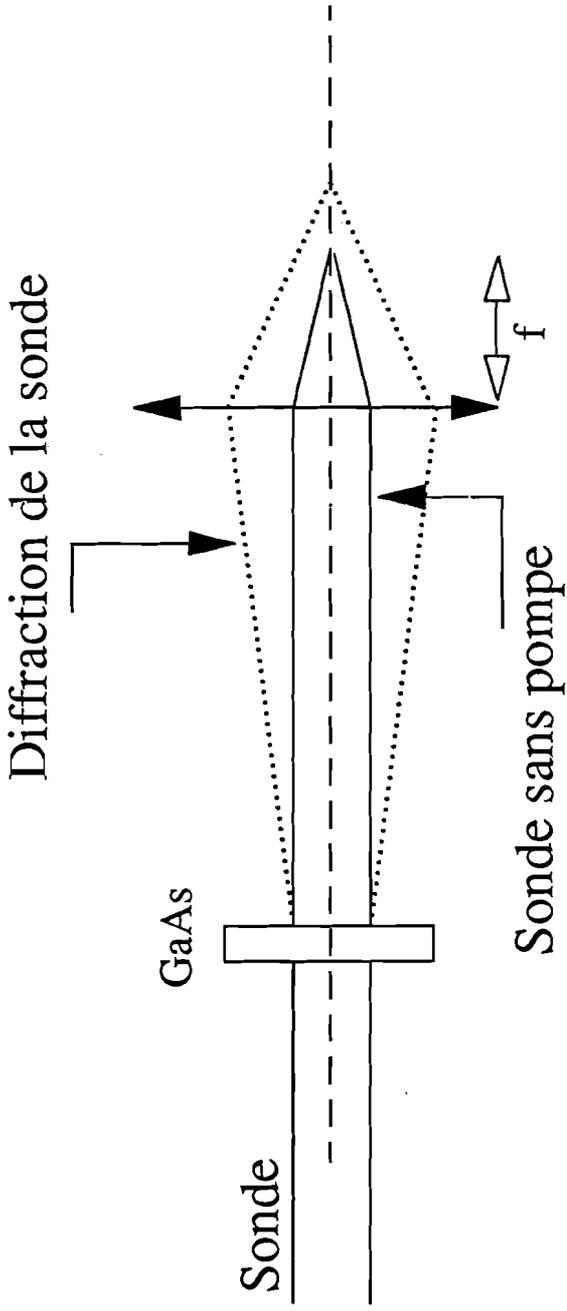


Fig V.6: diffraction de la sonde en présence de pompe.

Pour l'éliminer il aurait fallu élargir le faisceau pompe et ne prendre que la partie centrale mais dans ce cas l'énergie aurait été insuffisante pour obtenir une bonne amplification de la sonde. Nous avons considéré que la fraction d'énergie de la sonde, diffractée par l'effet de lentille induit par l'intensité de la pompe, ne devait pas être comptabilisée dans la mesure de notre gain; c'est un effet indépendant du réseau d'indice induit par l'interférence des deux ondes. L'onde sonde, après avoir traversé l'échantillon est focalisée à l'aide de la lentille L1 de foyer 6 cm (distance focale) sur une cellule rapide de temps de montée 0,5 nanoseconde. La position de notre détecteur est réglée en optimisant le signal lorsque la sonde traverse seule l'échantillon. Comme cela est schématisé sur la figure V-6, l'énergie diffractée par l'effet de lentille dû à la pompe n'est alors pas recueillie sur le détecteur dont la surface est de quelques centaines de μm^2 . En l'absence de faisceau pompe, l'énergie mesurée est celle contenue dans tout le faisceau sonde. En présence de faisceau pompe, la partie de l'énergie diffractée par l'effet de lentille induite n'est pas recueillie par le détecteur de faible surface. Le gain de transfert d'énergie ainsi mesuré est donc inférieur à ce qu'il aurait été sans cet effet de lentille.

Nous avons mesuré l'amplification de la sonde pour deux valeurs de l'angle 2θ entre les faisceaux pompe et sonde. Le gain a été mesuré pour θ de l'ordre de 6° et θ de l'ordre de 10° sur notre échantillon mince de GaAs semi-insolant. Cela correspond à des pas de réseaux induits de 5 et 3 μm , ce qui pour un échantillon d'épaisseur 500 μm représente des conditions d'enregistrement de réseaux épais. Dans les deux cas, nous observons une amplification notable du faisceau sonde de l'ordre de 10 pour une énergie de 60 mJ / cm^2 et $\theta = 6^\circ$ (fig V-7). Le gain dépend fortement de l'énergie.

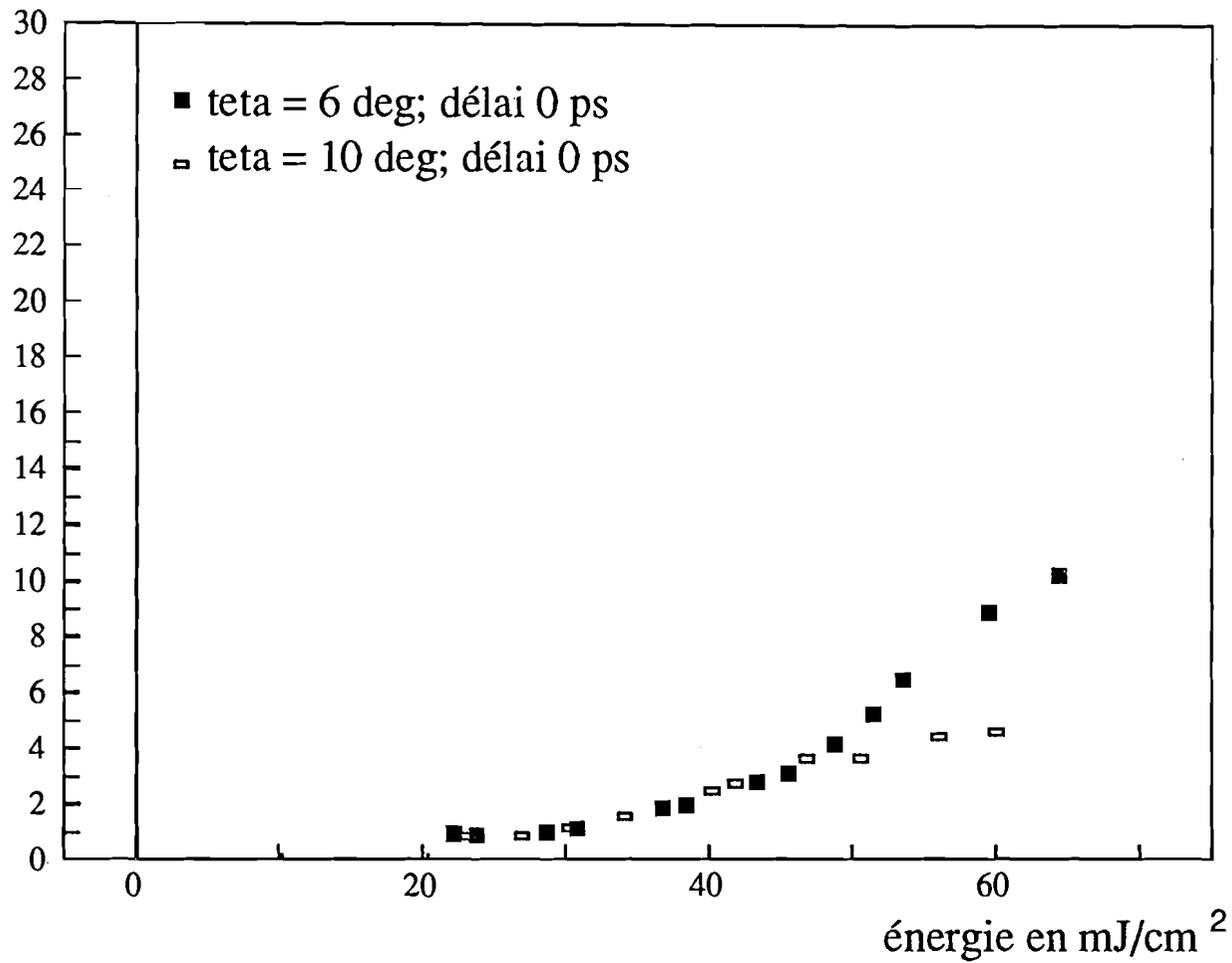


Fig V.7: Gain en fonction de l'énergie totale pour deux angles d'incidences entre les impulsions.

Pour une énergie totale incidente constante, la valeur mesurée de l'intensité sonde amplifiée varie de quelques pour cent. Nous pensons que ces fluctuations peuvent provenir de légères variations spatiales d'énergie dans la tache laser, et de légères fluctuations sur la durée de l'impulsion. Cela peut modifier la puissance crête. Les valeurs expérimentales représentées sur la figure V-7 sont une moyenne sur 10 mesures pour une même énergie incidente.

On remarque d'autre part sur la figure V-7 que le gain mesuré à haute énergie est plus important pour $\theta = 6^\circ$ que pour $\theta = 10^\circ$. Cette différence provient de la différence du temps de diffusion des électrons et des trous plus grande à $\theta = 6^\circ$ qu'à $\theta = 10^\circ$. Les porteurs diffusent plus durant le passage de l'impulsion lorsque $\theta = 10^\circ$ et la variation d'indice modulée est moins forte. Le gain est donc moindre pour $\theta = 10^\circ$ que pour $\theta = 6^\circ$. Dans l'approximation de la diffusion ambipolaire, le temps de diffusion des porteurs est $\tau_D = 325\text{ ps}$ pour $\theta = 6^\circ$ et $\tau_D = 120\text{ ps}$ pour $\theta = 10^\circ$. L'influence de la diffusion ambipolaire est plus visible à haute énergie qu'à faible énergie. Cela se comprend bien, puisqu'intégrant l'énergie sur toute l'impulsion, ce régime atteint dès le début de l'impulsion à haute énergie, n'est pas obtenu qu'en fin d'impulsion à faible énergie.

Nous avons également observé une forte dépendance du gain en fonction du délai entre les deux impulsions. Lorsque le faisceau sonde est en avance de quelques picosecondes sur le faisceau pompe, le gain observé sur le faisceau sonde augmente fortement lorsque $\theta = 6^\circ$. Il peut même être plus que doublé pour un délai de 13 picosecondes entre la pompe et la sonde (fig V-8). Pour des délais supérieurs le gain redécroit (fig V-9). Lorsque le faisceau sonde est en retard de quelques picosecondes sur le faisceau pompe, le gain observé décroît également (fig V-10).

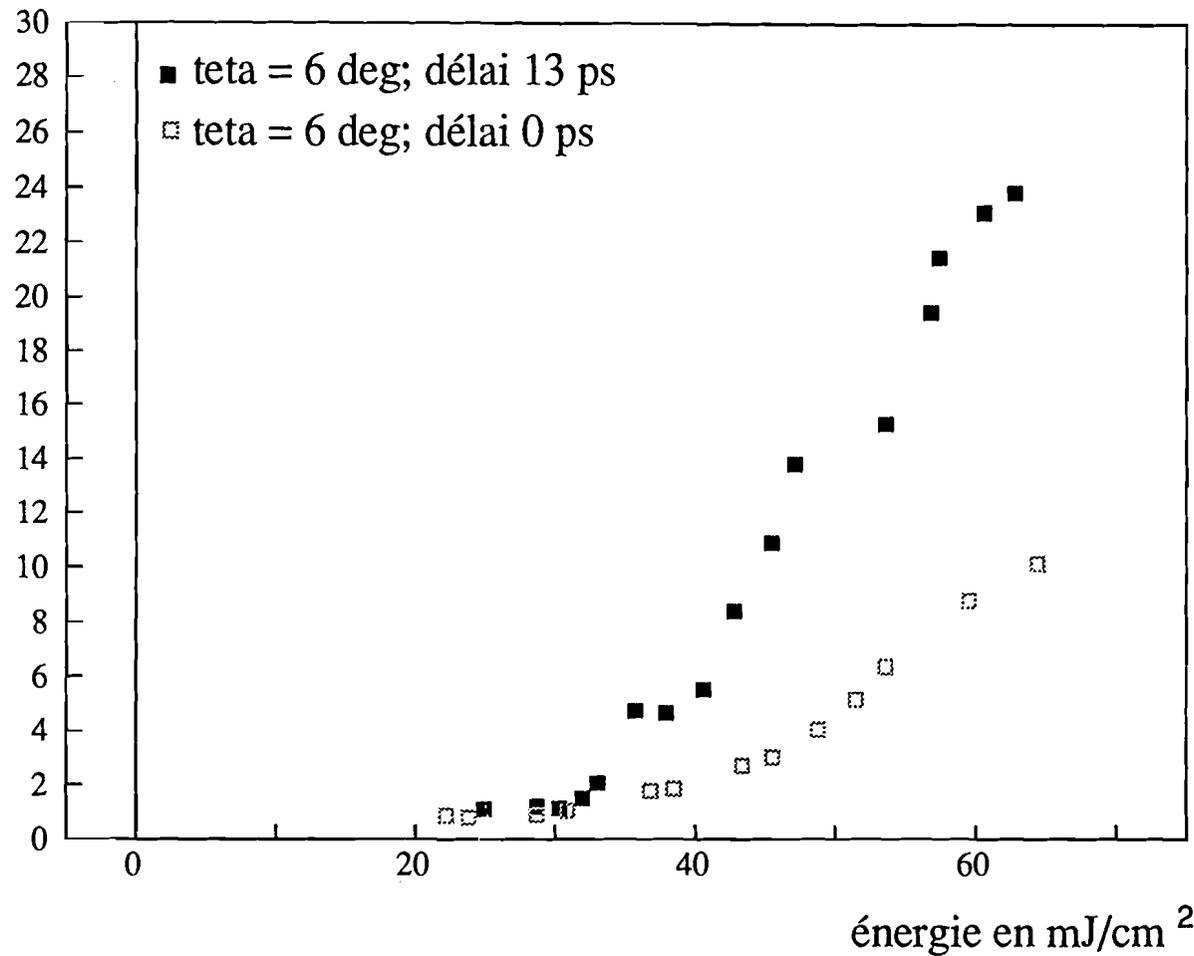


Fig V.8: Gain en fonction de l'énergie totale lorsque pompe et sonde sont en coincidence (□) et lorsque la pompe est en retard de 13 ps par rapport à la sonde (■).

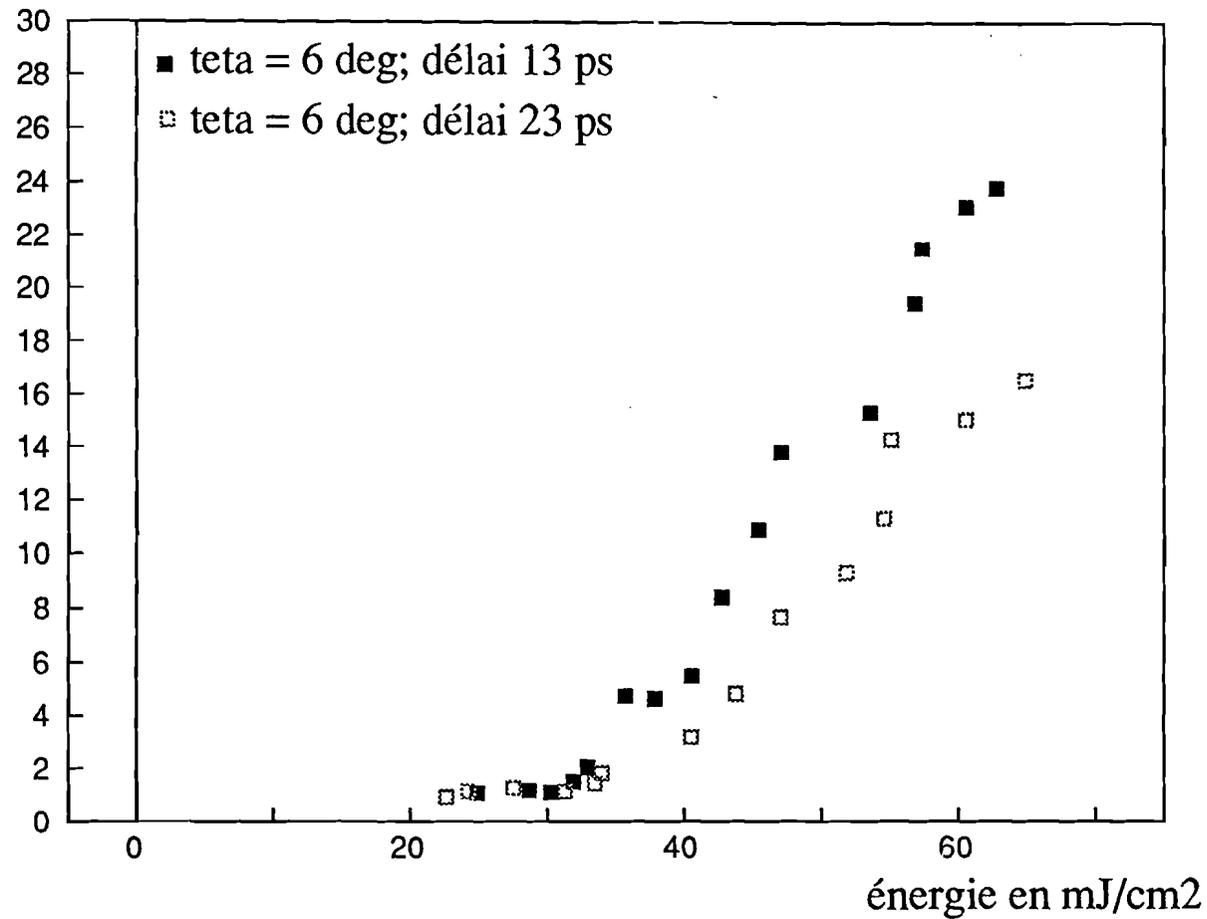


Fig V.9: Gain en fonction de l'énergie totale lorsque la pompe est en retard de 13 ps (■) et de 23 ps (□) par rapport à la sonde.

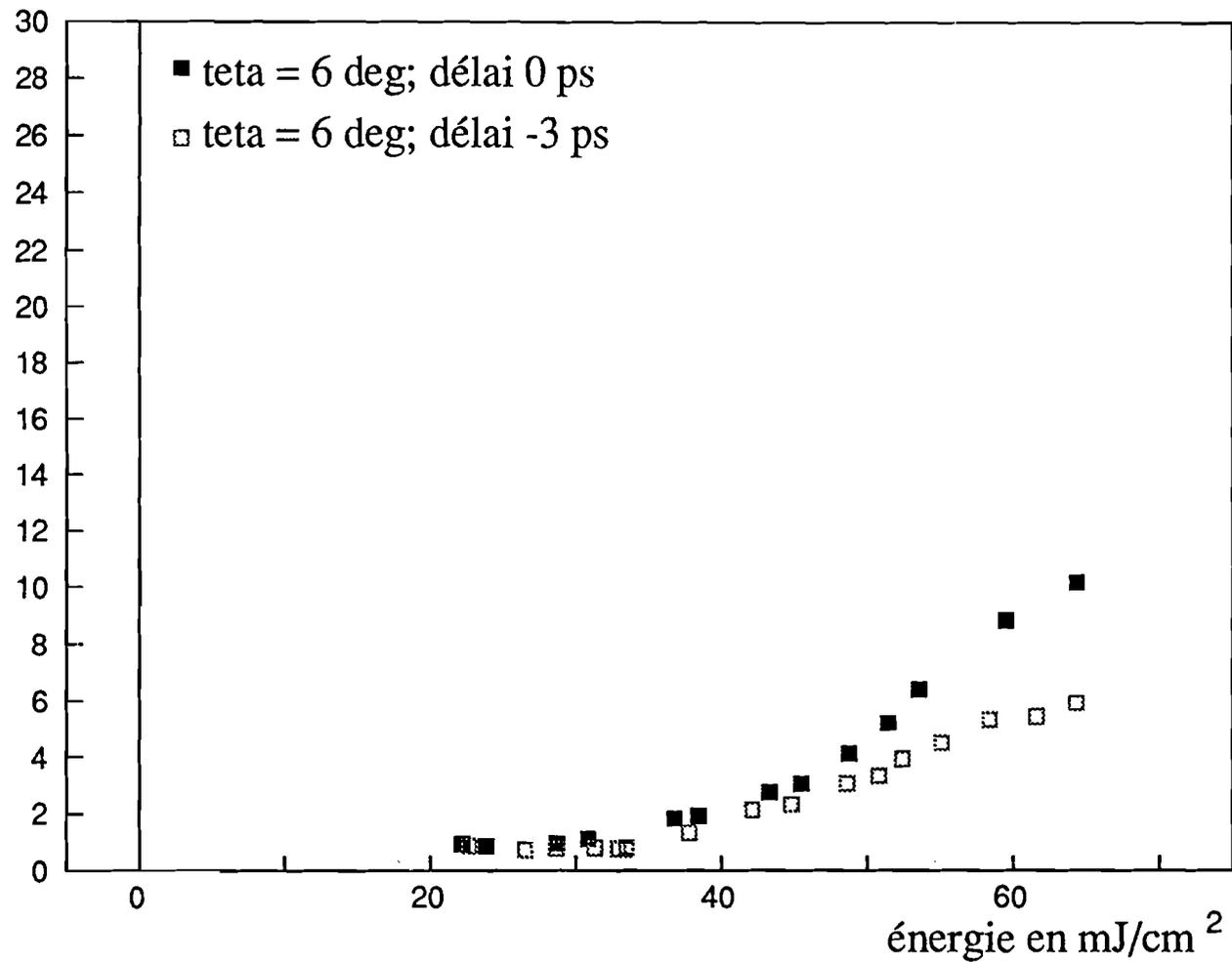


Fig V.10: Gain en fonction de l'énergie totale lorsque pompe et sonde sont en coincidence (■) et lorsque la pompe est en avance de 3 ps par rapport à la sonde (□).

Cette dépendance du gain en fonction du retard entre les deux faisceaux peut s'expliquer. Pour cela, nous reprenons les équations couplées de propagation V-1

$$\begin{cases} \frac{\partial E_s}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1^* E_p \\ \frac{\partial E_p}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1 E_s \end{cases}$$

Par souci de simplification, nous négligeons dans ces équations la contribution de l'absorption tant linéaire que non-linéaire.

Dans le cas où les porteurs sont engendrés par absorption à deux photons, l'évolution de $n_1(t)$ est donnée, pour un retard δ de la sonde par rapport à la pompe, par intégration de l'équation V-6 :

$$n_1(t, \delta) = \int_{-\infty}^t \frac{\beta I_o}{h\nu}(t', \delta) E_s^*(t', o) E_p(t' + \delta, o) \exp\left(\frac{t' - t}{\tau_d}\right) dt'$$

éq. V-7

Nous allons négliger les variations de n_1 dans l'épaisseur de l'échantillon.

Cela revient à se placer dans une tranche mince de matériau.

L'équation qui régit l'évolution de l'amplitude de E_s est alors :

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial z^2} + \left(\frac{K|n_1|}{2}\right)^2 E_s = 0$$

L'intensité vibratoire de la sonde est :

$$\frac{|E_s(t, z)|^2}{2} = \frac{|E_s(t, o)|^2}{2} + \sin^2\left(\frac{K|n_1|z}{2}\right) \left[\frac{|E_p(t, o)|^2 - |E_s(t, o)|^2}{2} \right]$$

Pour un grand rapport entre les intensités des faisceaux pompe et sonde, l'énergie diffractée dans la direction de la sonde est :

$$Qd = \frac{1}{2nc\epsilon_o} \int_{-\infty}^{+\infty} |E_p(t, o)|^2 \sin^2 \left(\frac{K|n_1|(t, \delta)z}{2} \right) dt \quad \text{éq. V - 8}$$

Pour que l'énergie diffractée soit maximale, il faut que, au même instant, l'intensité de la pompe soit maximale et que $K|n_1|z = \pi$.

L'équation V-7 montre que n_1 dépend de façon complexe du carré de la puissance crête de la pompe et de la modulation de l'intensité. Dans cette expression, $I_o(t', \delta)$ est pratiquement égale à l'intensité de la pompe. A un instant fixé, par exemple au maximum de l'impulsion sonde, $n_1(t, \delta)$ dépend de la valeur δ du décalage entre la pompe et la sonde. Par rapport à ce que l'on obtiendrait lorsqu'il y a coïncidence entre les impulsions, n_1 est plus important lorsque la pompe est en avance, et plus faible lorsque lorsqu'elle est en retard. Lorsque Kn_1z est supérieur à π , pour des impulsions en coïncidence, l'introduction d'un retard sur la pompe diminue n_1 et augmente le terme en $\sin^2 \left(\frac{Kn_1z}{2} \right)$. Cela permet de comprendre pourquoi l'énergie diffractée (eq V-8) est plus importante lorsque la pompe est en retard par rapport à la sonde (fig V-8).

Un comportement similaire quoique moins prononcé est également observé lorsque $\theta = 10^\circ$ (fig V-11).

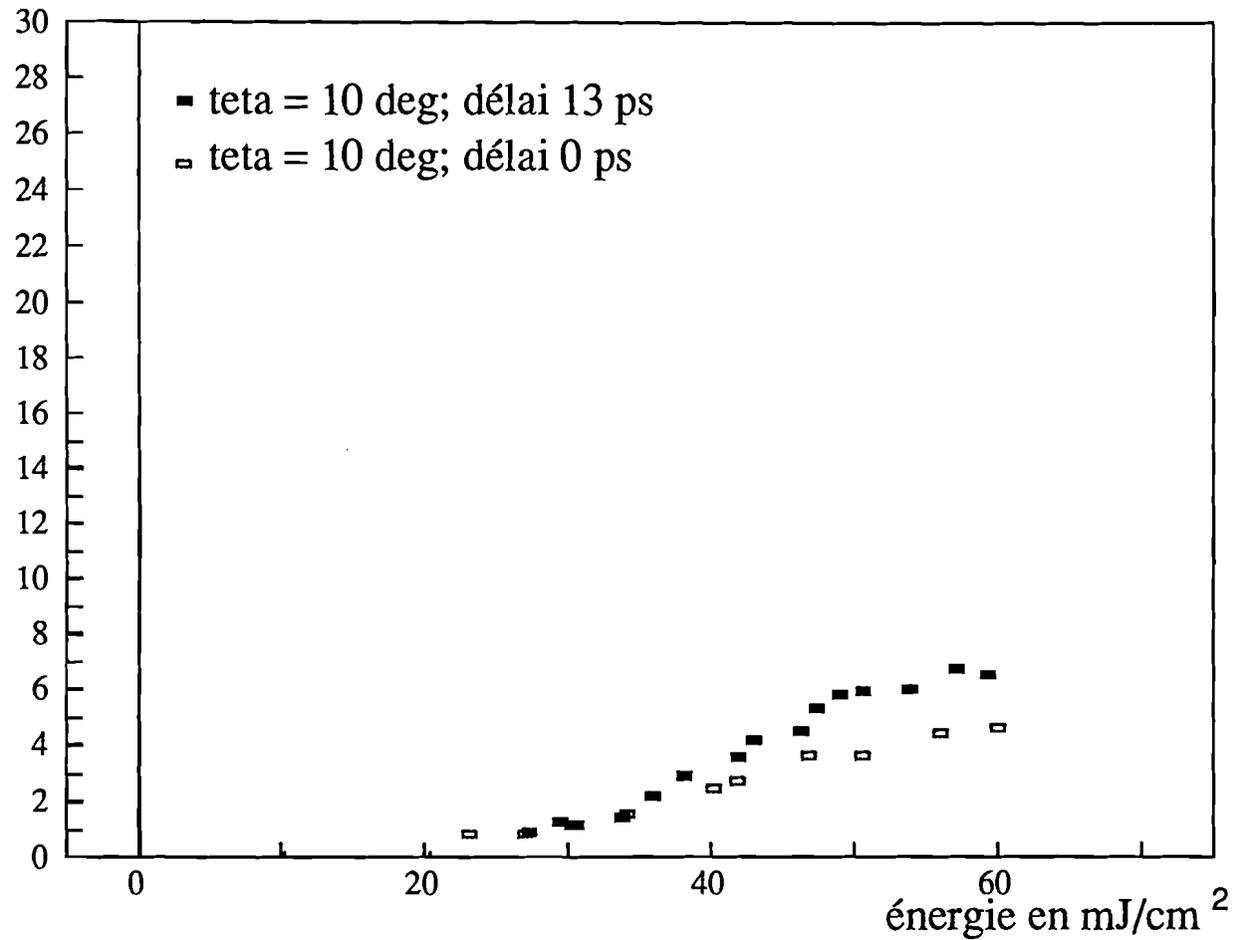


Fig V.11: Gain en fonction de l'énergie totale lorsque pompe et sonde sont en coincidence (□) et lorsque la pompe est en retard de 13 ps par rapport à la sonde (■).

d) Simulations du couplage d'onde.

Afin de pouvoir donner une estimation du gain de couplage en régime picoseconde, nous avons été conduit à résoudre numériquement à la fois les équations régissant la cinétique des porteurs libres et les équations de propagation. Comme nous l'avons vu au paragraphe V-I b, ce système d'équations est fortement non-linéaire et il n'existe pas à notre connaissance de solution analytique le décrivant. Nous nous sommes limités au cas où les impulsions pompe et sonde sont en coïncidence.

Par contre, nous avons tenu compte des distributions gaussiennes spatiales et temporelles des impulsions.

Nous avons donc résolu numériquement les équations V-4 et les équations de propagation, dans lesquelles nous incluons également l'absorption linéaire, l'absorption non-linéaire due aux électrons libres et l'absorption à deux photons. L'atténuation de la pompe est également prise en compte et les équations de propagation sont :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_s}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1^* E_p - \frac{\alpha}{2} E_s - \frac{S_e n_o}{2} E_s - \frac{\beta I_0}{2} E_s \\ \frac{\partial E_p}{\partial z} = j \frac{K}{2} n_1 E_s - \frac{\alpha}{2} E_p - \frac{S_e n_o}{2} E_p - \frac{\beta I_0}{2} E_p \end{cases}$$

Les équations V-4 qui régissent la cinétique du plasma électrons-trous sont résolues par un algorithme de prédiction correction d'Adams-Basforth-Moulton d'ordre 4 qui a déjà été présenté au chap. II. Les équations de propagation sont quant à elles résolues par un algorithme de Runge Kutta à l'ordre 4.

L'amplitude de la sonde est calculée à tout instant dans l'impulsion. Cette impulsion amplifiée est alors intégrée temporellement ce qui nous fournit l'énergie de la sonde en présence de pompe divisée par l'énergie de la sonde après traversée du cristal en l'absence de l'onde pompe.

Ce premier calcul est fait en supposant que la largeur spatiale de l'impulsion est infinie. Dans cette hypothèse, l'amplification calculée sur la sonde correspond à une interaction pour des ondes planes. Le résultat est présenté sur la figure V-12-a pour deux pas de réseau lumineux.

Le gain augmente fortement pour des énergies comprises entre 20 et 30 mJ / cm^2 ce qui est dû à la création de porteurs libres par l'absorption à deux photons. Au delà de 30 mJ / cm^2 , le gain calculé pour des ondes planes atteint la valeur d'environ 120 et redécroît ensuite au fur et à mesure que l'énergie augmente. Ceci est dû à plusieurs facteurs: d'une part l'absorption non-linéaire augmente fortement avec l'énergie et contribue à diminuer le gain à haute énergie.

D'autre part, nous avons vu que l'amplification de la sonde ne se produit que lorsque l'intensité de la pompe est bien supérieure à celle de la sonde. Lorsque l'amplification de la sonde devient de l'ordre de 100, le rapport pompe-sonde, qui était initialement de 500, n'est plus que de 5. Le phénomène d'amplification de la sonde est alors diminué et l'absorption non-linéaire devient prépondérante. Notons finalement que l'hypothèse des faibles modulations qui nous permet de résoudre les équations de conservation V-4 n'est plus vraiment valable lorsqu'il y a un tel transfert d'énergie.

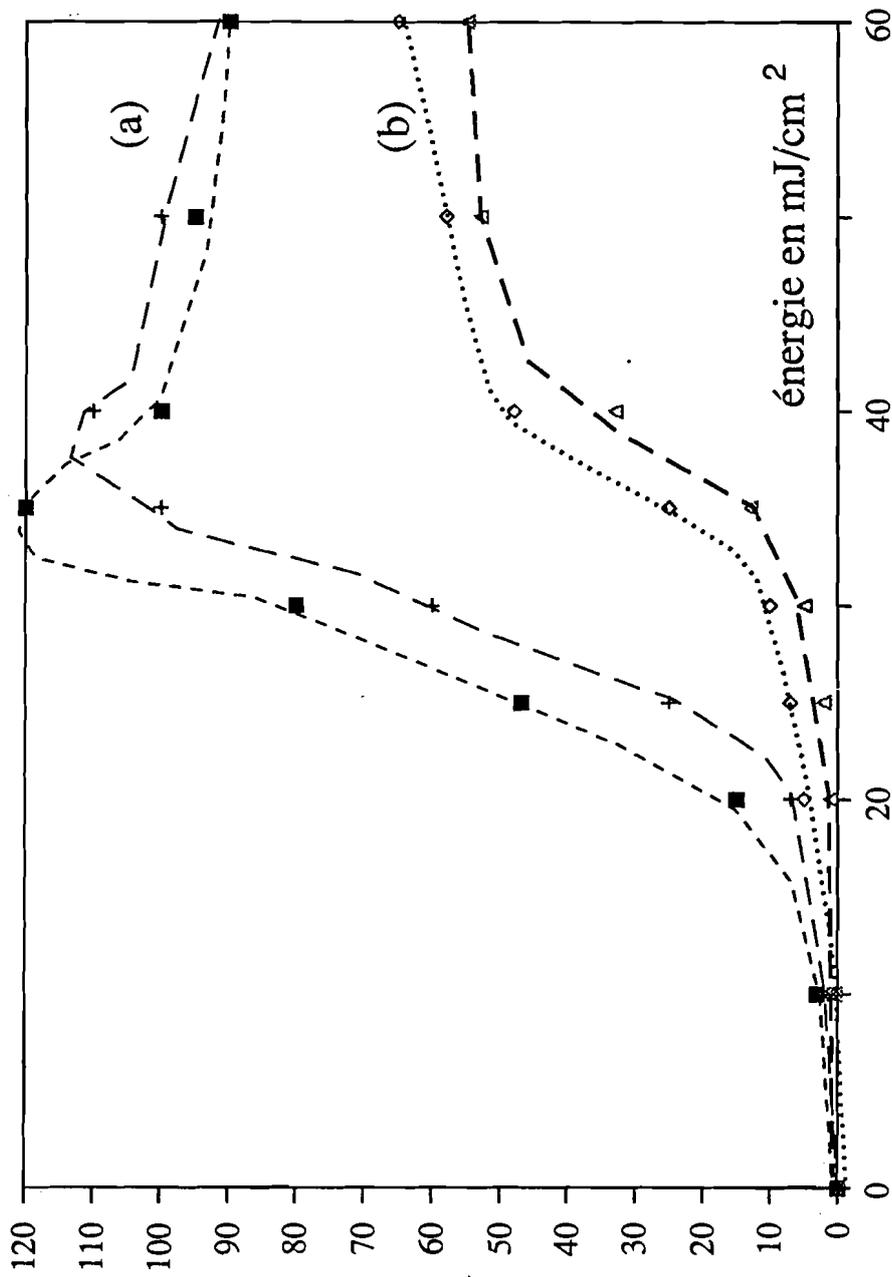


Fig V.12: Gain prédit par les simulations numériques.

Les courbes (a) sont obtenues pour des ondes planes avec un pas de 5 microns (■) et un pas de 3 microns (+). Dans les courbes (b), on prend en compte le caractère Gaussien des impulsions pour un pas de 5 (◊) et 3 (▲) microns.

Le gain théorique calculé pour des ondes planes dépend également du pas du réseau lumineux. En deçà de $30 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, le gain pour un pas de $5 \mu\text{m}$ est supérieur au gain pour $\Lambda = 3 \mu\text{m}$. Ceci est dû simplement à la diffusion des porteurs libres photoionisés qui est plus importante durant le passage de l'impulsion lorsque le pas Λ diminue. Au delà de $30 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, le gain en ondes planes pour $\Lambda = 3 \mu\text{m}$ devient supérieur au gain pour $\Lambda = 5 \mu\text{m}$. Nous pensons que cela est simplement dû à la saturation de l'amplification de la sonde. Pour le réseau de petit pas à cause de la diffusion, l'énergie nécessaire à la saturation de l'amplification est plus forte que celle nécessaire pour des grands pas. Vers $35 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, l'amplification de la sonde pour $\Lambda = 5 \mu\text{m}$ est saturée contrairement au cas où $\Lambda = 3 \mu\text{m}$. Pour les énergies supérieures, le gain pour $\Lambda = 3 \mu\text{m}$ continue donc de croître jusqu'à la saturation (énergie de $40 \text{ mJ} / \text{cm}^2$) et devient supérieur au gain pour $\Lambda = 5 \mu\text{m}$. Pour les très fortes énergies, au delà de $50 \text{ mJ} / \text{cm}^2$, les gains, sous l'action de l'absorption non-linéaire, redeviennent alors égaux.

Du fait de la répartition spatiale de l'intensité dans la tache laser, le gain au centre de l'impulsion n'est pas le même que sur les extrémités. Nous avons alors réalisé une intégration spatiale de l'impulsion pour une méthode de Gauss (ordre 10).

La figure V-12-b montre que le gain intégré pour des impulsions gaussiennes est plus faible que pour des ondes planes. Pour calculer l'amplification d'un faisceau gaussien, nous prenons le gain calculé pour des ondes planes pour des énergies convenablement choisies, données par les abscisses de Gauss.

L'amplification de faisceau gaussien dépend comme pour les ondes planes du pas du réseau photoinduit. La décroissance du gain calculé en ondes planes au delà de $50 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ est masquée par le caractère gaussien de nos impulsions. Les courbes de la figure V-12 prédisent à haute énergie des gains importants. L'approximation des faibles modulations, nécessaire à la linéarisation des équations n'est plus vérifiée à haute énergie. L'apparition d'harmoniques supérieurs réduira l'amplification. D'autre part, nos simulations ne prennent pas en compte l'effet de lentille induite par l'intensité gaussienne de la pompe. Tenir compte d'un tel mécanisme aurait nécessité une puissance de calcul dont nous ne disposons pas sur nos ordinateurs.

Nous pensons que ces deux phénomènes sont responsables du facteur 6 qu'il y a entre le gain calculé et le gain expérimental.

V.3 Discussion

Nous avons mis en évidence la possibilité d'induire de fortes non-linéarités dans le GaAs semi-isolant en régime picoseconde. Ces fortes non-linéarités se manifestent par une défocalisation de la sonde en présence de la pompe, et par un transfert d'énergie entre les deux impulsions résultant de l'interférence des deux ondes. Nous avons d'autre part observé que ce transfert d'énergie dépend fortement du délai entre les deux impulsions et que le gain peut atteindre la valeur de 25 lorsque la pompe est en retard de 15 picosecondes par rapport à la sonde.

Nous avons tenté de donner une estimation du gain théorique de couplage entre les deux impulsions, en résolvant simultanément les équations de propagation et les équations régissant la cinétique des porteurs libres photocréés dans l'approximation des faibles modulations. Cette approximation, valable lorsque la sonde est bien plus faible que la pompe, n'est plus justifiée lorsque le transfert d'énergie est important. D'autre part, la défocalisation de la sonde en présence de pompe n'a pas pu être prise en compte. Ceci conduit à surestimer le gain théorique de couplage d'un facteur de 6 environ.

Conclusion

Nous avons réalisé une étude théorique et expérimentale des non-linéarités optiques dans l'arseniure de gallium résultant de la création de porteurs libres dans les bandes de valence et de conduction par des impulsions de longueur d'onde $1,06 \mu\text{m}$.

En régime nanoseconde, les porteurs de charge sont créés par photoionisation du défaut natif EL2. L'évolution relative des concentrations des centres profonds ionisés et non ionisés sous illumination conduit à une variation de transmission observée et analysée dans une expérience de type pompe et sonde. La variation de permittivité résultant de l'excitation de porteurs libres à partir du niveau EL2 a été mise en évidence et étudiée par des expériences de mélange à quatre ondes. A forte énergie incidente, un autre mécanisme, le mouvement non-linéaire des porteurs (électrons dans la bande de conduction) est à prendre en considération et a été étudié dans un échantillon de GaAs dopé n.

La faiblesse de la non-linéarité engendrée par des impulsions nanosecondes est principalement due à la faible valeur de la densité de centres profonds. Il est possible d'augmenter cette concentration au moyen de l'irradiation électronique de l'échantillon. Cela devrait conduire à la création de non-linéarités plus importantes.

En régime picoseconde, les fortes non-linéarités dues à la création de paires électrons trous par absorption à deux photons permettent d'obtenir un échange d'énergie notable entre deux ondes incidentes sur le cristal.

Dans ces deux régimes, l'effet non-linéaire est présent tant que les porteurs n'ont pas commencé à diffuser. Lorsque ceux ci diffusent, ces non-linéarités locales sont remplacées par les non-linéarités photoréfractives. La variation de permittivité résulte alors de l'effet électro-optique produit par le champ induit dans le cristal par la migration des charges électriques. L'étude de ces mécanismes en régime d'excitation picoseconde compléterait ce travail sur les non-linéarités induites dans GaAs semi-isolant.

Annexe 1

Résolution numérique d'un système d'équations différentielles par une méthode de prédiction-correction d'Adams d'ordre 4.

On se propose de résoudre le système d'équations différentielles.

$$\frac{dy}{dt} = f(y, t) = y'$$

où y est un vecteur dont les coordonnées représentent, par exemple, les densités d'électrons, de trous et les densités de centres recherchées.

On calcule alors une suite de valeurs y_n qui constituent une approximation de la solution recherchée y au temps t_n . Chaque élément de la suite y_n est calculé en fonction des quatre éléments précédents de la suite.

En supposant connues les valeurs de $y_n, y_{n-1}, y_{n-2}, y_{n-3}$, on se propose de calculer y_{n+1} .

La méthode d'Adams Basforth d'ordre 4 permet de prédire une valeur Py_{n+1} de y_{n+1} ,

$$Py_{n+1} = y_n + \frac{dt}{24} [55y'_n - 59y'_{n-1} + 37y'_{n-2} - 9y'_{n-3}]$$

où dt est le pas d'intégration.

La valeur de Py_{n+1} nous donne alors la valeur de y'_{n+1} et on utilise alors la méthode d'Adams Moulton d'ordre 4 comme correction :

$$y_{n+1} = y_n + \frac{dt}{24} [9y'_{n+1} + 19y'_n - 5y'_{n-1} + y'_{n-2}]$$

Cette méthode comporte plusieurs avantages :

Tout d'abord, elle converge assez rapidement. L'erreur converge vers 0 comme la puissance quatrième du pas. D'autre part, on peut montrer que Py_{n+1} et y_{n+1} sont situés de part et d'autre de la valeur recherchée. On peut

donc, en calculant par exemple $\frac{Py_{n+1} - y_{n+1}}{y_{n+1}}$, imposer une erreur relative

inférieure à 10 % en changeant de pas au cours du programme.

Cette méthode nécessite cependant de connaître les 4 premières valeurs de la suite. Il nous a donc fallu initialiser l'algorithme par une méthode de Runge Kutta à l'ordre 4, dont nous rappelons ci-dessous la formule :

$$y_{n+1} = y_n + \frac{dt}{6}(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)$$

$$\text{avec } k_1 = f(t_n, y_n), \quad k_2 = f\left(t_n + \frac{dt}{2}, y_n + \frac{dt}{2}k_1\right)$$

$$k_3 = f\left(t_n + \frac{dt}{2}, y_n + \frac{dt}{2}k_2\right) \quad k_4 = f(t_n + dt, y_n + dtk_3)$$

Notons que lorsque l'on change le pas d'intégration dt en cours de calcul, on est obligé de réinitialiser l'algorithme de correction-prédiction d'Adams par la méthode de RungeKutta à l'ordre 4.

Bibliographie

- (1) C.K.N. Patel et al., "Optical nonlinearities due to mobile carriers in semiconductors" *Phys. Rev. Letters*, 17, p. 1011, 1966.
- (2) P.A. Wolff et al., "Theory of optical mixing by mobile carriers in semiconductors" *Phys. Rev. Letters*, 17, p. 1015, 1966.
- (3) S.S. Jha et al., "Nonlinear optical susceptibilities in group IV and III-V semiconductors" *Phys. Rev.*, 171, 3, p. 891, 1968.
- (4) R.K. Jain, "DFWM in semiconductors: application to phase conjugation and to picosecond resolved studies of transient carrier dynamics" *Opt. Eng.*, 21, 2, p. 199, 1982.
- (5) D.A.B. Miller et al., "Band gap resonant nonlinear refraction in III-V semiconductors" *Phys. Rev. Lett.*, 47, 3, p. 197, 1981.
- (6) W. Jamroz, "The third order electric susceptibilities of NaCl and KCl monocrystals" *Opt. Quant. Electron.*, 12, p. 443, 1980.
- (7) K. Kash et al., "Nonlinear optical studies of picosecond relaxation times of electron in nGaAs and nGaSb" *Appl. Phys. Lett.*, 42, 2, p. 173 1983.
- (8) S.Y. Yuen et al., "Difference frequency variation of the free carrier induced third order nonlinear susceptibility in n-InSb" *Appl. Phys. Lett.*, 40, 6, p. 457, 1982.
- (9) M.A. Khan et al., "Optical Phase Conjugation in $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ " *Opt. Lett.*, 5, 6, p. 261, 1980.
- (10) S.Y. Auyang et al., "Free carrier induced third order optical nonlinearities in semiconductors" *J. Opt. Soc. Am. B*, 6, 4, p. 565, 1989.
- (11) E.O. Kane, The k.p method in "Semiconductors and Semimetals" R.K Willardson and A.C Beer eds, vol 1, Academic Press, N Y, 1966.
- (12) Y.J. Chen et al., "Measurement of third order nonlinear susceptibilities by surface plasmons" *Appl. Phys. Lett.*, 41, 4, p. 307, 1982.

- (13) B.S. Wherrett, "A comparison of theories of resonant nonlinear refraction in semiconductors" Proc. R. Soc. Lond. A 390, p. 373, 1983
- (14) D.H. Auston et al., "Picosecond spectroscopy of semiconductors" Solid. State Elect., 21, p. 147, 1988.
- (15) R.A. Fisher, "Optical phase conjugation" chap. 10 , Academic Press, N Y, 1983.
- (16) S.M. Sze, "Physics of semiconductor devices" John Wiley and Sons 1969.
- (17) J.C. Bourgoin et al., "Native defect in gallium arsenide" J. Appl. Phys. 64, 9, p. R65, 1988
- (18) D.E. Holmes et al., "Stoichiometry-controlled compensation in liquid encapsulated Czochralski GaAs" Appl. Phys. Lett. 40,1, p. 46, 1982.
- (19) D. Bois et al., "Spectroscopies thermiques et optiques des niveaux profonds: application à l'étude de leur relaxation de réseau" Rev. Phys. Appl. 15, p. 631, 1980.
- (20) Ph. Delaye et al., "Cw two beam coupling in InP:Fe and GaAs: evidence for thermal hole electron competition in InP:Fe" Accepted for publication in J. Opt. Soc. Am. B, 7, 1990.
- (21) N.W. Ashcroft et N.D Mermin, "Solid State Physics" HRW International editions.
- (22) A. Mitoneau et al., "Electron and hole capture cross-sections at deep centers in gallium arsenide" Rev. Phys. Appl., 14, p. 853, 1979.
- (23) P. Dobrilla et al., "Experimental requirements for quantitative mapping of midgap flow concentration in semi-insulating GaAs wafers by measurement of near infrared transmittance" J. Appl. Phys., 58, p. 208, 1985.
- (24) A. Mitonneau et al., "Auger deexcitation of a metastable state in GaAs" Solid State Com., 30, p. 157, 1979.
- (25) A. Chantre et al., "Deep level optical spectroscopy in GaAs" Phys. Rev. B 23, p. 5335, 1981.

- (26) T.F. Boggess et al., "Optical limiting in GaAs" IEEE J. Quantum Electron. QE 21, p. 488, 1985.
- (27) G.M. Martin et S Makran Ebeid, "The midgap donor level EL2 in GaAs" in deep center in semiconductors, a state of the art approach ST Pantelides, Ed New York, Gordon and Breach , 1986.
- (28) J.S. Blakemore, "Semiconducting and other major properties of gallium arsenide" J. Appl. Phys. , 53, p. R123, 1982.
- (29) A. Von Lehmen et al., "Investigation of the nonlinearity in the luminescence of GaAs under high density picosecond photoexcitation" J. Appl. Phys., 58, p. 958, 1985.
- (30) W. Valukiewicz et al., "Characterisation of semi-insulating III-V materials" S Makram Ebeid and B Tuck, eds Nantwich UK Shiva, p. 121, 1982.
- (31) D.T.F. Marple, "Refractive index of GaAs" J. Appl. Phys., 35, 4, p. 1241, 1964.
- (32) K.S. Champlin et al., "Search of resonance behavior in the microwave dielectric constant of GaAs" Appl. Phys. Lett., 11, p. 348 , 1967.
- (33) W.G. Spitzer et al., "Infrared absorption and electron effective mass in n type gallium arsenide" Phys. Rev., 114, 1, p. 59, 1959.
- (34) M. Sibony et J.C. Mardon "Analyse numérique :approximations et équations différentielles" Editeurs des sciences et des arts.
- (35) A. Maruani, "Propagation analysis of forward degenerate four wave mixing" IEEE J. Quantum Electron., 16, p. 558, 1980.
- (36) I.C. Khoo et al., "Nanosecond laser amplification via degenerate multiwave mixing in silicon" Appl. Phys. Lett., 52, 7, p. 525, 1988.
- (37) H.J. Eichler et al., "Picosecond pulse amplification by coherent wave mixing in silicon" Phys. Rev. A, 35, 11, p. 4673, 1987.
- (38) Thèse de F. Sanchez, "Etudes des propriétés non-linéaires des cristaux liquides et des semiconducteurs dans l'infrarouge à 10,6 μm " Université de Paris Sud, 1987.

- (39) R.A. Fisher, "Optical phase conjugation" Chap. 2, Academic Press, 1983.
- (40) J.C. Fabre et al., " $\bar{4}3m$ photorefractive materials in energy transfer experiments" Opt. Commun., 65, p. 257, 1988.
- (41) V.L. Vinetskii et al., "Transformation of intensities and phases of light beams by a transient 'undisplaced' holographic grating" Sov. J. Quantum Electron., 24, p. 230, 1977.
- (42) G.C. Valley et al., "Theory of transient energy transfer in gallium arsenide" IEEE J. Quantum Electron., 24, p. 304 1988.
- (43) H.M. Ma et al., " Picosecond pulse amplification by wave mixing in GaAs" Appl. Phys. Lett., 54, p. 1953, 1989.

