

Etude des non linéarités optiques par mélange à deux ondes dans les semi-isolants et semiconducteurs .

Jean-Claude Fabre

▶ **To cite this version:**

Jean-Claude Fabre. Etude des non linéarités optiques par mélange à deux ondes dans les semi-isolants et semiconducteurs .. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1989. Français. NNT : . pastel-00714008

HAL Id: pastel-00714008
https://pastel.hal.science/pastel-00714008

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 SCIENCES

PAR

Jean-Claude FABRE

SUJET : *Etude des non linéarités optiques par mélange à deux ondes dans les composés III-V semi-isolants*

soutenue le *Jeudi 16 novembre 1989* devant la Commission d'examen

MM. *C. IMBERT* Président

J.B. GRUN

B. LAMBERT

A. BRUN

M. LIZOT

G. ROOSEN

et Virginie

Je remercie particulièrement Monsieur le Professeur C. Imbert de m'avoir accueilli dans les laboratoires de l'Institut d'Optique et de me faire honneur de présider mon jury de thèse.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude et mon affection envers Monsieur G. Roosen qui m'a dirigé dans ce travail et qui m'a prodigué les très nombreux conseils dont j'ai eu besoin.

Tous mes remerciements à Messieurs J.M.C. Jonathan et P.U. Halter qui m'ont grandement aidé pour ce travail et qui m'ont gentiment soutenu au cours de ma thèse.

Toute ma reconnaissance à Mrs J.B. Grün et B. Lambert qui ont bien voulu accepter d'être rapporteurs de ce travail et mes chaleureux remerciements à Mrs M. Lizot et A. Brun pour leur participation au jury.

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

Merci aussi aux membres de l'atelier d'optique de l'IOTA qui ont mis au point les techniques de polissages nécessaires pour nos cristaux.

Je tiens également à remercier Mademoiselle N. Bonavent qui a eu la gentillesse et la patience de dactylographier ce mémoire. Merci aussi à Madame Delmotte qui s'est occupée du tirage.

Enfin, au terme de ce travail, je tiens aussi à remercier sincèrement tous ceux qui m'ont fait bénéficier de leurs connaissances, de leur savoir faire et qui m'ont permis de travailler dans une atmosphère d'émulation et de saine collaboration. Je men-

tionnerai tout spécialement Mrs. Y. Toudic, Ph. Gravey et G. Picoli (CNET Lannion) et Mr. J. Von Bardeleben (Groupe de Physique des Solides de l'ENS) avec qui j'ai eu des échanges très fructueux.

ABSTRACT

Photorefractive effect offers unique features for information processing. Semiconductors are photorefractive materials that promise, due to their high carrier mobility, short response times. Experimental and theoretical two-wave-mixing investigations have been conducted in InP:Fe and GaAs:Cr crystals. In addition, a second effect, nonlinear absorption, is superimposed to the photorefractive effect in InP:Fe. The two phenomena can be separated using the symmetries of the photorefractive effect. We present a complete analysis of both nonlinear effects. For the photorefractive beam coupling, two types of charge carriers (electrons and holes) are involved in the charge transport model. The charge carriers are photoexcited from a single deep trap (Fe^{2+}/Fe^{3+} or Cr^{2+}/Cr^{3+}). The nonlinear or induced absorption is based on a redistribution of the populations of the different Fe-levels. Computer simulations explain the time evolution and energy dependence of both phenomena. A comparison between experiment and theory gives estimated values of some important parameters of these crystals.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION 1

I - EFFET PHOTOREFRACTIF

1. Présentation de l'effet 4

2. Propriétés électro-optiques 8

a) Ellispoïde des indices
b) Effet Pockels
c) Configurations expérimentales

3. Matériaux photoconducteurs 18

a) Diagramme d'énergie InP:Fe et GaAs:Cr
b) Phénomènes physiques
c) Equations fondamentales
d) Cas de l'illumination résultante de l'interférence de deux ondes planes, champ de charge d'espace.

II - PROPRIETES DES CRISTAUX D'InP:Fe ET GaAs:Cr

1. Indice de réfraction 34

2. Coefficient électro-optique, permittivité relative 36

3. Section efficace de photoionisation, mobilités 39

4. Absorption linéaire 40

5. Conductivité dans l'obscurité 41

6. Photoconductivité 46

a) Photoconduction en régime continu
b) Photoconduction en régime nanoseconde

7. Conclusion 77

III - APPROCHE THEORIQUE DU COUPLAGE D'ONDE PHOTOREFRACTIF

1. Transfert d'énergie photoréfractif ou couplage d'onde 80

a) Création d'un réseau d'indice
b) Autodiffraction des ondes incidentes

2. Théorie des ondes couplées 84

3. Symétries de l'effet photoréfractif 90

a) Configuration k_R//[001]
b) Configuration k_R//[110]

IV - ETUDE EXPERIMENTALE DU TRANSFERT D'ENERGIE EN REGIME NANOSECONDE

1. Montage expérimental 98

2. Résultats expérimentaux GaAs:Cr 102

a) Configuration k_R//[001]
b) Configuration k_R//[110]

3. Résultats expérimentaux InP:Fe 107

a) Courbe de transfert d'énergie
b) Mise en évidence de l'absorption non linéaire
c) Gain relatif de couplage, configuration k_R//[001]

4. Conclusion 113

V - ETUDE DE L'ABSORPTION NON LINEAIRE DANS LE CRISTAL D'InP:Fe

1. Introduction 114

2. Résultats expérimentaux 116

a) Montage expérimental
b) Absorption non linéaire à 1,06 µm
c) Absorption non linéaire à 1,30 µm
d) Photoconduction

3. Modèle d'excitation et recombinaison de charge 129

4. Simulations numériques 134

a) Introduction
b) Discussion

5. Conclusion 146

VI - ETUDE THEORIQUE DU COUPLAGE D'ONDE EN REGIME NANOSECONDE DANS InP:Fe ET COMPARAISON AVEC L'EXPERIENCE

1. Introduction 149

2. Modèle de transport de charge à deux types de porteurs : équations d'évolution 151

3. Simulation numériques : discussion 154

a) Evolution temporelle des grandeurs non modulées spatialement
b) Evolution temporelle des grandeurs modulées spatialement

3. Comparaison avec les résultats expérimentaux 166

4. Conclusion 172

CONCLUSION GENERALE 173

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 175

INTRODUCTION

L'étude des nonlinéarités optiques s'est surtout développée avec l'apparition des sources laser. Parmi les effets non linéaires importants se trouve l'effet photoréfractif. Cet effet, découvert dans les années soixante, permet de réaliser une grande variété d'opérations dans les domaines de la conjugaison de phase, de l'amplification et du traitement du signal. Il permet aussi d'accroître nos connaissances de base sur de nombreux cristaux tels les sillénites, les ferroélectriques et les semiconducteurs.

Ces derniers présentent un grand intérêt dans la mesure où ce sont des matériaux de base de l'optoélectronique ayant des applications dans le proche infrarouge. Ce sont les cristaux photoréfractifs qui possèdent les plus grandes mobilités des porteurs de charge et dans lesquels le temps d'établissement de cet effet est très court.

Ce mémoire présente une étude tant expérimentale que théorique des non linéarités optiques dans les semiconducteurs composés III-V semi-isolants InP:Fe et GaAs:Cr. Dans ces deux matériaux, nous avons réalisé une expérience de mélange à deux ondes en régime d'excitation nanoseconde à la longueur d'onde 1,06μm . Nous avons tout d'abord mis en évidence un transfert d'énergie (amplification d'un faisceau aux dépens de l'autre) dû à l'effet photoréfractif dans chacun de ces cristaux. Dans InP:Fe un autre effet non linéaire se superpose à l'effet photoréfractif, une absorption non linéaire ou absorption optiquement induite.

Dans le premier chapitre, nous rappelons l'origine de l'effet photoréfractif dans ces cristaux qui sont à la fois électro-optiques et photoconducteurs.

Nous montrons, en présentant un modèle d'excitation, de transport et de recombinaison de charge, comment la conjugaison de ces deux propriétés permet cet effet photoréfractif. Ce modèle considère que deux type de porteurs de charge (électrons et trous) participent à ces mécanismes.

Dans le second chapitre, nous présentons les principales propriétés des cristaux d'InP:Fe et de GaAs:Cr que nous étudions.

A la longueur d'onde 1,06 µm et parfois 1,30 µm, nous mesurons successivement le coefficient d'absorption linéaire, la conductivité dans le noir, la photoconductivité en régime continu et en régime d'excitation nanoseconde.

Dans le troisième chapitre, nous présentons une étude théorique du mélange à deux ondes ou couplage d'onde photoréfractif.

D'une part, nous développons la théorie des ondes couplées, permettant d'expliquer l'interaction des ondes lors de leur propagation à l'intérieur du cristal photoréfractif et de calculer le transfert d'énergie résultant. D'autre part, nous étudions les symétries de l'effet photoréfractif et montrons que cet effet peut exister dans une configuration expérimentale qui n'avait jusqu'alors pas été étudiée.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude expérimentale du couplage d'onde sous excitation nanoseconde à la longueur d'onde 1,06 µm.

Dans le cristal de GaAs:Cr, seul l'effet photoréfractif est présent et le transfert d'énergie résultant confirme bien les

symétries précédemment étudiées. Dans le cristal d'InP:Fe, ces mêmes symétries nous ont permis d'isoler l'effet photoréfractif d'un autre effet non linéaire : l'absorption optiquement induite. Dans ces deux matériaux, on observe une dépendance en énergie du gain relatif de couplage qui caractérise le transfert d'énergie photoréfractif.

Le cinquième chapitre concerne l'étude du phénomène d'absorption non linéaire dans le cristal d'InP:Fe . Sa grandeur et ses cinétiques d'établissement et de relaxation sont analysées.

Dans cette étude expérimentale et théorique, nous montrons que ce phénomène peut être expliqué à partir de la redistribution des différentes populations des niveaux du dopant fer. C'est d'ailleurs la seule impureté prise en compte. A partir d'un modèle d'excitation et recombinaison des porteurs de charge, nous conduisons des simulations numériques qui permettent d'analyser nos résultats expérimentaux et d'accéder à des estimations de paramètres du matériau jusqu'alors peu connus.

Dans le sixième chapitre sont développées des simulations théoriques du mélange à deux ondes photoréfractif . La résolution numérique des résultats dans le cristal d'InP:Fe est présentée.

A partir du modèle présenté au premier chapitre, nous avons effectué des résolutions numériques donnant l'évolution temporelle et la dépendance en énergie des différentes grandeurs intervenant. Nous avons surtout analysé l'évolution du champ de charge d'espace, champ modulé spatialement, qui est à l'origine de l'effet photoréfractif. De la comparaison entre l'expérience et nos simulations numériques, nous avons aussi pu estimer certains paramètres de ce cristal. Enfin, la dépendance observé en énergie a pu être expliquée.

EFFET PHOTOREFRACTIF

I.1. INTRODUCTION

L'effet photoréfractif initialement appelé "optical damage" a été découvert en 1966 dans les laboratoires Bell par Ashkin et al. [1] . Il a été observé pour la première fois dans des cristaux ferroélectriques $LiNbO_3$ et $LiTaO_3$. Un faisceau laser, (de longueur d'onde 514,7 nm puis 632,8 nm correspondant au domaine de transparence du matériau) ayant été focalisé dans ces cristaux, a subi une distorsion de son front d'onde mise en évidence par une divergence accrue à la sortie du cristal.

Le phénomène est attribué à une variation d'indice du matériau, induite par l'illumination.

Cet effet a tout d'abord été considéré comme préjudiciable (la distorsion du front d'onde limite l'utilisation de ces matériaux pour le doublage de fréquence ou la modulation à haute fréquence), cependant des études ultérieures ont montré qu'en chauffant ou en illuminant de façon uniforme le cristal, celui-ci recouvrait son état initial.

Cette variation d'indice de réfraction lors d'une illumination fut appelée effet photoréfractif. Ceci s'explique par le fait que ces matériaux sont à la fois électro-optiques et photoconducteurs.

Ils sont électro-optiques, c'est-à-dire que leur indice de réfraction se modifie sous l'action d'un champ électrique.

Ils sont photoconducteurs, c'est-à-dire qu'ils deviennent conducteurs sous l'action d'un rayonnement d'énergie bien choisie, soit ici, permettant de photoioniser un niveau d'impureté situé dans la bande interdite.

Nous montrerons ultérieurement que la conjugaison de ces deux propriétés explique bien le mécanisme de l'effet photoréfractif.

La possibilité d'utiliser cette variation d'indice induite par illumination permet de réaliser de nombreuses applications notamment en holographie en régime dynamique et en optique cohérente [2-4]. Citons par exemple :

- amplification d'images et signaux optiques par couplage d'onde [5-7].

- restauration d'images et de fronts d'onde comportant des aberrations, ceci par conjugaison de phase [8-9]

- réalisation de miroirs à conjugaison de phase utilisés dans la construction de cavités laser autooscillantes, soit dans une cavité en anneau, soit comme miroir de la cavité [10-16].

- fabrication d'interconnexions optiques reprogrammables [17-18].

- stockage optique de l'information [19-23].

- intensification de bords d'images et le traitement en temps réel d'images optiques [24-29].

- opérations logiques optiques en temps réel telles que des fonctions logiques [30-31], des opérations de corrélation-convolution [32], des filtres de nouveauté [33].

- des modulateurs spatiaux de lumière [34-35] et enfin produit d'un vecteur par une matrice par conjugaison de phase [36].

L'effet photoréfractif a été observé dans de nombreux matériaux électro-optiques :

- dans des ferroélectriques à octaèdres d'oxygène tels $K(NbTa)O_3$, Tantalate Niobate de Potassium [37], $LiTaO_3$, Tantanate de Lithium [1, 21-23] , $BaTiO_3$, Titanate de Barium [10-14, 24, 25, 30, 39].

- dans des cristaux de la famille des sillénites tels $Bi_{12}GeO_{20}$ Oxyde de Bismuth Germanium [9, 19, 40-43], $Bi_{12}SiO_{20}$ oxyde de Bismuth Silicium [3, 5, 15,18-20, 26, 29,31-34,44-46]...

- et plus récemment, à partir du milieu des années 80, dans des semiconducteurs tels CdTe, Tellure de Cadmium, InP, Phosphure d'Indium [47-50, 6, 51, 52] , GaAs, Arseniure de Gallium [7, 16, 27, 28, 35, 36, 47, 49, 50, 53-62].

Ces derniers matériaux présentent un grand intérêt dans la mesure où ce sont les matériaux de base de l'optoélectronique ayant des applications dans le proche infrarouge (domaine spectral des communications optiques). L'énergie optique nécessaire pour créer l'effet photoréfractif est suffisament faible pour permettre l'utilisation de diodes laser [46].

Lorsque nous avons débuté notre étude, l'effet photoréfractif dans ces matériaux avait été mis en évidence principalement en régime quasi-continu ; cependant des études en régime nanoseconde dans $Bi_{12}SiO_{20}$ [44, 45] et en picoseconde dans $Bi_{12}SiO_{20}$ [46] et GaAs [54, 60, 61] venaient juste d'être commencées.

L'effet photoréfractif est principalement sensible à l'énergie optique absorbée. En régime quasi-continu où la puissance lumineuse utilisée est faible, le temps d'établissement de l'effet est grand. Par contre, en régime impulsionnel où la puissance lumineuse est forte, il est nettement plus bref. La limitation intrinsèque de l'établissement de l'effet est liée aux propriétés de transport de charge dans le matériau et les semiconducteurs étant les matériaux photoréfractifs les plus photoconducteurs, ont des temps de réponse nettement plus rapides que les sillénites et les ferroélectriques. La connaissance et la compréhension des mécanismes de l'effet photoréfractif en régime pulsé sont importantes. Nous avons étudié et mis en évidence cet effet en régime nanoseconde dans InP:Fe et GaAs:Cr à la longueur d'onde 1,06 μm. De plus, dans InP:Fe, nous avons aussi observé, analysé et expliqué un autre mécanisme optique non linéaire qui se superpose à l'effet photoréfractif.

I.2. PROPRIETES ELECTRO-OPTIQUES

a) Ellipsoïde des indices

La propagation d'une onde électromagnétique dans un diélectrique est décrite par les équations de Maxwell

$$\begin{aligned} &\operatorname{div} \vec{D} = 0 && \operatorname{div} \vec{B} = 0 \\ &\overrightarrow{\operatorname{rot}}\ \vec{B} = \mu_0 \left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \right) && \overrightarrow{\operatorname{rot}}\ \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \end{aligned} \qquad \text{(I.1)}$$

Dans un milieu dépourvu de pouvoir rotatoire, comme c'est le cas des semiconducteurs InP et GaAs (de la classe de symétrie $\bar{4}3m$), le champ électrique de l'onde $\vec{E}$ est lié à l'induction électrique $\vec{D}$ par :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \vec{E} \qquad \text{(I.2)}$$

$\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}$ étant le tenseur de permittivité diélectrique relative du milieu aux fréquences optiques. Nous pouvons aussi introduire la matrice $\underset{\approx}{\eta}$ d'imperméabilité du matériau :

$$\vec{E} = \underset{\approx}{\eta}\, \vec{D} \qquad \text{(I.3)}$$

soit encore :

$$\underset{\approx}{\eta} = \left[\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \right]^{-1} = \begin{bmatrix} \eta_1 & \eta_6 & \eta_5 \\ \eta_6 & \eta_2 & \eta_4 \\ \eta_5 & \eta_4 & \eta_3 \end{bmatrix} .$$

$\underset{\approx}{\eta}$ est une matrice diagonalisable et le repère dans lequel

elle est diagonale est le repère $(0, \hat{i}, \hat{j}, \hat{k})$ des axes cristallographiques du cristal ou axes de symétrie électrique. Les indices principaux de réfraction du milieu sont alors :

$$n_x = \frac{1}{\sqrt{\eta_x}} \quad , \quad n_y = \frac{1}{\sqrt{\eta_y}} \quad \text{et} \quad n_z = \frac{1}{\sqrt{\eta_z}} \tag{I.4}$$

où η_x, η_y et η_z représentent les valeurs propres de la matrice $\underset{\approx}{\eta}$.

Par suite, on définit l'ellipsoïde des indices dont l'équation est :

$$X^t \left[\underset{\approx}{\eta}\right] X = 1 \qquad \text{avec} \qquad X = \begin{vmatrix} x \\ y \\ z \end{vmatrix} \tag{I.5}$$

Dans le repère des axes cristallographiques du cristal, elle s'écrit :

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \tag{I.6}$$

Si une onde se propage dans le milieu l'intersection du plan d'onde (P) avec l'ellipsoïde des indices est une ellipse dont les axes déterminent les directions des vibrations propres du milieu et dont les longueurs des demi-axes n_1 et n_2 sont les valeurs des indices de réfraction. La différence des deux indices représente la biréfringence.

Les semiconducteurs de la classe de symétrie $\bar{4}3m$ sont isotropes et dans le repère des axes cristallographiques, l'équation de l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} = 1 \tag{I.7}$$

n étant l'indice optique de réfraction du milieu.

b) Effet Pockels

Les cristaux dépourvus de centre de symétrie possèdent la propriété suivante : l'ellipsoïde des indices est modifié proportionnellement à un champ électrique $\vec{E}_o$ (effet électro-optique linéaire ou effet Pockels).

Dans le cas d'une faible perturbation, la matrice d'imperméabilité du matériau sous l'action d'un champ électrique s'écrit :

$$\underset{\approx}{\eta}\,(E_o) = \underset{\approx}{\eta}\,(E_o = 0) + \underset{\approx}{\Delta\eta} \qquad (I.8)$$

Où la variation $\underset{\approx}{\Delta\eta}$ est reliée au champ électrique par le tenseur électro-optique $\underset{\approx\approx}{R}$ selon :

$$\underset{\approx}{\Delta\eta} = \underset{\approx\approx}{R}\,\vec{E}_o \qquad (I.9)$$

qui se développe suivant :

$$\begin{bmatrix}\Delta\eta_1\\ \Delta\eta_2\\ \Delta\eta_3\\ \Delta\eta_4\\ \Delta\eta_5\\ \Delta\eta_6\end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{11} & r_{12} & r_{13}\\ r_{21} & r_{22} & r_{23}\\ r_{31} & r_{32} & r_{33}\\ r_{41} & r_{42} & r_{43}\\ r_{51} & r_{52} & r_{53}\\ r_{61} & r_{62} & r_{63}\end{bmatrix} \begin{bmatrix}E_x\\ E_y\\ E_z\end{bmatrix} \qquad (I.10)$$

L'effet électro-optique peut aussi s'exprimer par une

variation $\Delta\underset{\approx}{\varepsilon}$ du tenseur permittivité :

$$\left(\Delta\underset{\approx}{\varepsilon}\right)_{ij} = \left(\underset{\approx}{\eta}\,(E_o = 0) + \Delta\underset{\approx}{\eta}\right)^{-1}_{ij} - \left(\underset{\approx}{\eta}\,(E_o = 0)\right)^{-1}_{ij} \qquad (I.11)$$

comme le tenseur $\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}$ est hermitien, on obtient :

$$\Delta\varepsilon_{ij} = - \sum_{k,\ell} \varepsilon_{ik}\Delta\eta_{k\ell}\varepsilon_{\ell i} \qquad (I.12)$$

et d'après la relation (I.9) :

$$\Delta\underset{\approx}{\varepsilon} = - \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \left[\underset{\approx\approx}{R}\,\vec{E}_o\right] \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \qquad (I.13)$$

Cette expression de la variation de la permittivité du matériau, induite par effet Pockels, sera utilisée plus tard pour décrire le phénomène de mélange non linéaire d'ondes se propageant dans un cristal photoréfractif.

L'application d'un champ électrique extérieur induit par effet Pockels une biréfringence dans le matériau, qui dans le cas général correspond à un changement des directions et des longueurs des axes de l'ellipsoïde des indices.

Le calcul de cette biréfringence induite s'effectue par un changement de repère et diagonalisation de la matrice $\underset{\approx}{\eta}\left(\vec{E}_o\right)$.

c) Configurations expérimentales

Sous l'action d'un champ électrique extérieur $\vec{E}_o$, pour un cristal isotrope, dans le repère des axes cristallographiques l'ellipsoïde des indices a pour équation :

$$\left[\frac{1}{n^2} + \Delta\eta_1\right] x^2 + \left[\frac{1}{n^2} + \Delta\eta_2\right] y^2 + \left[\frac{1}{n^2} + \Delta\eta_3\right] z^2$$
$$+ 2\,\Delta\eta_4\, yz + 2\,\Delta\eta_5\, zx + 2\,\Delta\eta_6\, xy = 1 \quad \text{(I.14)}$$

avec, d'après la relation I.10 :

$$\Delta\eta_i = \sum_{ij} r_{ij} E_j \quad (i = 1 \text{ à } 6 \; ; \; j = 1,\ 2,\ 3)$$

Dans le cas des semiconducteurs de la classe de symétrie $\bar{4}3m$, seules les composantes $r_{63} = r_{52} = r_{41}$ du tenseur électro-optique sont non nulles. L'équation I.14 devient alors :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + 2\, r_{41} E_x\, yz + 2\, r_{41} E_y\, xz + 2\, r_{41} E_z\, xy = 1$$

Selon l'orientation de $\vec{E}_o$, il existe un repère $(0, \hat{i}', \hat{j}', \hat{k}')$ d'axes, dit axes principaux, dans lequel l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\frac{x'^2}{(n + \Delta n_{x'})^2} + \frac{y'^2}{(n + \Delta n_{y'})^2} + \frac{z'^2}{(n + \Delta n_{z'})^2} = 1 \quad \text{(I.16)}$$

La matrice $\underset{\approx}{\eta}\left(\vec{E}_o\right)$ est diagonale dans ce repère.

α) Configuration $\vec{E}_o$ parallèle à [001]

Lorsque le champ $\vec{E}_o = E_o \hat{k}$ est appliqué selon l'axe cristallographique [001], l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + 2\, r_{41} E_o\, xy = 1 \quad \text{(I.17)}$$

Par rotation de 45° autour de $\hat{k}$, on obtient le système des axes principaux (0, $\hat{i}'$, $\hat{j}'$, $\hat{k}'$) (figure I.1).

$$\hat{i}' \begin{vmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \qquad \hat{j}' \begin{vmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ +\frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \qquad \hat{k}' \begin{vmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{vmatrix} \qquad \text{(I.18)}$$

L'équation de l'ellipsoïde des indices dans ce repère s'écrit :

$$x'^2 \left(\frac{1}{n^2} + r_{41} E_o \right) + y'^2 \left(\frac{1}{n^2} - r_{41} E_o \right) + \frac{z'^2}{n^2} = 1 \qquad \text{(I.19)}$$

Après un développement limité au premier ordre en $n^2 r_{41} E_o$, les indices selon les axes principaux sont :

$$\begin{cases} n_{x'} = n - \frac{\Delta n}{2} \\ n_{y'} = n + \frac{\Delta n}{2} \\ n_{z'} = n \end{cases} \qquad \text{(I.20)}$$

où $\frac{\Delta n}{2} = \frac{n^3}{2} r_{41} E_o$ est la biréfringence induite par effet Pockels pour une onde se propageant selon $\hat{j}'$.

β) Configuration $\vec{E}_o$ parallèle à [110]

Lorsque le champ $\vec{E}_o = E_o \left(\frac{\hat{i} + \hat{j}}{\sqrt{2}} \right)$ est appliqué selon la direction [110], l'ellipsoïde des indices a pour équation :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + 2 \frac{r_{41} E_o}{\sqrt{2}} yz + 2 \frac{r_{41} E_o}{\sqrt{2}} xz = 1 \qquad \text{(I.21)}$$

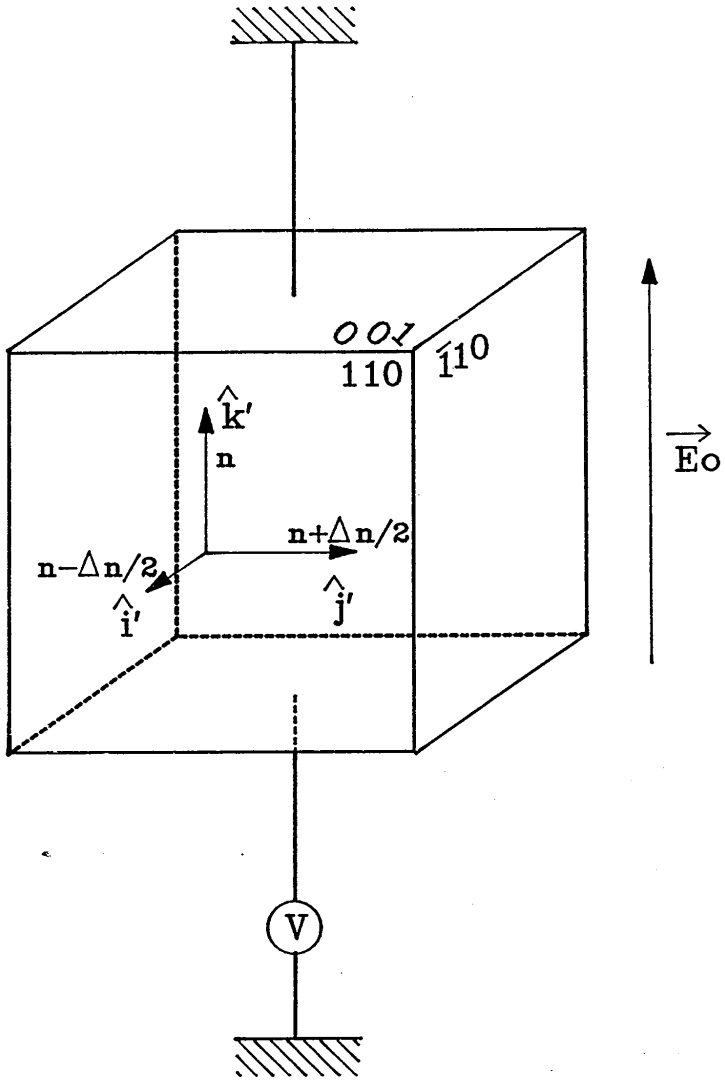


Figure I-1 : Axes principaux $\hat{i}'$, $\hat{j}'$, $\hat{k}'$ lorsque le champ électrique est parallèle à l'axe [001] .

Si on effectue une rotation de 45° des axes cristallographiques autour de $\hat{k}$, dans le repère $(0, \hat{i}", \hat{j}", \hat{k}")$ ainsi obtenu, l'équation de l'ellipsoïde des indices s'écrit :

$$\frac{x"^2}{n^2} + \frac{y"^2}{n^2} + \frac{z"^2}{n^2} + 2\, r_{41} E_o\, x"z" = 1 \qquad (I.22)$$

Si on effectue ensuite une rotation de 45° autour de l'axe $\hat{j}"$ on obtient le repère des axes principaux $(0, \hat{i}', \hat{j}', \hat{k}')$ (voir figure I.2) :

$$\hat{i}' \begin{vmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \end{vmatrix} \qquad \hat{j}' \begin{vmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad \hat{k}' \begin{vmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \end{vmatrix} \qquad (I.23)$$

Dans le repère des axes principaux l'ellipsoïde des indices s'écrit donc :

$$x'^2 \left(\frac{1}{n^2} - r_{41} E_o\right) + \frac{y'^2}{n^2} + z'^2 \left(\frac{1}{n^2} + r_{41} E_o\right) = 1 \qquad (I.24)$$

On déduit les indices selon les axes principaux (après un développement limité au premier ordre en $n^2 r_{41} E_o$) :

$$\begin{cases} n_x = n + \dfrac{\Delta n}{2} \\ n_y = n \\ n_z = n - \dfrac{\Delta n}{2} \end{cases} \qquad (I.25)$$

avec $\Delta n = n^3 r_{41} E_o$, biréfringence induite pour une onde se propageant selon la direction de l'axe $\hat{j}'$ (direction $[\bar{1}, 1, 0]$).

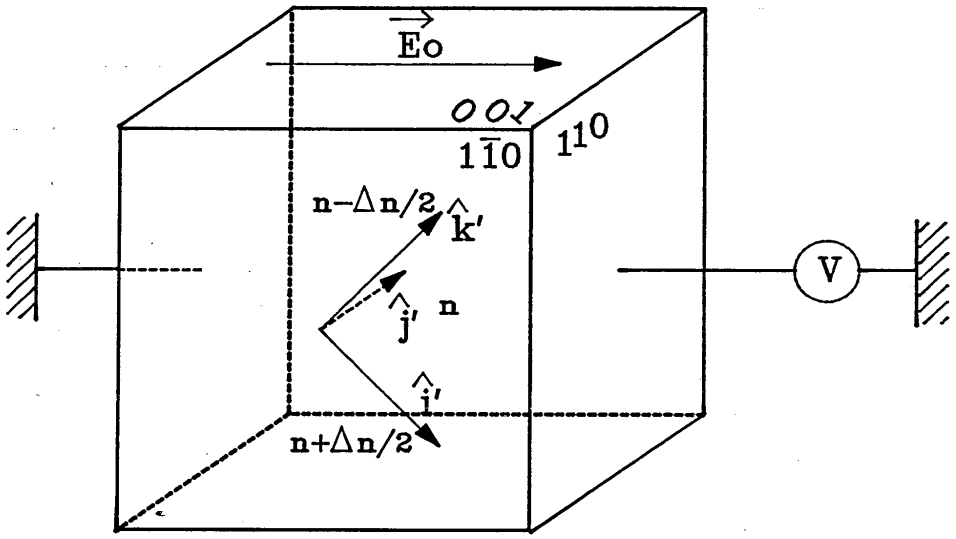


Figure I-2 : Axes principaux $\hat{i}'$, $\hat{j}'$, $\hat{k}'$ lorsque le champ électrique est parallèle à l'axe [110] .

Les échantillons que nous avons étudiés ont été taillés de manière à pouvoir se placer dans l'une ou l'autre des configurations que nous venons de décrire, l'onde se propageant selon $\hat{j}'$.

I.3. MATERIAUX PHOTOCONDUCTEURS

a) Diagramme d'énergie InP:Fe et GaAs:Cr

Les semiconducteurs InP et GaAs sont des composés III-V de la classe de symétrie $\bar{4}3m$. Ils se caractérisent par le fait que deux types de porteurs de charge, électrons et trous, peuvent se propager. Les électrons se déplaçent dans une zone d'énergie, la bande de conduction et les trous dans une autre, la bande de valence Ces deux bandes sont séparées par une zone d'énergie, bande interdite, où aucune excitation n'est possible. Ces deux matériaux sont rendus semi-isolants par l'introduction d'impuretés, par exemple Fe dans InP et Cr dans GaAs, dont les niveaux d'énergie sont situés dans la bande interdite.

Des études récentes [63] on établit que dans le cristal d'InP, le fer se place en site indium. Au départ un ion fer possède une configuration électronique externe $3d^5 4s^1$. Pour former les liaisons avec ses voisins P, le fer doit fournir trois électrons, le phosphore en fournissant cinq. A l'état neutre, le fer existera sous la forme Fe^{3+}. Si cet ion fer capte un électron supplémentaire à partir de donneurs peu profonds, il deviendra Fe^{2+}. Les études de spectroscopie d'absorption optique, de photoluminescence, de résonnance électronique et de photoconductivité ont conduit au diagramme schématique d'énergie à température ambiante de la figure I.3 [64]. Le niveau $^5T_2$ situé à 0,35 eV au-dessus du niveau $^5E_2$ à température ambiante, correspond à un état excité de Fe^{2+}, noté (Fe^{2+*}) [65].

De la même façon dans GaAs, le chrome se place en site Gallium avec l'état de valence Cr^{3+} (neutre), Cr^{1+} (donneur), Cr^{2+}

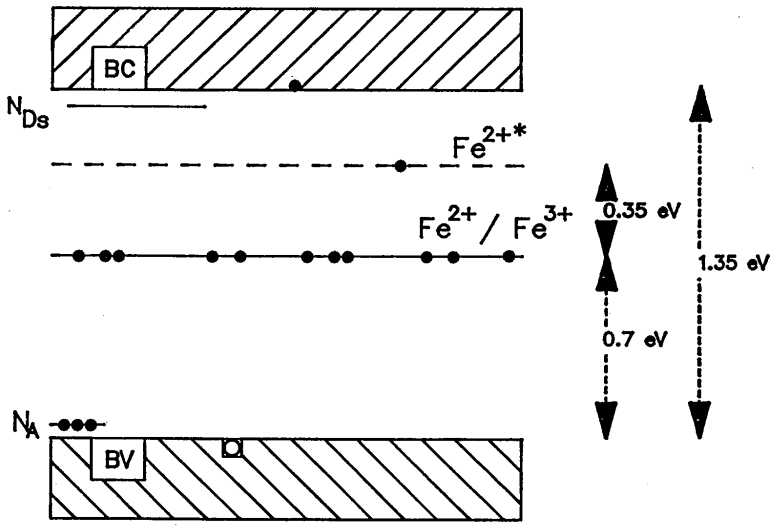


Figure I-3 : Diagramme d'énergie schématique du cristal d'InP:Fe à température ambiante

(donneur) et Cr^{4+} (accepteur) [66, 67] . Le niveau Cr^{1+} est situé dans la bande de conduction et n'intervient pas. Le diagramme schématique d'énergie à température ambiante est représenté figure I.4 [68].

L'effet photoréfractif, que nous allons décrire dans le paragraphe suivant résulte, en première approche, de la redistribution spatiale de charge induite par l'illumination non uniforme dans le niveau profond Fe^{2+}/Fe^{3+} pour InP:Fe et dans le niveau Cr^{2+}/Cr^{3+} pour GaAs:Cr.

b) Phénomènes physiques

L'interaction de la lumière avec les matériaux photoconducteurs donne naissance à de nombreux phénomènes physiques dépendant de la longueur d'onde d'excitation, de la température, etc... Nous pouvons distinguer deux types de conduction :

- la conduction intrinsèque due à des transitions électroniques entre la bande de valence et la bande de conduction ;

- la conduction extrinsèque due à des transitions électroniques entre des niveaux d'énergie situés dans la bande interdite du cristal et la bande de conduction pour les électrons (la bande de valence pour les trous).

Une représentation schématique des différents mécanismes pour l'absorption à un ou deux photons est donnée figure I.5.

L'effet photoréfractif est un phénomène de conduction extrinsèque car la longueur d'onde utilisée (1,06 μm) correspond à une

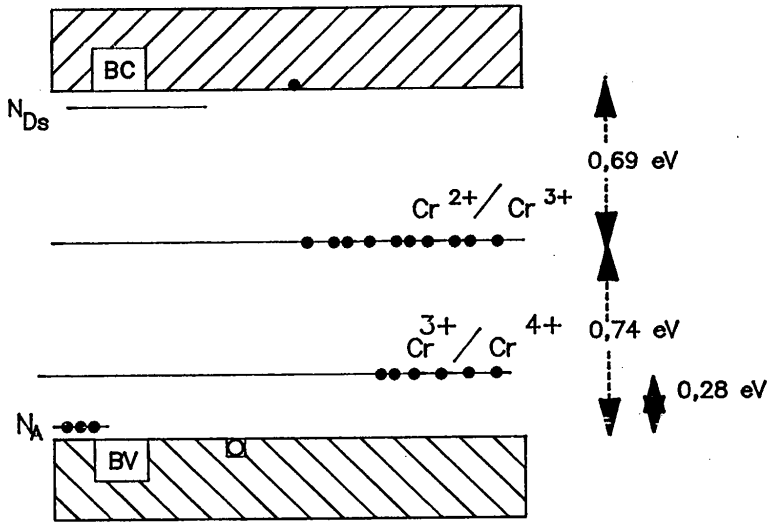


Figure I-4 : Diagramme d'énergie schématique du cristal de GaAs:Cr à température ambiante

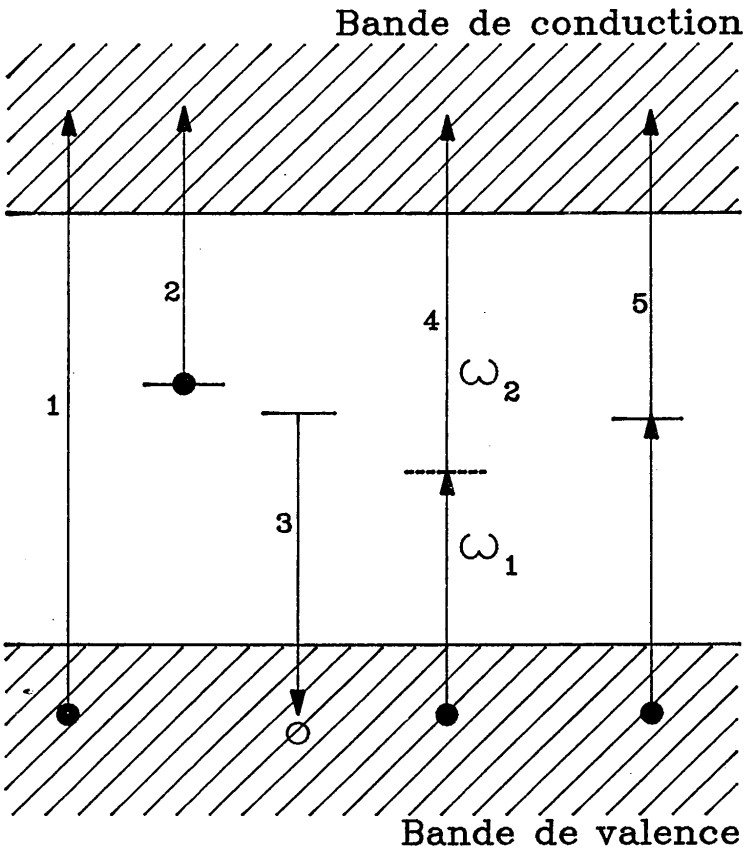


Figure I-5 : Représentation schématique des différents mécanismes pour l'absorption à un ou deux photons :

1/ transition directe bande à bande
2/ excitation d'un électron vers la bande de conduction à partir d'un niveau piège
3/ excitation d'un trou vers la bande de valence à partir d'un niveau piège
4/ Absorption à deux photons "bande à bande" via un état virtuel intermédiaire
5/ Absorption "à deux photons" via un état d'énergie réel

énergie par photon (1,17 eV) inférieure à la différence d'énergie entre les bandes de valence et de conduction (1,34 eV pour l'InP:Fe et 1,43 eV pour GaAs:Cr). De plus, seuls les phénomènes d'excitation d'un électron vers la bande de conduction à partir d'un niveau piège (Fe^{2+} pour InP:Fe et Cr^{2+} pour GaAs:Cr) (mécanisme 2) et d'un trou vers la bande de valence à partir d'un niveau de piège (Fe^{3+} pour InP:Fe et Cr^{3+} pour GaAs:Cr) (mécanisme 3) sont responsables de l'effet photoréfractif.

Les électrons (les trous) excités dans la bande de conduction (de valence) migrent par diffusion ou sous l'entrainement d'un champ électrique et participent au phénomène de conduction. Ils se recombinent ensuite : les électrons vers le niveau piège Fe^{3+} pour InP:Fe et Cr^{3+} pour GaAs:Cr. Ainsi, nous pouvons écrire le processus d'excitation :

$$\begin{cases} Fe^{2+} + h\upsilon \longrightarrow Fe^{3+} + e^- \\ Fe^{3+} + h\upsilon \longrightarrow Fe^{2+} + h^+ \end{cases} \qquad (I.26)$$

avec e^- désignant un électron dans la bande de conduction, h^+ un trou dans la bande de valence et $h\upsilon$ l'énergie d'un photon. De même pour le processus de recombinaison nous avons :

$$\begin{cases} Fe^{3+} + e^- \longrightarrow Fe^{2+} \\ Fe^{2+} + h^+ \longrightarrow Fe^{3+} \end{cases} \qquad (I.27)$$

c) Equations fondamentales

Pour écrire et expliquer l'effet photoréfractif, N. Kukhtarev a proposé un modèle dans lequel le transfert de charge se fait par l'intermédiaire de porteurs libres [69]. Ce modèle nous a permis d'analyser qualitativement et quantitativement nos résultats. Le transport de charge s'effectue suivant les processus physiques

décrits dans le paragraphe précédent à savoir :

- excitation lumineuse de porteurs de charge électrons et trous à partir d'un niveau piège (Fe^{2+}/Fe^{3+} pour InP:Fe et Cr^{2+}/Cr^{3+} pour GaAs:Cr),

- diffusion ou entrainement sous un champ extérieur ou sous le champ de charge d'espace créé des porteurs de charge.
- recombinaison sur le même niveau piège.

Ce processus de transfert de charge à l'origine de l'effet photoréfractif est représenté figure I.6.

Les centres photoexcitables sont en densité N_D par unité de volume. Une partie de ces centres, en densité N_D^- (Fe^{2+} pour InP:Fe ex Cr^{2+} pour GaAs:Cr) existe sous forme ionisée dans le noir. Ils sont dus à la présence de centres donneurs superficiels de densité N_{Ds}^+ qui ne participent pas à l'effet photoréfractif. Peu importe leur niveau d'énergie et le nombre de types distincts de ces centres $N_{Ds\ell}^+$ qui assurent la neutralité électrique du cristal.

Dans les bandes de conduction et de valence les électrons sont en densité n par unité de volume et les trous en densité p.

Par la suite, les indices n et p refèrent respectivement aux électrons et aux trous. Soient :

- S_n, S_p, les sections efficaces de photoionisation ;
- γ_n, γ_p, les constantes de recombinaison reliées aux sections efficaces de capture $\overline{S_n}$, $\overline{S_p}$ aux vitesses moyennes thermiques v_n^{th}, v_p^{th} par $\gamma_{n,p} = v_{n,p}^{th}\ \overline{S}_{n,p}$.

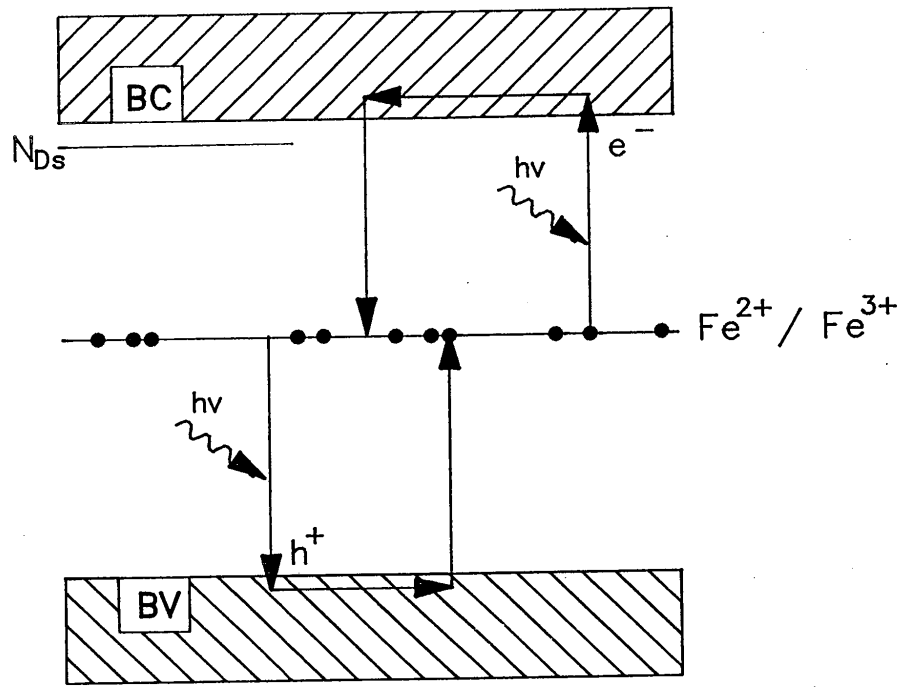


Figure I-6 : Diagramme schématique de niveaux d'énergie illustrant le processus de transfert de charge à l'origine de l'effet photoréfractif dans le cristal d'InP:Fe .

- $\tau_{Rn} = \dfrac{1}{\gamma_n \left(N_D^+ - N_D^-\right)}$ et $\tau_{Rp} = \dfrac{1}{\gamma_p \; N_D^-}$ les durées de vie des porteurs excités.

- $\vec{j}_n$, $\vec{j}_p$ les densités de courant résultant de la migration des porteurs de charge excités.

- μ_n , μ_p les valeurs absolues des mobilités.

- e la valeur absolue de leur charge.

- k_B la constante de Boltzmann

- T la température absolue

- ε_o la permittivité du vide.

- $\underset{\approx}{\varepsilon}$ le tenseur permittivité relative aux basses fréquences.

En présence d'un champ électrique extérieur ou induit $\vec{E}$ et sous la puissance lumineuse par unité de surface I, nous avons le système d'équations régissant le processus de transport de charge conduisant à l'effet photoréfractif :

- équation de génération des centres N_D^- :

$$\frac{\partial N_D^-}{\partial t} = - S_n \frac{I}{h\upsilon} N_D^- + \gamma_n n \left(N_D - N_D^-\right) + S_p \frac{I}{h\upsilon} \left(N_D - N_D^-\right) - \gamma_p p \; N_D^- \qquad (I.28)$$

- équations de transport de charge régie par la loi d'Ohm et la diffusion :

$$\vec{j}_n = n \; \mu_n e \; \vec{E} + \mu_n k_B T \; \overrightarrow{grad} \; n \qquad (I.29)$$

$$\vec{j}_p = p \; \mu_p e \; \vec{E} - \mu_p k_B T \; \overrightarrow{grad} \; p \qquad (I.30)$$

- équations de continuité de la charge :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{div}{e} \vec{j}_n + S_n \frac{I}{h\upsilon} N_D^- - \gamma_n n \left(N_D - N_D^-\right) \qquad (I.31)$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = - \frac{\text{div}\ \vec{j}_p}{e} + S_p \frac{I}{h\upsilon}\left(N_D - N_D^-\right) - \gamma_p\, p\, N_D^- \qquad (I.32)$$

- et la loi de Poisson :

$$\text{div}\left(\varepsilon_o \underset{\approx}{\varepsilon} \vec{E}\right) = - e\left(n - p + N_D^- - N_{Ds}^+\right) \qquad (I.33)$$

d) Cas de l'illumination résultante de l'interférence de deux ondes planes : champ de charge d'espace

Soient deux ondes planes d'amplitude ξ_1 et ξ_2, définies par les vecteurs unitaires de polarisation $\hat{e}_1$ et $\hat{e}_2$, de vecteurs d'onde $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ qui interfèrent dans le cristal photoréfractif. Ces ondes s'écrivent :

$$\vec{E}_1^{\omega} = \frac{1}{2}\left(\xi_1 \hat{e}_1 e^{-i\left(\vec{k}_1 \vec{r} - \omega t\right)} + cc\right)$$

$$\vec{E}_2^{\omega} = \frac{1}{2}\left(\xi_2 \hat{e}_2 e^{-i\left(\vec{k}_2 \vec{r} - \omega t\right)} + cc\right)$$

où cc désigne le complexe conjugué.

La puissance lumineuse par unité de surface ou densité de puissance proportionnelle à l'intensité vibratoire est :

$$I(x) = I_o\left(1 + \left(\frac{M}{2} e^{-i(k_R x)} + cc\right)\right) \qquad (I.34)$$

où $\vec{k}_R = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ est le vecteur d'onde du réseau d'illumination

induit (figure I.7), $M = \dfrac{2\xi_1 \xi_2^* \hat{e}_1 \hat{e}_2^*}{\xi_1 \xi_1^* + \xi_2 \xi_2^*}$ est la modulation complexe et $I_o \propto \dfrac{1}{2}\left(\xi_1 \xi_1^* + \xi_2 \xi_2^*\right)$ est la somme de densité de flux de chacune des deux ondes.

Lorsque le taux de modulation $m = |M|$ est faible devant 1, les équations fondamentales (I.28) - (I.33) peuvent être linéarisées. Cela permet de ne tenir compte que des termes d'ordre zéro et un en fréquence spatiale des diverses grandeurs qui s'écrivent alors :

$$\begin{cases} N_D^-(x,t) = N_{D_o}^-(t) + \dfrac{1}{2}\left(N_{D_1}^-(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \\ n(x,t) = n_o(t) + \dfrac{1}{2}\left(n_1(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \\ p(x,t) = p_o(t) + \dfrac{1}{2}\left(p_1(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \\ \vec{j}_n(x,t) = \vec{j}_{n_o}(t) + \dfrac{1}{2}\left(\vec{j}_{n_1}(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \\ \vec{j}_p(x,t) = \vec{j}_{p_o}(t) + \dfrac{1}{2}\left(\vec{j}_{p_1}(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \\ \vec{E}(x,t) = \vec{E}_o(t) + \dfrac{1}{2}\left(\vec{E}_1(t)\, e^{-ik_R x} + cc\right) \end{cases} \qquad (I.35)$$

La dernière équation montre que le champ électrique à l'intérieur du cristal est la somme d'un champ électrique spatialement constant $\vec{E}_o(t)$ et d'un autre modulé spatialement, d'amplitude $\vec{E}_1(t)$, qui est appelé champ de charge d'espace.

Par effet Pockels (relation I.13), ces deux champs induisent une variation du tenseur permittivité diélectrique relative du matériau $\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}$, qui s'écrit :

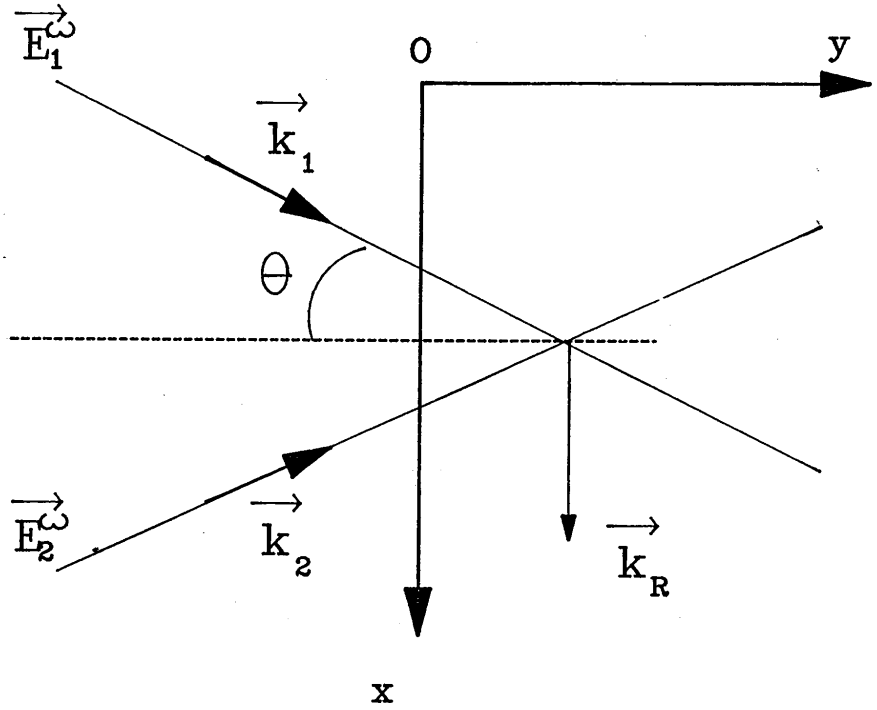


Figure I-7 : Vecteur d'onde du réseau d'illumination .

$$\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}(x,\ t) = \underset{\approx}{\varepsilon}_{L} + \underset{\approx}{\varepsilon}_{NL}(x,t) = \underset{\approx}{\varepsilon}_{L} + \underset{\approx}{\Delta\varepsilon}(t) + \underset{\approx}{\delta\varepsilon}(x,t) \qquad (I.36)$$

où $\underset{\approx}{\varepsilon}_{L}$ désigne le tenseur de permittivité diélectrique linéaire relatif aux fréquences optiques.

La partie non linéaire $\underset{\approx}{\varepsilon}_{NL}$ est composée de deux termes qui sont :

$$\underset{\approx}{\Delta\varepsilon}(t) = -\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}\left[\underset{\approx\approx}{R}\ \vec{E}_{o}(t)\right]\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \qquad (I.37)$$

$$\underset{\approx}{\delta\varepsilon}(x,t) = -\ \frac{1}{2}\left(\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}\left[\underset{\approx\approx}{R}\ \vec{E}_{1}(t)\ e^{-i k_{R} x}\right]\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} + cc\right) \qquad (I.38)$$

$\underset{\approx\approx}{R}$ est le tenseur électro-optique défini au paragraphe 2 b). Cette dernière relation montre que le champ de charge d'espace engendre une modulation spatiale $\underset{\approx}{\varepsilon}_{1}$ de la permittivité du matériau, c'est à dire un réseau d'indice. Nous avons :

$$\underset{\approx}{\varepsilon}_{1}(t) = -\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}\left[\underset{\approx\approx}{R}\ \vec{E}_{1}(t)\right]\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \qquad (I.39)$$

Le champ de charge d'espace est dirigé selon le vecteur $\vec{k}_{R}$ du réseau. Si $\hat{k}_{R}$ désigne le vecteur unitaire selon cette direction et $E_{1}(t)$ le module du champ de charge d'espace, la relation (I.39) devient :

$$\underset{\approx}{\varepsilon}_{1}(t) = -\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}\left[\underset{\approx\approx}{R}\ \hat{k}_{R}\right]\ \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}\ E_{1}(t) \qquad (I.40)$$

Cette expression de la modulation spatiale induite de la permittivité sera ultérieurement employée (au chapitre III) lors de la résolution des équations du couplage d'onde photoréfractif.

réseau de champ est spatialement décalé par rapport au réseau de charge induit optiquement. Il en résulte une non coïncidence entre le réseau d'indice et la figure d'interférence qui lui a donné naissance. Nous montrerons (au chapitre III) que l'autodiffraction des ondes sur ce réseau dynamique engendre une redistribution de leur énergie au cours de leur propagation et utiliserons ce phénomène pour étudier et caractériser l'effet photoréfractif.

II - PROPRIETES DES CRISTAUX D'InP:Fe et GaAs:Cr

Les échantillons d'InP:Fe ont été synthétisés au CNET Lannion et nous ont été aimablement procurés par Messieurs B. Lambert, Y. Toudic et H. Coquille.

La cristallogénèse comprend plusieurs étapes :

- la synthèse d'InP polycristallin, celle-ci s'effectue en ampoule de silice scellée sous vide par réaction directe entre les éléments constitutifs à 1062°C et 10^5 Pa :

$$In + P_2/P_4 \leftrightarrows InP$$

- le cristal peut être dopé par l'introduction d'impuretés, ici du fer en proportion environ [Fe] = 1 à 6 $10^{16} cm^{-3}$.

- tirage d'InP monocristallin. La méthode employée est la méthode de tirage Czochralski sous encapsulation liquide. Un liquide encapsulant (B_2O_3) recouvre le bain sur lequel on applique une pression de gaz neutre (argon, azote...) supérieure à la pression de décomposition d'InP (27,5 10^5 Pa). La croissance par tirage est fait sous pression à travers l'encapsulant à l'aide d'une germe orienté <001> ou <111>.

Les substrats sont ensuite orientés et découpés. Les dimensions et l'orientation de nos cristaux sont représentées figure II-1. Les faces $(\bar{1}10)$ et $(1\bar{1}0)$ ont été polies à l'atelier du polissage de l'Institut d'Optique par Messieurs G. Colas et R. Leclerq.

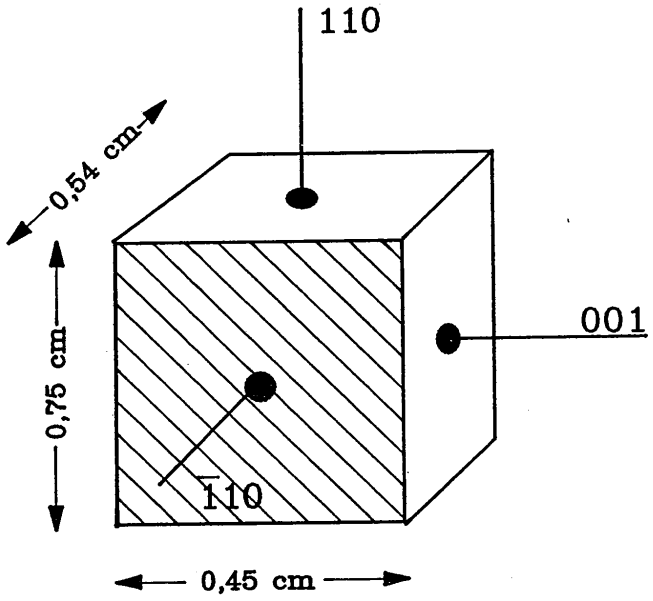


Figure II-1 : Dimensions et orientation du cristal d'InP:Fe

Les échantillons de GaAs:Cr ont été synthétisés par Sumitomo et nous ont été aimablement procurés par Messieurs J.P. Herriau et J.P. Huignard de Thomson-CSF. Les faces ($\bar{1}10$) et ($1\bar{1}0$) ont été polies et les dimensions et l'orientation de nos cristaux sont illustrées figure II-2.

Nous avons tout d'abord estimé l'indice de réfraction, la permittivité relative, le coefficient électro-optique, les sections efficaces de photoionisation, les mobilités, le coefficient d'absorption linéaire aux longueurs d'onde 1,06 µm et 1,30 µm, la conductivité et la photoconductivité à la longueur d'onde 1,06 µm en régime continu et en régime nanoseconde de ces matériaux.

II.1. INDICE DE REFRACTION

La première source laser à la longueur d'onde 1,06 µm dont nous disposions était un laser impulsionnel nanoseconde (durée environ 5 ns) nous avons réalisé pour le cristal d'InP:Fe, une estimation de l'indice de réfraction à cette longueur d'onde, en mesurant la réflexion de la lumière incidente sur l'une de ses faces. L'angle d'incidence i était de 34° et si n est l'indice du cristal, les formules de Fresnel donnent la valeur théorique de la réflexion (pour une polarisation perpendiculaire au plan d'incidence) :

$$R_e = \left(\frac{n \cos r - \cos i}{n \cos r + \cos i}\right)^2 \qquad \text{(II.1)}$$

r étant l'angle de réflexion qui vérifie :

$$n \sin r = \sin i \qquad \text{(II.2)}$$

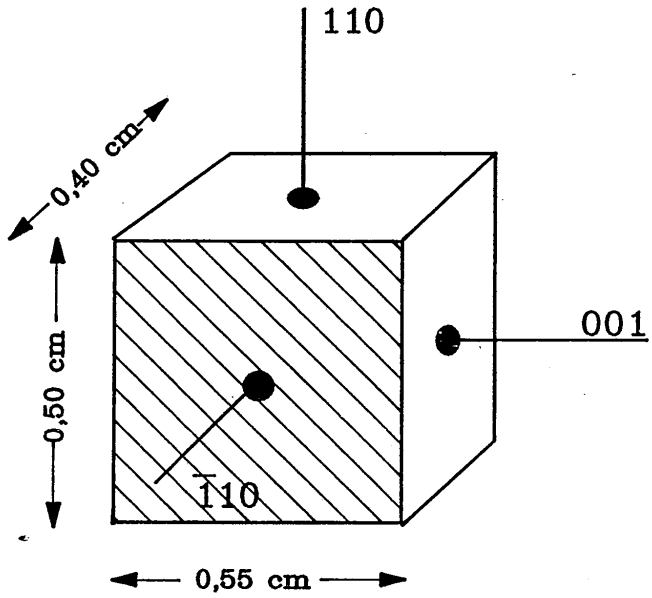


Figure II-2 : Dimensions et orientation du cristal de GaAs:Cr

L'indice de réfraction s'écrit :

$$n = \left[\left(\cos i \, \frac{1 + \sqrt{R_e}}{1 - \sqrt{R_e}} \right)^2 + \sin^2 i \right]^{1/2} \qquad \text{(II.3)}$$

Nous avons mesuré une réflexion $R_e = 0,32$. La valeur estimée de l'indice de réfraction est $n = 3,1$. Elle est proche de la valeur publiée dans la littérature $n_{InP} = 3,29$ [70], à température ambiante et à la longueur d'onde 1,06 µm (énergie de 1,17 eV). La variation de l'indice de réfraction du cristal d'InP en fonction de l'énergie par photon est représentée figure II-3 [70] .A la longueur d'onde 1,30 µm sa valeur est 3,23.

Dans le cristal de GaAs, la variation de l'indice de réfraction en fonction de l'énergie par photon est représentée figure II-4 [71] . Sa valeur à température ambiante à la longueur d'onde 1,06 µm est n = 3,48. Elle vaut 3,42 à la longueur d'onde 1,30 µm [71].

La méthode employée pour mesurer ces indices est celle du prisme de réfraction.

II.2. COEFFICIENT ELECTRO-OPTIQUE, PERMITTIVITE RELATIVE

Nous avons vu au chapitre précédent que dans le cas des semi-conducteurs $\bar{4}3m$ seules les composantes $r_{63} = r_{51} = r_{41}$ du tenseur électro-optique sont non nulles.

La valeur du coefficient électro-optique pour InP:Fe est $r_{41} = 1,34$ pm/V [72], celle pour GaAs:Cr est $r_{41} = 1,43$ pm/V [73].

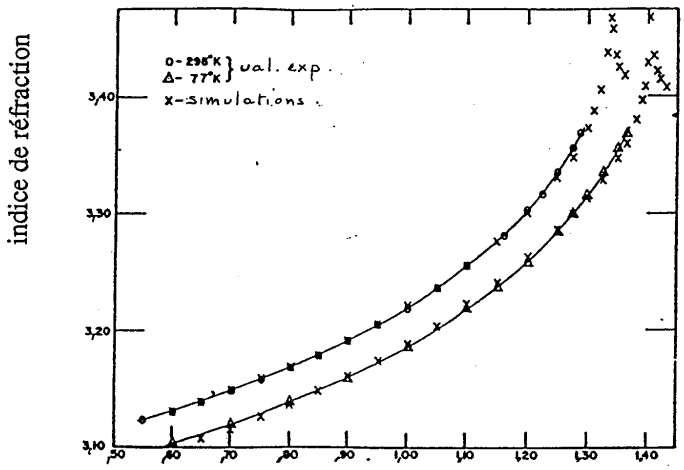


Figure II-3 : Variation de l'indice de réfraction d'InP:Fe en fonction de l'énergie par photon [70].

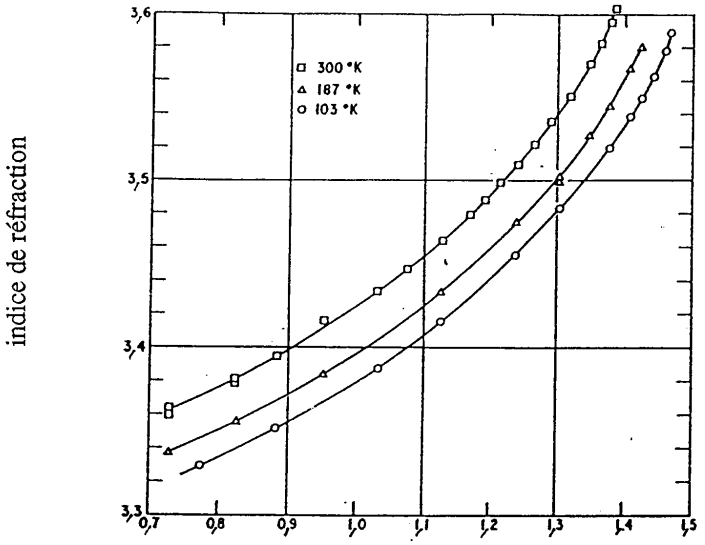


Figure II-4 : Variation de l'indice de réfraction de GaAs:Cr en fonction de l'énergie par photon [71].

La mesure de la biréfringence induite sous un champ électrique (cf. chapitre I paragraphe 2) par effet Pockels permet de déterminer cette constante.

La permittivité relative aux basses fréquences ou constante diélectrique vaut dans InP:Fe $\varepsilon = 12,4$ [74] et dans GaAs:Cr $\varepsilon = 12,9$ [75] ceci à température ambiante.

II.3. SECTIONS EFFICACES DE PHOTOIONISATION, MOBILITES

Au chapitre I paragraphe 3, nous avons vu que deux types de porteurs de charge (électrons et trous) peuvent se propager dans le matériau. Ils sont excités à partir de niveaux pièges situés dans la bande interdite, les sections efficaces de photoionisation pour le cristal d'InP:Fe, à la longueur d'onde 1,06 µm sont [76] :

- pour les électrons : $Sn = 4.10^{-18} cm^2$.
- pour les trous : $Sn = 5.10^{-17} cm^2$.

De même pour le cristal de GaAs:Cr pour la longueur d'onde 1,06 µm, nous avons [67]:

- pour les électrons : $S_n = 9.10^{-19} cm^2$.
- pour les trous : $S_p = 9.10^{-17} cm^2$.

Les valeurs des mobilités sont bien connues dans InP:Fe et valent [77]:

- pour les électrons : $\mu_n = 1300\ cm^2 V^{-1} s^{-1}$.

- pour les trous : $\mu_p = 130\ cm^2 V^{-1} s^{-1}$.

Pour GaAs:Cr dans un cristal dopé n, Martin et al. [78] ont mesuré une mobilité de Hall (peu différente de μ_n) d'environ $3500\ cm^2 V^{-1} s^{-1}$.

II.4. ABSORPTION LINEAIRE

Avec la première source laser précèdemment mentionnée, nous avons mesuré la transmission T_r des cristaux d'InP:Fe et GaAs:Cr (énergie transmise sur énergie incidente). Son expression en fonction de $a^{1\cdot06}$, coefficient d'absorption linéaire à la longueur d'onde 1,06 µm, de R_e, coefficient de réflexion, et de ℓ, épaisseur du cristal, est (en tenant compte des réflexions multiples) :

$$T_r = \frac{(1-R_e)^2 e^{-a^{1\cdot06}\ell}}{1 - (R\ e^{-a^{1\cdot06}\ell})^2}$$

On peut ainsi déterminer la valeur du coefficient d'absorption linéaire à la longueur d'onde 1,06 µm, on trouve :

- pour InP:Fe : $a^{1\cdot06} = 2 \pm 0,2\ cm^{-1}$.
- pour GaAs:Cr : $a^{1\cdot06} = 1,05 \pm 0,2\ cm^{-1}$.

Dans le cristal d'InP:Fe, nous avons effectué par suite une mesure plus précise du coefficient d'absorption linéaire aux longueurs d'onde 1,06 µm et 1,30 µm en utilisant des lasers continus Nd-YAG pompés par diode laser. Nous obtenons :

à 1,06 µm, $a^{1\cdot06} = 1,95 \pm 0,05\ cm^{-1}$

à 1,30 μm, $a^{1,3} = 0,67 \pm 0,05\ cm^{-1}$

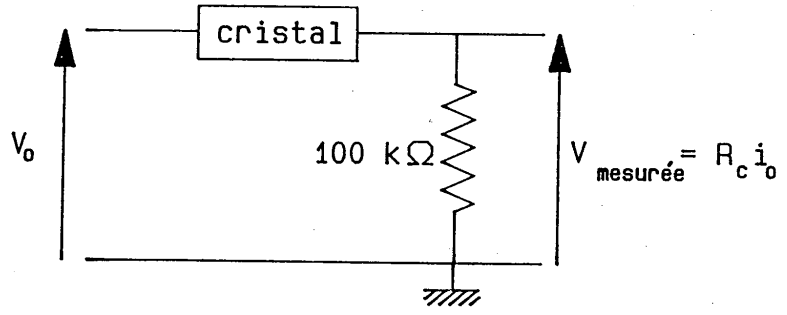
Le coefficient d'absorption à la longueur d'onde 1,30 μm est plus faible, ce qui correspond bien à des valeurs plus faibles des sections efficaces de photoionisation des niveaux du fer.

Le spectre d'absorption optique linéaire des semi-isolants InP:Fe et GaAs:Cr est représenté figure II-5 [47].

II.5. CONDUCTIVITE DANS L'OBSCURITE

Nous avons étudié l'évolution du courant d'obscurité en fonction de la tension appliquée au cristal V_o, les résultats sont représentés figure II.6 pour InP:Fe et figure II.7 pour GaAs:Cr.

Les électrodes permettant d'appliquer la tension sont peintes à la laque d'argent sur les deux faces (001) et $(00\bar{1})$. Nous déterminons le courant en mesurant la tension aux bornes d'une résistance R_c de 100 kΩ. Le schéma électrique est le suivant :



Le cristal d'InP:Fe a un comportement ohmique et nous pouvons calculer la conductivité dans le noir correspondante :

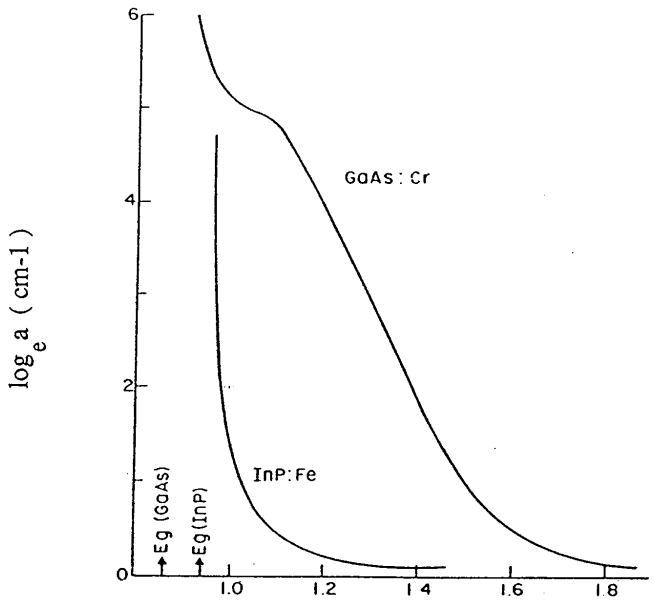


Figure II-5 : Spectre d'absorption optique linéaire pour des cristaux GaAs:Cr (Cr ~10^{16} cm^{-3}) et InP:Fe (Fe ~10^{17} cm^{-3})[47]

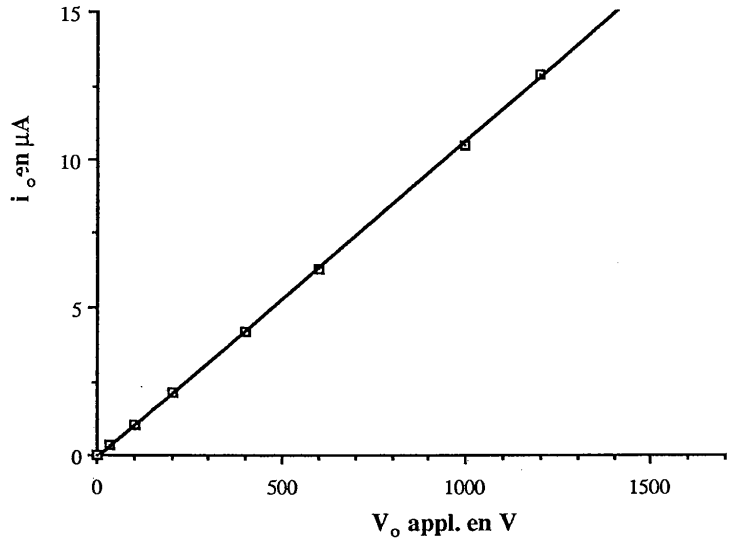


Figure II-6 : Courant d'obscurité InP:Fe

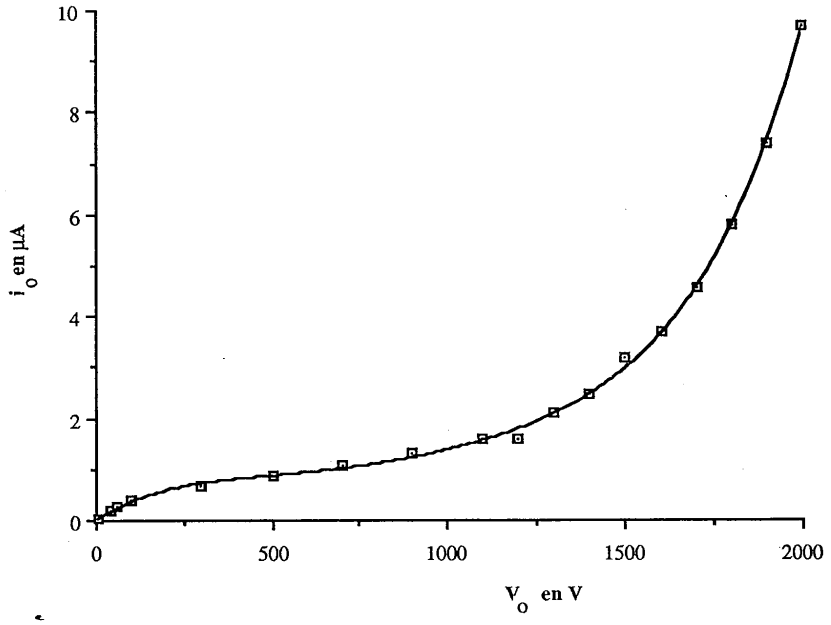


Figure II-7 : Courant d'obscurité GaAs:Cr .

$$\sigma_d = 1,2\ 10^{-9}\,\Omega^{-1}\,cm^{-1}$$

Ce cristal est de type n, et si nous supposons que la conductivité dans le noir est due aux électrons ($\mu_n \simeq 10\ \mu_p$), alors la densité n_d de porteurs (électrons) équivalente à la conductivité $\sigma_d^{I\,n\,p}$ est :

$$n_d = \frac{\sigma_d}{\mu_n e} = 6.10^7\,cm^{-3}$$

Cette valeur est proche de la densité de porteurs intrinsèques à température ambiante $n_i \simeq 3\ 10^7\,cm^{-3}$ [79] . Ceci confirme le fait que notre échantillon est un bon semi-isolant.

Le cristal de GaAs:Cr n'a pas un comportement ohmique. Ceci est très probablement dû à des problèmes de contact aux électrodes peintes à la laque d'argent.

Pour des tensions appliquées inférieures à 1500 V, ce cristal a un comportement à peu près ohmique et la conductivité correspondante est :

pour $V_o < 1500$ V, $\qquad \sigma_d = 4\ 10^{-9}\,\Omega^{-1}\,cm^{-1}$

Pour des tensions supérieures à 1500 V, on assiste à une croissance très prononcée du photocourant, lorsque la tension augmente. Une explication possible serait que pour ces tensions élevées, il existe une ionisation du matériau. Les porteurs de charge, accélérés par le champ électrique, possèdent une énergie suffisante pour créer des paires électrons-trous, ceci pour des champs électriques supérieurs à 100 kV/cm. Dans nos expériences, le champ moyen appliqué ne dépasse pas 4 kV/cm. Toutefois, s'il existe une zone de champ intense à l'un des deux contacts cristal-laque d'argent, le champ dans cette zone pourrait

atteindre des valeurs beaucoup plus élevées. Nous avons effectivement visualisé une telle zone de champ intense lors de l'étude de la photoconduction décrite au paragraphe suivant. L'existence de telles inhomogénéités de champ pourrait être expliquée par l'existence d'une barrière de type Schottky au contacy laque d'argent GaAs. Dans ce cas, la conductivité serait principalement due aux trous [79].

II.6. PHOTOCONDUCTIVITE

a) Photoconduction en régime continu

La source lumineuse est un laser Nd-YAG pompé par diode laser émettant en continu à la longueur d'onde 1,06 μm. La puissance lumineuse maximale est de 40 mW. Le montage est identique à celui utilisé pour l'étude du courant d'obscurité, le cristal étant éclairé de façon uniforme.

α) Cristal d'InP:Fe

L'évolution du photocourant en fonction de V_x , la tension appliquée aux bornes du cristal, pour des densités de puissance incidentes I_i de 5 puis de 46 mW/cm^2 est représentée figure II-8.

Le photocourant varie linéairement en fonction de la tension appliquée confirmant le caractère ohmique du matériau. L'évolution de la conductivité, $\sigma_{1.06}$ en fonction de I_i pour une tension appliquée V_x de 500 V est donnée par la figure II.9. Cette variation est linéaire et nous pouvons écrire :

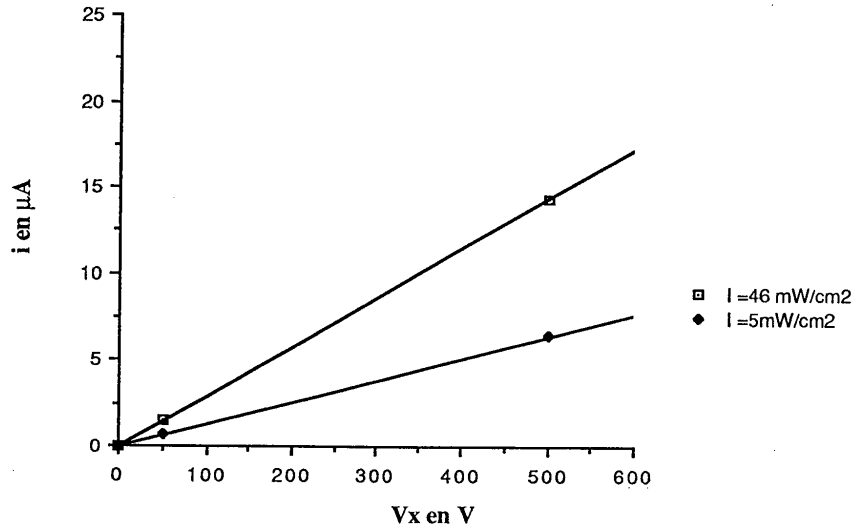


Figure II-8 : Photocourant InP:Fe à 1,06 µm en régime continu .

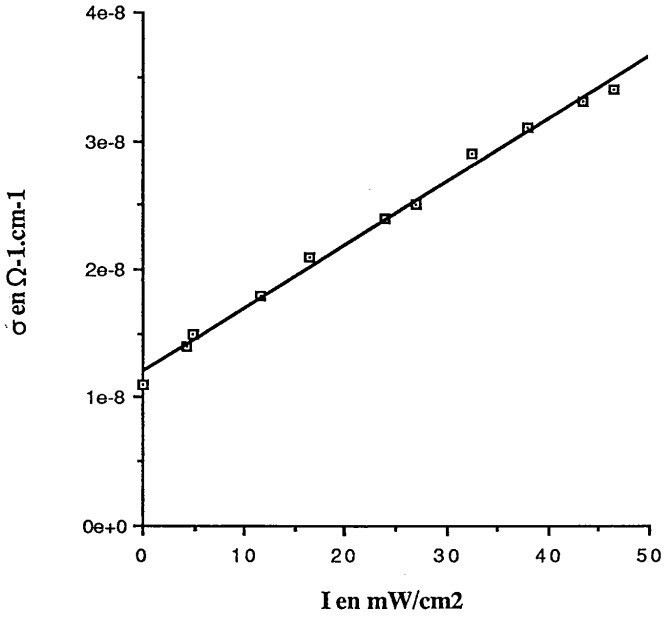


Figure II-9 : Conductivité InP:Fe à 1,06 µm

en régime continu (V_x=500 V) .

$$\sigma_{1.06} = \sigma_d + \Delta_i \sigma_{1.06} I_i = (1,2 + 54\ I_i)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1} \qquad (II.4)$$

avec I_i en W/cm^2. Ou encore :

$$\sigma_{1.06} = \sigma_d + \Delta\ \sigma_{1.06} I = (1,2 + 123\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1} \qquad (II.5)$$

où I représente la densité de puissance au centre du cristal en W/cm^2. I est déduit de I_i par la relation $I = I_i(1-R_e)\ e^{-\frac{a^{1.06}\ell}{2}}$, R_e étant la réflectivité, $a^{1.06}$ le coefficient d'absorption linéaire et ℓ l'épaisseur du cristal.

Compte tenu des valeurs des sections efficaces de photoionisation à la longueur d'onde 1,06 μm, $S_p > S_n$, du fait que dans nos échantillons d'InP:Fe il semblerait que la concentration en ions $[Fe^{3+}]$ est supérieure à celle de $[Fe^{2+}]$ [77] et que les électrons se recombinent beaucoup plus rapidement que les trous (voir paragraphe suivant) la photoconduction en régime continu est essentiellement due aux trous.

Nous pouvons alors écrire, si p désigne la densité de trous photoexcités :

$$\Delta\sigma I_{1.06} = \sigma_{ph} \simeq p\ \mu_p e$$

pour une densité de puissance I = 50 mW/cm^2, le nombre de photoporteurs excités est :

$$p \simeq 10^9\ cm^{-3}$$

Lors de ces mesures le cristal peut s'échauffer suite à l'absorption optique et par effet joule. Pour une tension appliquée V_x de 500 V et une densité de puissance incidente

I_i = 46 mW/cm², nous avons mesuré un photocourant i = 14,3 μA. La puissance dissipée est alors P = V_x i ≃ 7 mW, celle correspondant à l'absorption lumineuse est P'= $I_i (1-R_e)\left(1-(1-R_e)e^{-a^{1.06}\ell}\right).S \simeq 8$ mW (S étant la surface du cristal). L'accroissement relatif de température par seconde est donc : $\frac{\Delta T}{T} = \frac{P + P'}{Cm}$ avec C et m étant la capacité calorifique du cristal (C ≃ 1000 J $kg^{-1}\cdot K^{-1}$), et la masse du cristal (m ≃ 670 mg). On en déduit $\frac{\Delta T}{T} \simeq 0,02$ °K s^{-1} qui correspond à une élévation de température de 1,5 °K par minute.

Entre chacune de nos mesures nous avons pris la précaution d'éteindre le laser, nous pouvons ainsi négliger la variation de température du cristal.

Nous avons aussi mesuré la conductivité à la longueur d'onde 1,30 μm en utilisant un autre laser Nd-YAG continu. Le résultat est illustré figure II-10 et nous trouvons :

$$\sigma_{1.3} = \sigma_d + \Delta\sigma_{1.3} I = (1,2 + 16\ I)\ 10^{-8}\Omega^{-1}cm^{-1} \qquad (II.6)$$

Avec I densité de puissance au centre du cristal en W/cm².

La valeur de la photoconductivité à cette longueur d'onde est plus faible que celle à 1,06 μm ce qui est logique compte tenu des valeurs plus faibles des sections efficaces de photoionisation.

Nous avons regardé la répartition spatiale du champ électrique à l'intérieur du cristal. L'étude se fait de manière optique par utilisation de l'effet Pockels (voir chapitre I paragraphe 2). Sous l'action d'un champ électrique $\vec{E}$ extérieur, le cristal devient biréfringent. Celui-ci est placé entre polariseur et analyseur croisés, orientés à 45° des axes de biréfringence (figure II.11). Sans champ appliqué le cristal n'est pas biréfringent et la transmission du système est nulle. Lorsque le

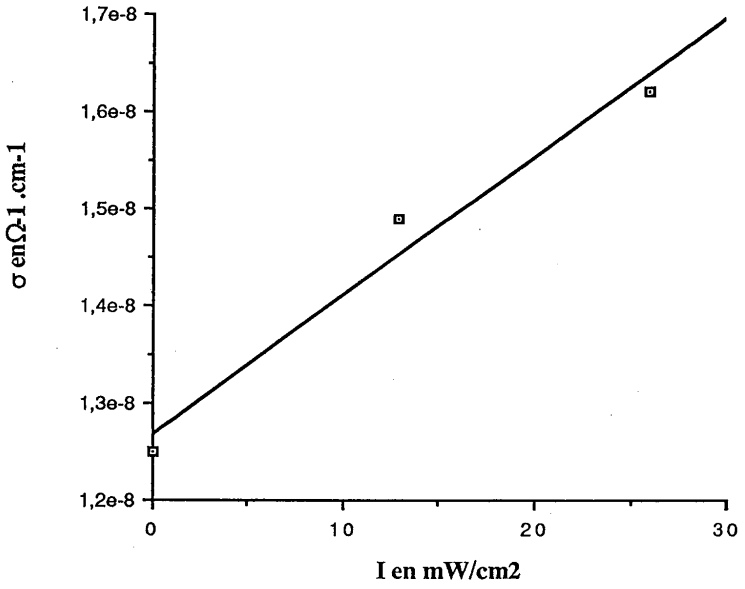


Figure II-10 : Conductivité InP:Fe en régime continu à 1,30 μm .

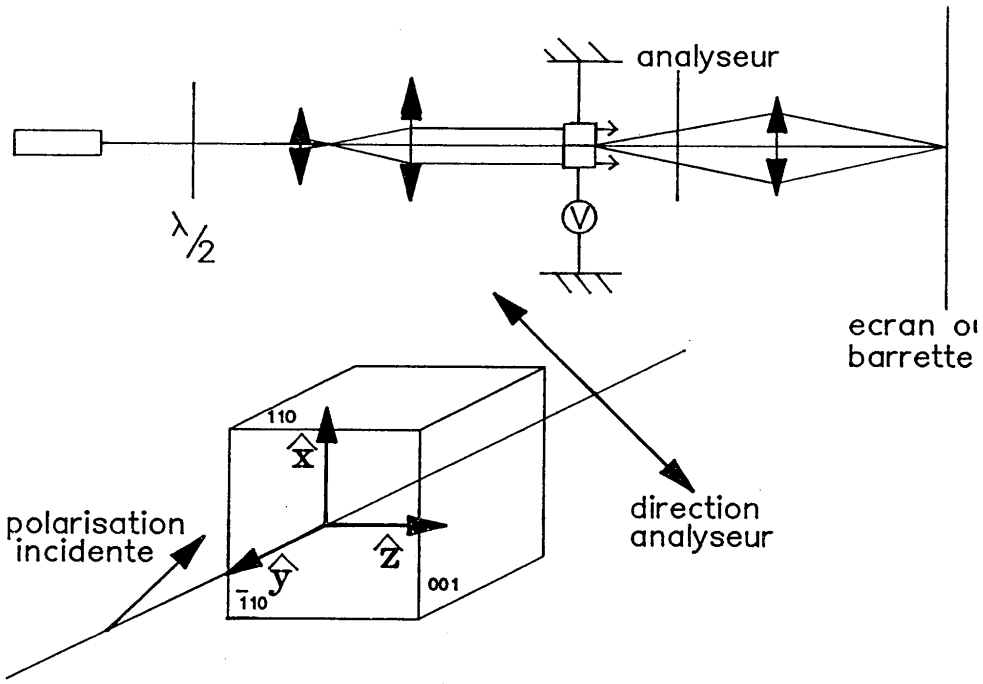


Figure II-11 : Montage expérimental pour l'étude de la répartition du champ électrique à l'intérieur du cristal photoréfractif .

champ est appliqué la transmission devient :

$$T_r(x,z,t) \propto \sin^2\left(\frac{\pi\ell}{\lambda}\Delta n\right) = \sin^2\left(\frac{\pi\ell}{\lambda} n^3 r_{41} E(x,z,t)\right)$$

L'image du cristal observée sur un écran ou sur une barette de photodiodes sera plus ou moins lumineuse suivant la valeur du champ. Si le champ n'est pas uniforme, l'image reproduira la répartition spatiale du champ à l'intérieur du cristal.

La figure II-12 représente le signal reçu par la barette de photodiodes en l'absence de champ et pour deux valeurs du champ correspondant à des tensions appliquées de + 1000 V et - 1000 V. La barette étant placée parallèlement à l'axe Oz on observe le champ E(x,z = cte, t). On s'aperçoit que le cristal possède une biréfrigence "naturelle" (la transmission est non nulle à champ nul, courbe A) due aux défauts éventuels de la cristallisation ou plus probablement aux contraintes exercées lors du serrage des électrodes sur le cristal. Cela explique aussi pourquoi la valeur absolue de la biréfrigence n'est pas la même pour les tensions appliquées V = 1000 V (courbe B) et V = - 1000 V (courbe C). Nous observons aussi que le champ est quasi-uniforme sur la totalité du cristal.

Nous avons ensuite remplacé la barrette de photodiodes par un écran que l'on observe avec une caméra infrarouge. Nous visualisons ainsi toute l'étendue du cristal. Son image est représentée sans champ appliqué (figure II-13-a)), puis avec une tension V = 3000 V (figure II-13-b). Sans champ nous observons la biréfrigence accidentelle, puis le flux transmis croît lorsque le champ appliqué augmente. De plus, on vérifie bien que la répartition du champ électrique est uniforme sur toute l'étendue du cristal. Il était donc bien naturel d'avoir déduit, à partir de nos mesures de photocourant, la valeur de la photoconductivité en

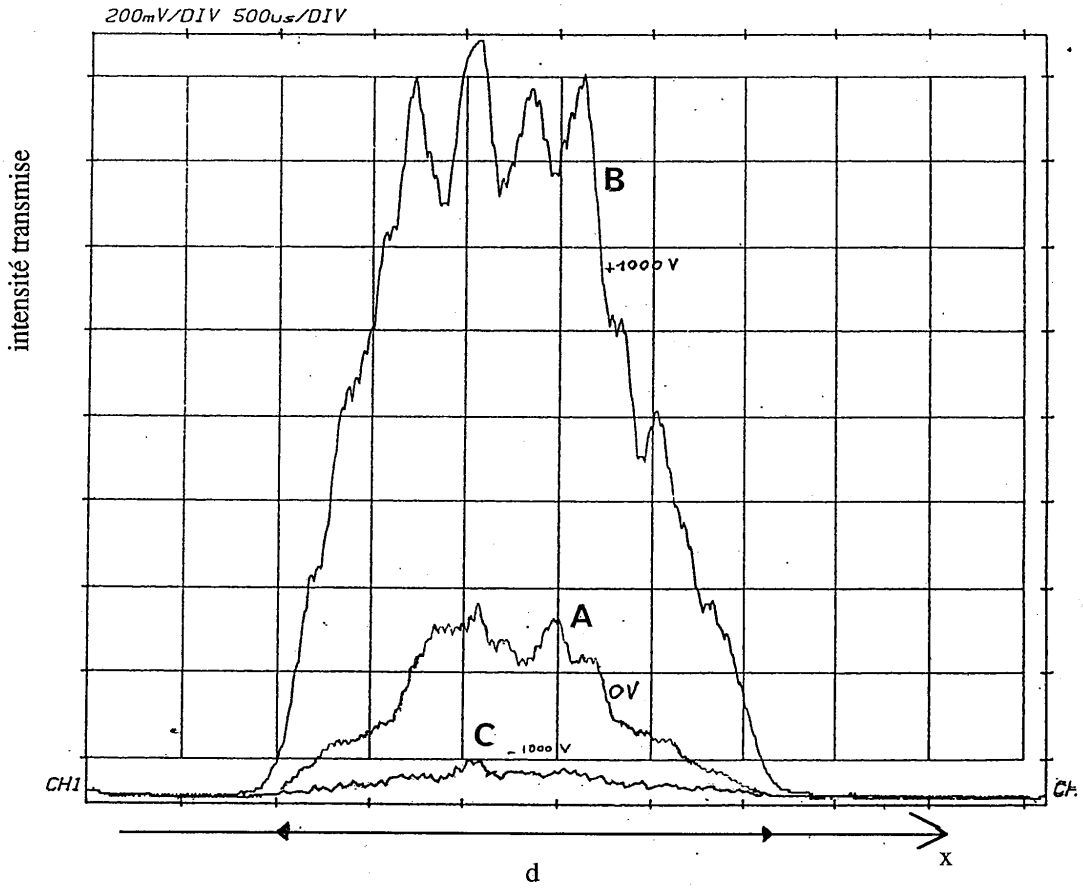
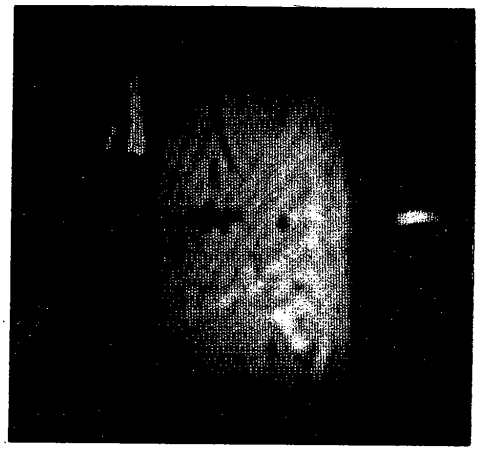


Figure II-12 : Cristal d'InP:Fe, répartition de l'intensité sur la barette de photodiodes ; d est la distance entre les électrodes .

A



B

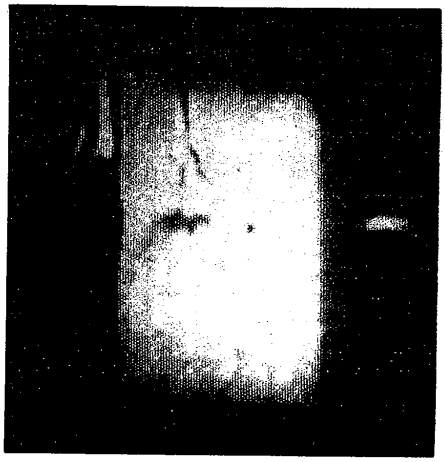


Figure II-13 : Cristal d'InP:Fe ; image du cristal sur un écran pour des tensions appliquées de :

A) V=0V B) V=3000V

régime continu en estimant que le champ appliqué était égal à $\frac{V_x}{d}$ (d étant la distance interélectrodes).

β) Cristal de GaAs:Cr

L'évolution du photocourant en fonction de la tension appliquée V pour une densité de puissance incidente I_i = 95 mW/cm² (soit au centre du cristal I = 50 mW/cm²) est représentée figure II-14. Nous observons une croissance linéaire rapide du photocourant pour des tensions V_x inférieures à 250 V puis une autre plus lente pour des tensions plus élevées.

Si nous considérons que la photoconduction de ce cristal s'effectue par des électrons, l'excitation optique permet à cette longueur d'onde d'exciter des électrons vers les bandes Γ et L. Lorsque les tensions appliquées sont faibles, c'est-à-dire lorsque l'énergie cinétique de l'électron est faible, les électrons se trouvent principalement dans la vallée Γ où la mobilité est grande. Ensuite, les électrons sont majoritairement dans la vallée L où la mobilité est inférieure. Ceci peut expliquer, par ce passage intervallée, la différence des photoconductivités et les deux régions linéaires du photocourant. En fait, ce sont des phénomènes complexes.

Nous avons observé la répartition spatiale du champ électrique de la même manière que pour le cristal d'InP:Fe. La figure II-15 montre une coupe de l'image du cristal, placé entre analyseur et polariseur croisés, sur la barrette de photodiodes. La répartition spatiale du champ n'est pas uniforme. Celui-ci est très intense le long des électrodes et nul ailleurs. Ces bandes de champ interne sont minces et leurs largeurs augmentent avec la tension appliquée. Selon les conditions expérimentales (serrage

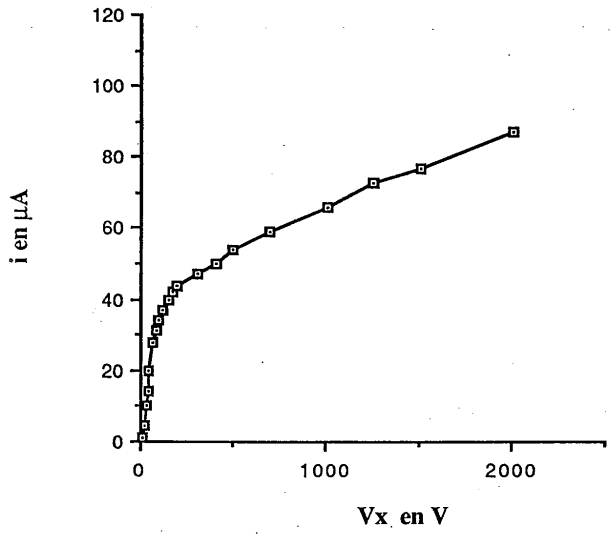


Figure II-14 : Photocourant GaAs:Cr (I= 95 mW/cm^2)
en régime continu à 1,06 µm .

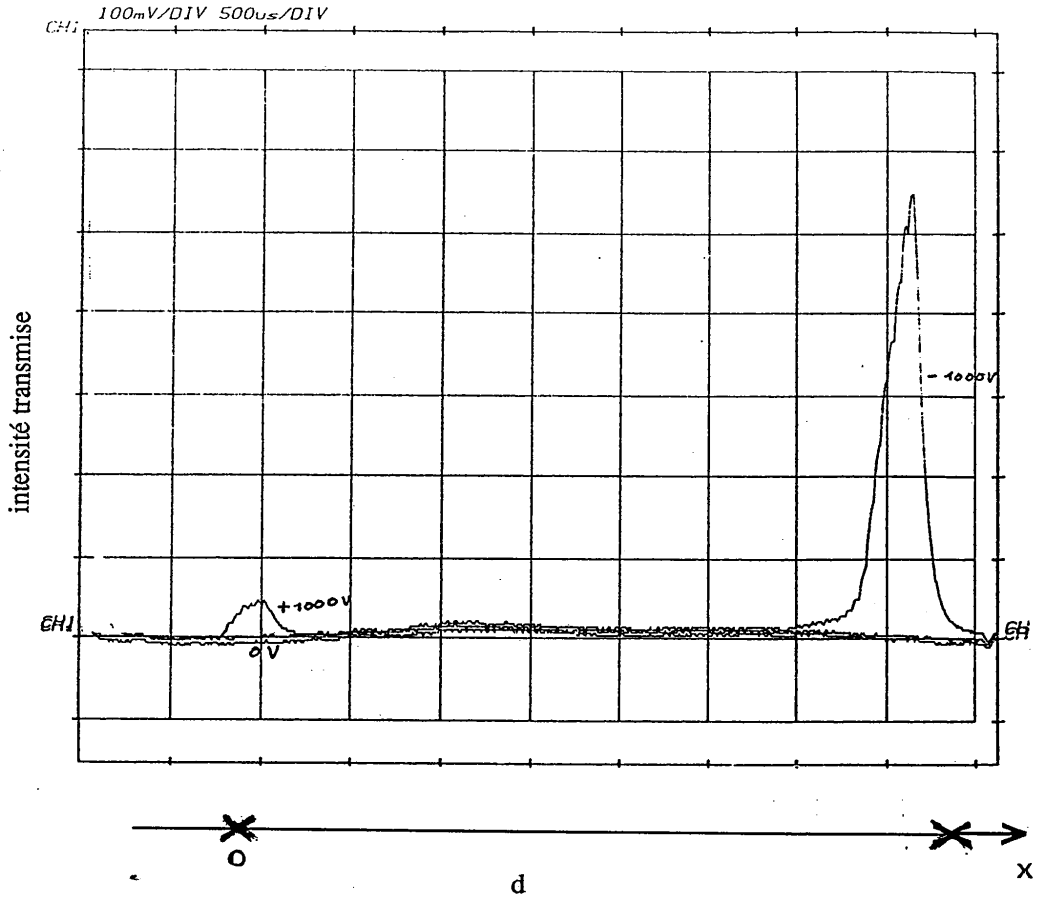


Figure II-15 : Cristal de GaAs:Cr, répartition de l'intensité sur la barette de photodiodes ; d est la distance entre les électrodes .

des électrodes sur le cristal, épaisseur de la laque d'argent...), ces bandes de champ internes sont localisées sur l'une ou l'autre des électrodes, parfois même sur les deux.

La figure II-16 représente l'image du cristal recueillie sur un écran, qui remplace la barette de photodiodes. Les tensions appliquées aux bornes du cristal sont respectivement V = OV (II-16.a)), V = 1000 V (II-16.b) et V = 3000V (II-16.c). Nous observons les bandes de champ intense le long des électrodes qui augmentent avec la tension appliquée, nous observons aussi la lumière diffusée par le cristal. Ce phénomène a été observé dans un cristal semi-isolant de GaAs:Cr [7]. L'explication proposée est que la jonction métal-semi-isolant, à l'interface électrode-cristal, crée une couche dans le semi-isolant dans laquelle la densité de porteurs de charge est fortement abaissée. Cette couche a un comportement de type barrière Schottky et sa largeur augmente comme la racine carrée de la tension appliquée. Ces effets de champs électriques intenses à l'intérieur de cristaux de GaAs sont largement étudiés par des physiciens du solide. Signalons que des oscillations du courant à l'intérieur du matériau ont été observées et que nous même avons pu les mettre en évidence dans un cristal de GaAs non dopé.

Dans ces conditions, il est difficile d'estimer la photoconductivité du cristal étant donné qu'il existe des régions de champ intense et de champ faible.

On peut lui donner une valeur moyenne, en considérant que le champ moyen dans le cristal vaut $E_m = \frac{V_x}{d}$ (d la distance entre les électrodes).

Pour des tensions inférieures à 250 V, tensions correspondant à la première partie linéaire du photocourant (courbe II-14), la

a



b



c

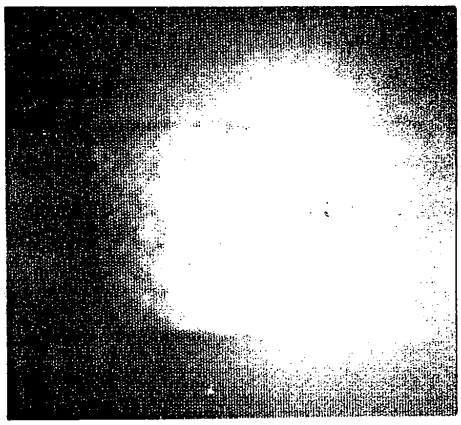


Figure II-16 : Cristal de GaAs:Cr : image du cristal sur un écran pour des tensions appliquées de :

a) V=0V b) V=1000V c) V=3000V

∂ est la largeur de la zone de champ intense

conductivité moyenne déduite est :

$$\sigma_{1.06} = \sigma_d + \Delta\sigma_{1.06} I = (0,4 + 1200\ I)\ 10^{-8}\ \Omega^{-1}cm^{-1} \qquad (II.7)$$

Avec I en W/cm^2 densité de puissance au centre du cristal :

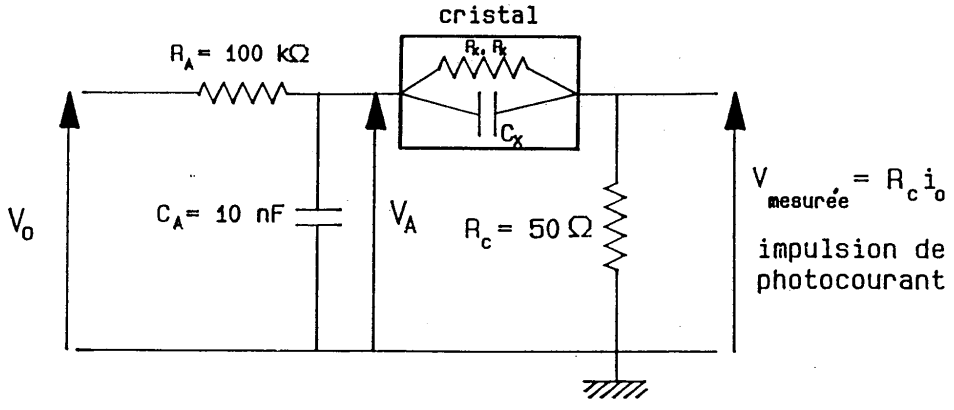
Pour des tensions supérieures à 250 V, on déduit :

$$\Delta'_{1.06} I = 140\ I\ 10^{-8}\ \Omega^{-1}cm^{-1} \qquad (II-8)$$

On peut remarquer que les tensions appliquées sont inférieures à 1500 V, on n'assiste pas au phénomène "d'avalanche" observé lors de l'étude du courant d'obscurité.

b) <u>Photoconduction en régime nanoseconde</u>

Avec un laser Nd-YAG émettant des impulsions de largeur à mi-hauteur $T_{\frac{1}{2}} \simeq 10$ ns, à la longueur d'onde 1,06 µm, nous avons étudié la photoconduction des cristaux d'InP:Fe et de GaAs:Cr en régime impulsionnel. Le schéma électrique est le suivant, la tension V_o est appliquée par une source de tension capacitive :



Pour visualiser l'impulsion de photocourant nous avons utilisé tout d'abord un oscilloscope de bande passante 150 MHz. La capacité C_A permet de maintenir la tension aux bornes du cristal, la résistance R_A protège la source de tension. La capacité du cristal $C_x = \frac{\varepsilon \varepsilon_o s}{d}$ est de l'ordre de 1 pF et peut être négligée par rapport à la capacité C_A.

La cadence de tir du laser est 10 Hz.

Dans le noir la résistance R_{x_o} du cristal est de l'ordre de 100 MΩ pour InP:Fe, de 800 MΩ pour GaAs:Cr. La capacité se charge et assure la tension $V_A = \frac{Q_A(0)}{C_A}$ aux bornes du cristal. Lors de l'illumination, la résistance du cristal est $R_x(t)$. La capacité C_A se décharge, la valeur de sa charge $Q_A(t)$ vérifie alors l'équation différentielle :

$$\frac{dQ_A(t)}{dt} + \frac{Q_A(t)}{C_A}\left(\frac{1}{R_x(t) + R_c} + \frac{1}{R_A}\right) = \frac{V_o}{R_A} \qquad \text{(II.9)}$$

L'évolution de $Q_A(t)$ est une exponentielle avec une constante de temps τ égale à :

$$\tau = C_A\left(\frac{1}{R_x(t) + R_c} + \frac{1}{R_A}\right)^{-1}$$

Les courants mesurés montrent qu'à illumination maximale la résistance $R_x(t)$ est supérieure à 80 Ω pour InP:Fe et à 30 Ω pour GaAs:Cr. La capacité se décharge avec une constante de temps supérieure à $(R_x(t) + R_c)\, C_A \simeq 1$ à 2 μs.

Après l'impulsion et la recombinaison des porteurs de charge, la résistance du cristal devient très grande et la capacité se

charge avec une constante de temps voisine de $R_A C_A = 1$ ms. Ainsi on peut considérer que la charge de la capacité garde une valeur presque constante pendant l'impulsion (10 ns) et assure une tension V_A égale à $V_o \frac{R_{x_o} + R_c}{R_{x_o} + R_A + R_c} \simeq V_o$. La tension mesurée aux bornes de la résistance de charge R_c est :

$$V_{mesurée}(t) = V_o \frac{R_{x_o} + R_c}{R_{x_o} + R_A} \cdot \frac{R_c}{(R_x(t) + R_c)} = R_c\, i(t) \quad \text{(II.10)}$$

α) Cristal d'InP:Fe

Pour l'étude de la conductivité en régime impulsionnel, on définit la conductivité par :

$$\sigma_{1.06ns} = \sigma_d + \Delta\sigma_{1.06ns} I$$

où $I = \frac{E}{T_L}$ représente la densité moyenne de puissance (E étant la densité d'énergie au centre du cristal).

Une impulsion de photocourant (tension mesurée) est représentée figure II-17.a). La tension appliquée est $V_o = 100$ V, E = 0,9 mJ/cm² , soit I égal à 0,09 mW/cm². Pour la même densité d'énergie, nous avons représenté, figure II.17.b), l'impulsion lumineuse recueillie par une cellule rapide au silicium (de temps de montée d'environ 1 ns).

Nous pouvons observer que l'impulsion de photocourant croît pendant l'impulsion puis décroît avec deux constantes de temps : une rapide de l'ordre de la durée de l'impulsion et une lente de l'ordre de 100 à 200 ns.

Nous avons représenté, figure II-18, la valeur maximale du

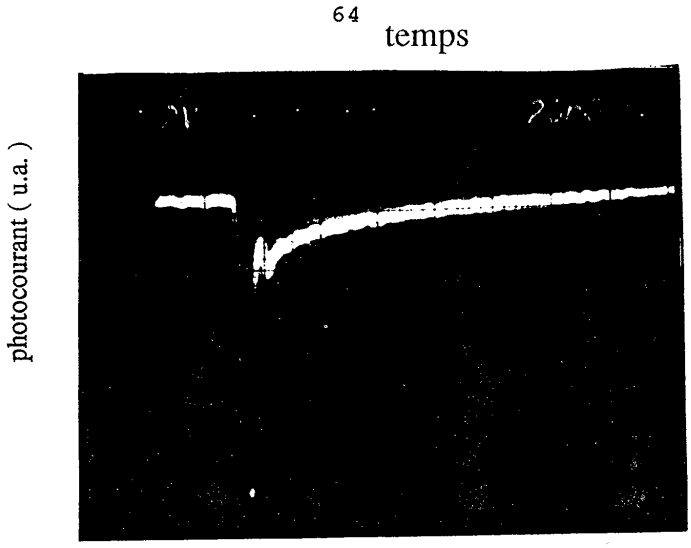


Figure II-17 a : Impulsion de photocourant dans le cristal d'InP:Fe .

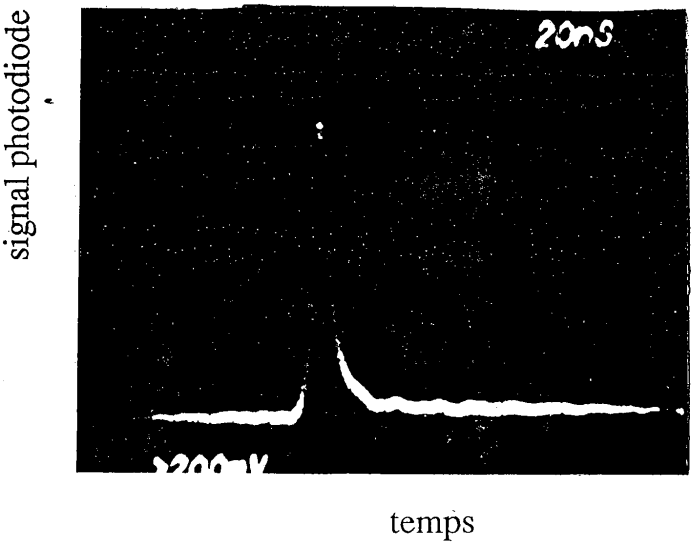


Figure II-17 b : Impulsion lumineuse

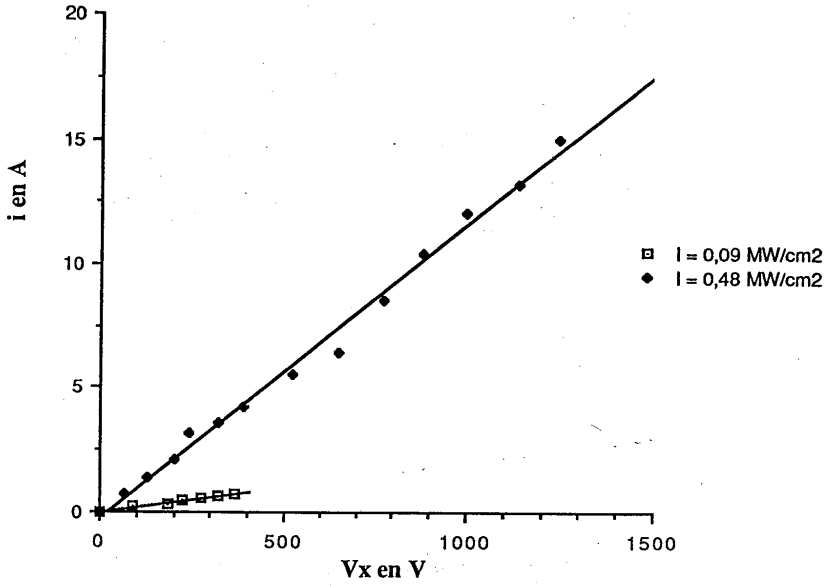


Figure II-18 : Photocourant dans InP:Fe en régime nanoseconde à la longueur d'onde 1,06 µm .

pic de photocourant en fonction de la tension V aux bornes du cristal, pour deux valeurs de la densité de puissance au centre du cristal : $I_1 = 0,09$ MW/cm² et $I_2 = 0,48$ MW/cm².

Le photocourant, comme en régime continu, varie linéairement avec la tension appliquée aux bornes du cristal. Ceci confirme le comportement ohmique de ce matériau.

La figure II.19 montre la variation de la photoconductivité en régime nanoseconde en fonction de la densité de puissance I (longueur d'onde λ = 1,06 µm et valeur déduite du pic de photocourant). I varie de 0,06 MW/cm² à 1,5 MW/cm². La tension appliquée est $V_x = 180$ V. Nous obtenons ainsi :

$$\sigma_{1.06ns} = \sigma_d + \Delta\sigma_{1.06ns} I = (1,2 + 3\ I)\ 10^{-8}\Omega^{-1}cm^{-1} \quad (II.11)$$

avec I en W/cm² au centre du cristal.

Pour une valeur de I = 0,48 MW/cm² et une tension appliquée aux bornes du cristal $V_x = 1200$ V, nous avons mesuré un pic de photocourant i de 15 A. Par effet Joule la puissance maximale dissipée dans le cristal est P = V i = 18 kW. Celle correspondant à l'absorption lumineuse est $P' = I\left(e^{\frac{a^{1.06}\ell}{2}} - (1-R_e)\ e^{-\frac{a^{1.06}\ell}{2}}\right)$ S ≃ 200 kV (S étant la surface du cristal, ℓ son épaisseur). Ainsi l'accroissement relatif de température par unité de temps, correspondant à la puissance totale est $\frac{\Delta T}{T} = \frac{P + P'}{Cm} \simeq 3\ 10^5 K\ s^{-1}$. Pendant la durée de l'illumination (10 ns), la température s'est donc élevée de $3\ 10^{-3}$ °K, c'est donc négligeable.

Afin de mesurer précisément les deux constantes de temps de recombinaison des porteurs libres, (constantes de temps de décroissance du photourant), nous avons refait ces expériences en

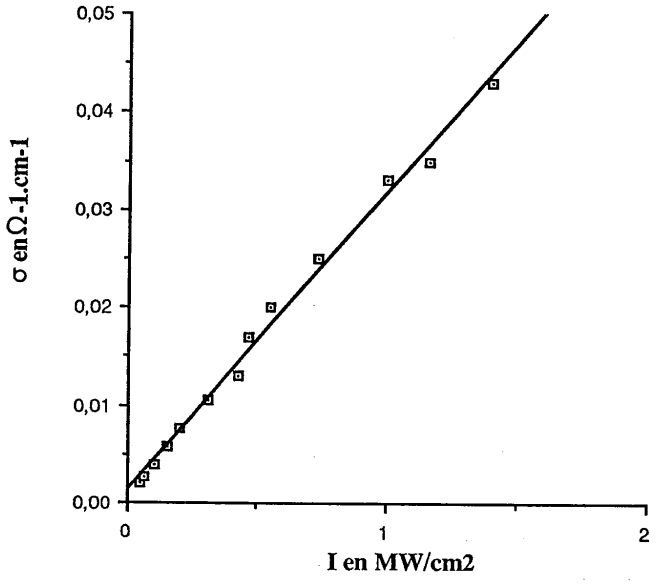


Figure II-19 : Conductivité InP:Fe en régime nanoseconde

à la longueur d'onde 1,06 μm (V_x=180 V) .

utilisant un oscilloscope plus rapide, de 500 MHz de bande passante, associé à un système d'acquisition de données. Cet oscilloscope nous permet de résoudre temporellement le profil de l'impulsion lumineuse détectée par une photodiode rapide de temps de montée inférieur à 1 ns. La forme de l'impulsion lumineuse et l'évolution du photocourant sont représentées figure II-20. La densité de puissance est I = 0,13 MW/cm^2, la largeur à mi-hauteur de l'impulsion est T_L = 7,5 ns. Pour le photocourant, après un pic qui suit assez bien l'évolution de l'impulsion. Nous observons une décroissance lente de constante de temps τ_ℓ^{pc} d'environ 50 ns. Cette constante de temps est mesurée 20 ns après le sommet de l'impulsion. Sa variation avec la densité d'énergie au centre du cristal est donnée figure II.21. Cette décroissance observée sera expliquée lors de l'analyse théorique du chapitre V. Les deux courbes de la figure II.20 représente des moyennes sur 100 impulsions. Sur une impulsion unique, nous observons des fluctuations rapides de l'impulsion lumineuse, qui ne sont pas reproduites totalement dans le signal du photocourant (figure II.22). Ainsi, le signal de photocourant résulte de l'intégration de l'impulsion lumineuse par une fonction ayant une constante de temps de décroissance rapide, très légèrement supérieure à celle de notre système de mesure (< 1 ns). Nous assimilons cette constante de temps à celle de décroissance rapide τ_r^{pc} du photocourant. τ_r^{pc} croit avec l'énergie, elle est inférieure à 1 ns pour une densité d'énergie de 1 mJ/cm^2 et vaut environ 1 ns à forte énergie (5 mJ/cm^2). On peut relier cette cinétique du photocourant à la recombinaison des porteurs de chage photoexcités.

Les constantes de temps de recombinaison des porteurs de charge sont données pour les électrons $\tau_{Rn} = \dfrac{1}{\gamma_n [Fe^{3+}]}$ et pour les trous $\tau_{Rp} = \dfrac{1}{\gamma_p [Fe^{2+}]}$ (voir chapitre I§3). De plus, nous avons les

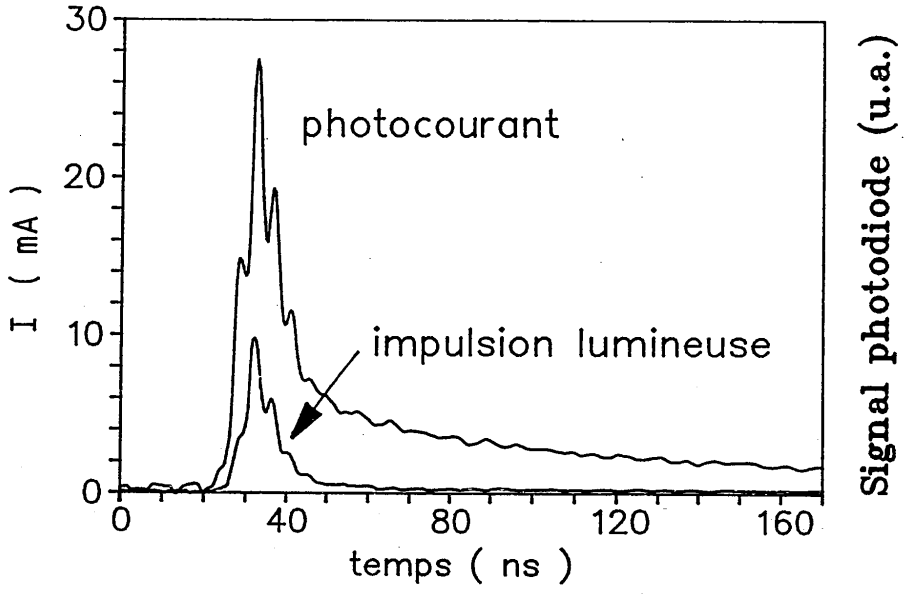


Figure II-20 : Impulsion de photocourant et impulsion lumineuse (à la longueur d'onde 1,06 μm) dans InP:Fe pour une intensité I=0,13 MW/cm^2.

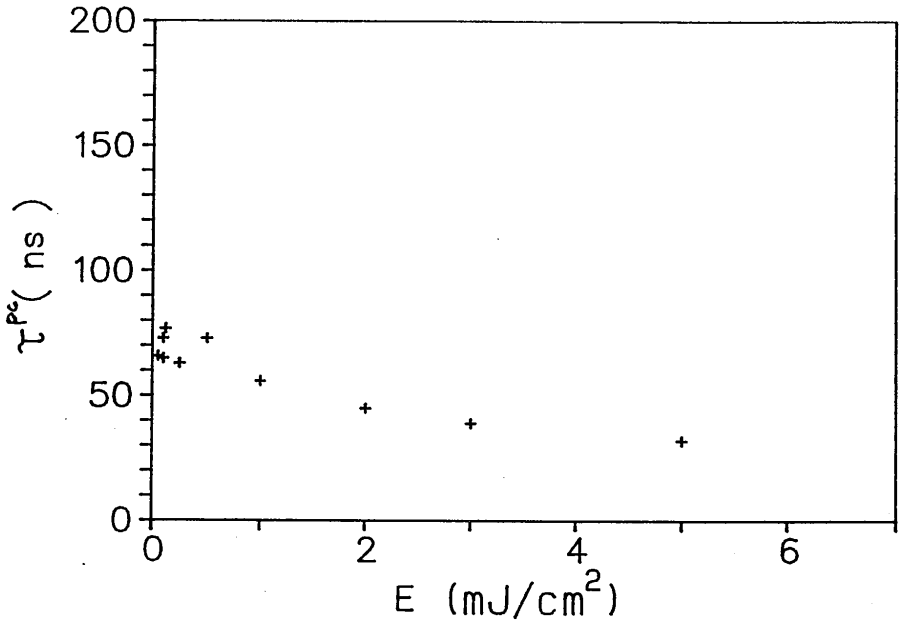


Figure II-21 : Evolution de la constante de temps lente du photocourant dans InP:Fe en régime nanoseconde à la longueur d'onde 1,06 µm .

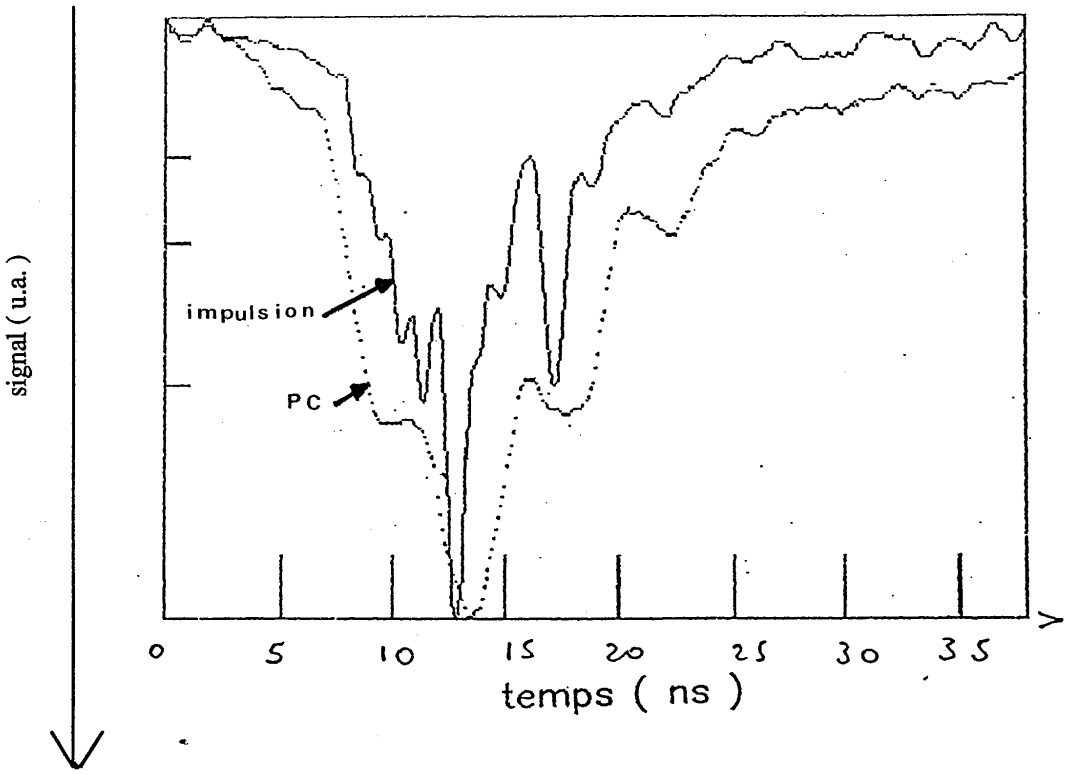


Figure II-22 : Impulsion lumineuse (pour une densité d'énergie de 1 mJ/cm^2) et impulsion de photocourant correspondante (PC) dans InP:Fe .

relations $\gamma_n = \bar{S}_n V_n^{th}$ et $\gamma_p = \bar{S}_p V_p^{th}$ où $\bar{S}_n$ et $\bar{S}_p$ sont les sections efficaces de recombinaison (ou capture) des électrons et des trous respectivement et où $v_{n,p}^{th} = \sqrt{\frac{3\ k_B T}{m_{n,p}}}$ sont les vitesses thermiques. On a donc : $v_n^{th} \simeq v_p^{th}$ ($m_n = 0,073\ m_o$ et $m_p = 0,089\ m_o$, m_o étant la masse de l'électron au repos [79]). La valeur de la section efficace de recombinaison des électrons à température ambiante sur le niveau Fe^{3+} est $\bar{S}_n \simeq 10^{-15}\,cm^2$ [64], celle des trous a été estimée plus faible. Des études récentes de déclin de photoluminescence suite à une excitation subpicoseconde sur un échantillon d'InP:Fe dopé à $10^{17}\,cm^{-3}$ ont montré que la constante de temps de recombinaison des électrons est voisine de 10 ps à basse température ($\simeq$ 50 ps à température ambiante) [77]. Cela est cohérent avec une valeur $\bar{S}_n \simeq 10^{-14}\,cm^2$ [65] obtenue par mesure DLTS.

Dans notre échantillon, la concentration des ions Fe^{3+} est supérieure à celle des ions Fe^{2+} (nous avons $[Fe^{3+}] = 4.10^{16}\,cm^{-3}$ et $[Fe^{2+}] \leqslant 10^{16}\,cm^{-3}$ [77] nous reviendrons en détail sur ces valeurs dans le chapitre V).

Nous pouvons donc en déduire que la constante de décroissance de temps rapide du photocourant τ_r^{pc} est égale à τ_{R_n} et que celle lente τ_r^{pc} est égale à τ_{R_p}. Nous reviendrons dans le chapitre V sur la dépendance en énergie des constantes de temps τ_{R_n} et τ_{R_p}. A l'équilibre nous avons :

$$\tau_{R_n} \leqslant 0,5\ ns \qquad \text{et} \qquad \tau_{R_p} \leqslant 100\ ns \qquad (II.12)$$

β) Cristal de GaAs:Cr

Une impulsion de photocourant (tension mesurée) est représentée figure II-23.a). La tension appliquée aux bornes du cristal est $V_x = 60$ V et le flux énergétique lumineux par unité de

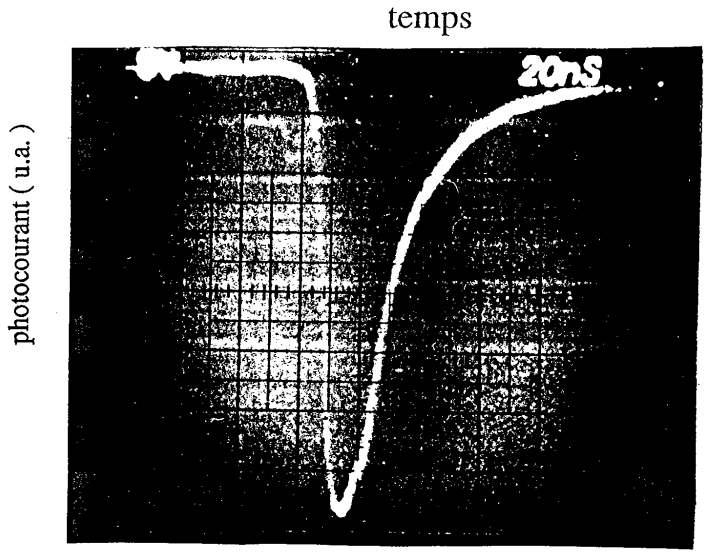


Figure II-23 a : Impulsion de photocourant dans le cristal de GaAs:Cr .

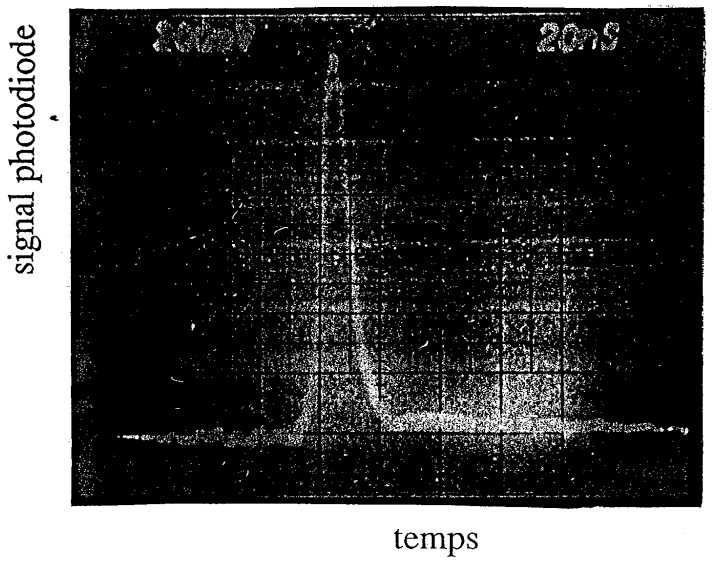


Figure II-23 b : Impulsion lumineuse

surface est I = 0,16 MW/cm^2. Pour cette même densité de puissance, nous avons recueilli l'impulsion lumineuse sur une cellule rapide, le résultat est illustré figure II-23.b).

Nous observons une montée rapide du photocourant pendant l'impulsion, suivi d'une décroissance monoexponentielle de constante de temps $\tau^{PC} \simeq 30$ ns au lieu de la décroissance biexponentielle observée dans InP:Fe.

Toujours pour cette même valeur de la densité de puissance, nous avons étudié l'évolution du maximum du pic de photocourant en fonction de la tension appliquée V_x. Le résultat est représenté sur la figure II.24. La variation du photocourant est linéaire pour cette valeur de l'énergie et pour des tensions appliquées inférieures à 100 V.

Sachant que le champ n'est pas uniforme à l'intérieur du cristal (voir étude de la répartition spatiale du champ, paragraphe 6 a)β)), nous avons défini une "conductivité moyenne" en supposant le champ électrique à l'intérieur du cristal égal à $\frac{V_x}{d}$ (V_x tension appliquée, d distance entre les électrodes).

L'évolution de cette conductivité moyenne $\sigma_{1,06ns}$ en régime nanoseconde en fonction de I, la densité de puissance est représentée figure II-25, la tension appliquée est V_x = 180 V.

Pour I inférieur à 0,17 MW/cm^2, la variation de $\sigma_{1,06ns}$ est linéaire et nous pouvons écrire :

$$\sigma_{1,06ns} = \sigma_d + \Delta\sigma_{1,06ns} I = (0,4 + 45I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1} \quad (II.13)$$

De même pour des densités de puissance supérieures, la variation de $\sigma_{1,06ns}$ est aussi linéaire et nous avons pour la

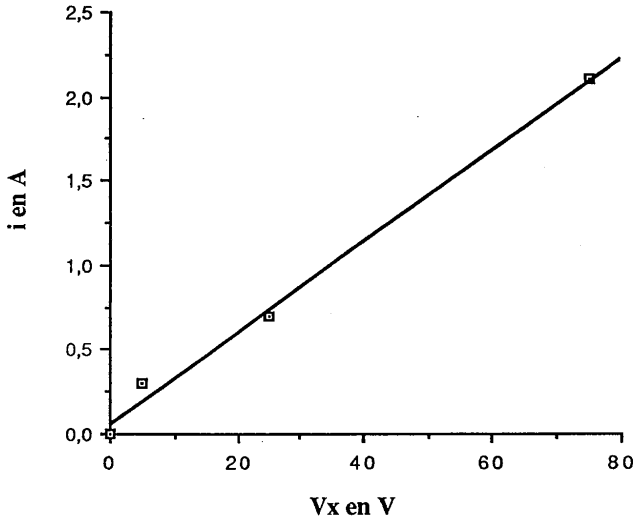


Figure II-24 : Photocourant GaAs:Cr en régime nanoseconde à la longueur d'onde 1,06 µm (I=0,16 MW/cm^2) .

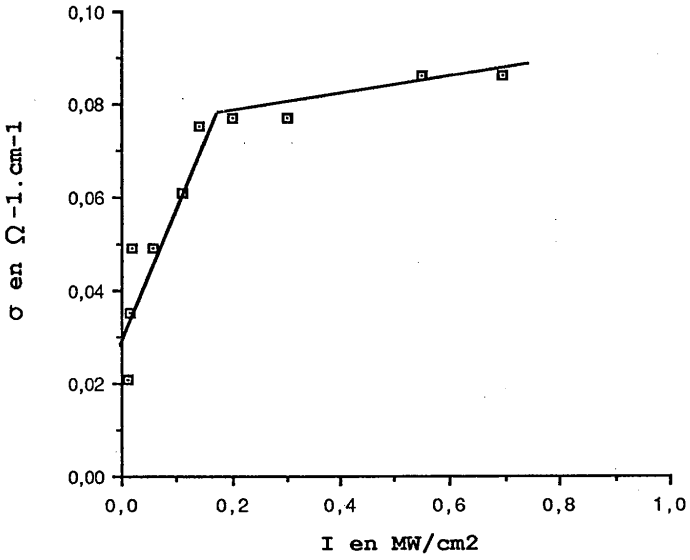


Figure II-25 : Conductivité GaAs:Cr en régime nanoseconde à la longueur d'onde 1,06 µm .

photoconductivité :

$$\Delta\sigma'_{1.06ns} I = 2\ I\ 10^{-8}\Omega^{-1}cm^{-1} \qquad (II.14)$$

Avec I en W/cm^2 au centre du cristal.

Cette "saturation" de la conductivité moyenne peut provenir de la limitation des centres photoexcitables. Si nous supposons que la photoconduction s'effectue principalement par les électrons pour une densité de puissance de 0,2 mW/cm^2 le nombre moyen de photoporteurs correspondant est de l'ordre de $2\ 10^{14}cm^{-3}$, si ce sont des trous ce nombre est d'un facteur dix plus grand. La "saturation" indiquerait alors une densité de centres photoexcitables de l'ordre de 10^{14} à $10^{15}cm^{-3}$. Une autre raison serait de considérer, comme pour la photoconduction en régime continu, que le phénomène est attribué à un changement de photoconductivité du au passage intervallée. Cependant le peu de renseignement sur ce cristal ne nous permet pas de conclure.

II.7. CONCLUSION

Les tableaux II-1 et II-2 regroupent les principales propriétés que nous utiliserons pour la suite de notre étude. Le tableau II-1 correspond au cristal d'InP:Fe, le tableau II-2 au cristal de GaAs:Cr.

Ces deux matériaux possèdent des propriétés voisines, nous remarquerons cependant que la conductivité dans le noir et l'absorption linéaire sont plus importantes pour le cristal d'InP:Fe. Le cristal de GaAs:Cr possède quant à lui une photoconductivité plus grande. Nous observons en régime nanoseconde dans ce même cristal une saturation de photocourant.

- Concentration en ions Fer [77] :

$$\left[Fe^{3+}\right] \approx 4 10^{16} cm^{-3}$$

$$\left[Fe^{2+}\right] \leq 10^{16} cm^{-3}$$

- indice de réfraction [70] : à 1,06 µm n = 3,29
à 1,30 µm n = 3,23

- coefficient electro-optique [72] :

r_{41} = 1,34 pm/V

- permittivité relative [74] :

ε_r= 12,4

- sections efficaces de photoionisation [76] :

à 1,06 mm électrons : $S_n = 4\ 10^{-18} cm^2$
trous : $S_p = 5\ 10^{-17} cm^2$

- mobilités [77] :
trous : $\mu_p = 130\ cm^2\ V^{-1}S^{-1}$
électrons : $\mu_n = 1300\ cm^2\ V^{-1}S^{-1}$

- absorption linéaire : $a^{1,06}$= 1,95 ± 0,05 cm^{-1}
: $a^{1,30}$= 0,67 ± 0,05 cm^{-1}

- conductivité dans le noir :

$\sigma_d = 1,2\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

- conduction en régime continu :

$\sigma_{1,06} = (1,2+123\ I)\ 10^{-8}\ \Omega^{-1} cm^{-1}$

$\sigma_{1,30} = (1,2+16\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

- conduction en régime nanoseconde :

$\sigma_{1,06ns} = (1,2+3\ I)\ 10^{-8}\ \Omega^{-1} cm^{-1}$

Table II.1 : Principales propriétés du cristal d'InP:Fe

- concentration en ions Chrome :

$[Cr] \approx 10^{16} cm^{-3}$

- indice de réfraction [71] : à 1,06 µm $n = 3,48$
à 1,30 µm $n = 3,42$

- coefficient electro-optique [73] :

$r_{41} = 1,43$ pm/V

- permittivité relative [75] :

$\varepsilon_r = 12,9$

- sections efficaces de photoionisation [67] :

à 1,06 mm électrons : $S_n = 9\ 10^{-19} cm^2$
trous : $S_p = 9\ 10^{-17} cm^2$

- mobilité de Hall [78] : $\mu = 3500\ cm^2\ V^{-1}S^{-1}$

- absorption linéaire : $a^{1,06} = 1,5 \pm 0,2\ cm^{-1}$

- conductivité dans le noir (Vx< 1500 V) :

$\sigma_d = 4\ 10^{-9} \Omega^{-1} cm^{-1}$

- conductivité moyenne en continu :

(Vx< 250 V) $\sigma_{1,06} = (0,4+1200\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

(Vx> 250 V) $\sigma_{1,06} = (0,4+140\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

- conductivité moyenne en régime nanoseconde :

(I< 0,17 MW/cm2) $\sigma_{1,06ns} = (0,4+45\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

(I>0,17 MW/cm2) $\sigma_{1,06ns} = (0,4 + 2\ I)\ 10^{-8} \Omega^{-1} cm^{-1}$

Table II.2 : Principales propriétés du cristal de GaAs:Cr

III - APPROCHE THEORIQUE DU COUPLAGE D'ONDE PHOTOREFRACTIF

III.1. TRANSFERT D'ENERGIE PHOTOREFRACTIF OU COUPLAGE D'ONDE

a) Création d'un réseau d'indice

Nous avons montré, au chapitre I paragraphe 3.d), que l'illumination résultant de l'interférence de deux ondes planes à l'intérieur d'un cristal photoréfractif produit une modulation spatiale $\underset{\approx}{\varepsilon}_1(t)$ de la permittivité du matériau, c'est à dire la création d'un réseau d'indice.

L'expression de $\underset{\approx}{\varepsilon}_1(t)$ est donnée par la formule (I.40), à savoir :

$$\underset{\approx}{\varepsilon}_1(t) = - \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} \left[\underset{\approx}{R} \hat{k}_R \right] \underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega} E_1(t) \qquad (I.40)$$

Les différentes grandeurs intervenant dans cette expression ont été définies (page 11).

Dans le cas général, il existe un déphasage ψ entre le réseau de champ de charge d'espace et celui d'illumination qui résulte de la loi de Poisson (I.33). Lorsqu'il n'y a pas de champ extérieur appliqué, le module de ce déphasage vaut $\frac{\pi}{2}$; $\psi = -\frac{\pi}{2}$ si les porteurs de charge qui contribuent majoritairement à la création de champ de charge d'espace sont des électrons et $\frac{\pi}{2}$ si ce sont des trous. Selon le signe du produit $\left[\underset{\approx}{R} \hat{k}_R \right]$ et celui des porteurs de

charge "majoritaires", le réseau d'indice créé par la modulation spatiale de la permittivité sera déphasé d'un quart de frange, soit vers les $x > 0$ soit vers les $x < 0$ (voir figure III-1).

b) <u>Autodiffraction des ondes incidentes</u>

Il y a diffraction des deux ondes planes interférant dans le cristal sur ce réseau d'indice qu'elles créent (figure III-2) ce qui conduit à une variation de modulation de la figure d'interférence dans l'épaisseur du cristal. Puisque ce phénomène est dynamique, ceci se traduit par une modification du réseau d'indice induit.

Au cours de la propagation chacune des deux ondes résulte de la superposition d'une onde transmise E^t et d'une onde diffractée E^d. Ces ondes sont cohérentes entre elles et interfèrent deux à deux. Le réseau inscrit est un réseau épais, seuls sont diffractés efficacement les ordres - 1, c'est à dire selon la direction E_p^t pour l'onde E_s et selon E_s^t pour l'onde E_p.

Il est bien connu qu'une onde diffractée sur un réseau d'indice est en avance de phase de $\frac{\pi}{2}$ par rapport à l'onde transmise [80]. Ici, à ce déphasage, s'ajoute ou se retranche le déphasage Φ. Ainsi la différence de phase entre E_p^t et E_s^d est $-\frac{\pi}{2} - \Phi$ et celle entre E_s^t et E_p^d est $-\frac{\pi}{2} + \Phi$. Lorsque aucun champ extérieur n'est appliqué $\left(|\Phi| = \frac{\pi}{2}\right)$, les interférences sont constructives sur une voie et destructives sur l'autre.

Il y a un transfert cohérent d'énergie ou couplage entre les deux ondes. Le sens de ce transfert ne dépend pas des intensités relatives des faisceaux. Il ne dépend que du signe de Φ, (lié à

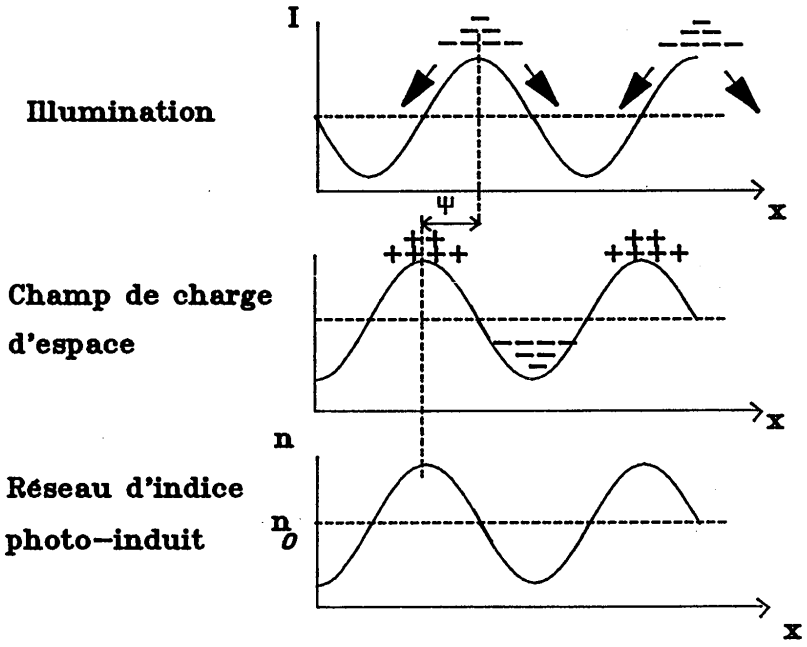


Figure III-1 : Création d'un réseau d'indice à partir d'une figure d'interférence dans un cristal photoréfractif .

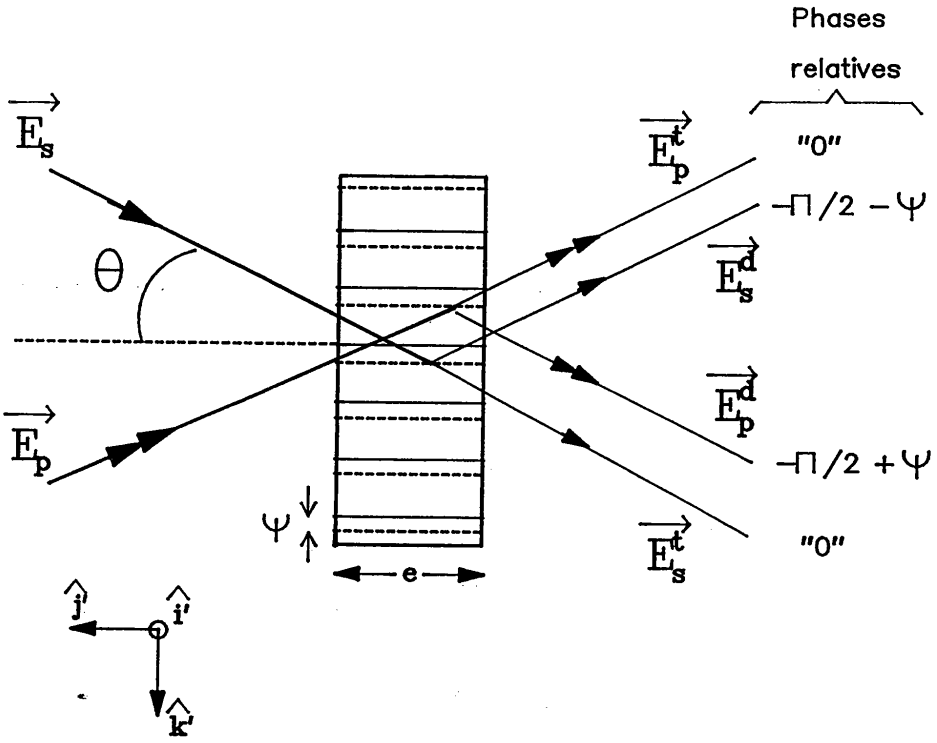


Figure III-2 : Schéma de principe du couplage entre deux ondes .

celui des porteurs de charge qui contribuent majoritairement au champ de charge d'espace), de l'orientation du cristal et des polarisations des ondes incidentes ainsi que nous le discuterons par la suite.

III.2. THEORIE DES ONDES COUPLEES

La théorie du couplage d'onde dans les matériaux dynamiques [22] est dérivée des équations d'ondes couplées développées par Kogelnik [80]. Ce dernier a étudié la diffraction d'une onde plane par un réseau d'indice épais statique. Nous pouvons reprendre une approche similaire dans le cas d'un réseau d'indice, travaillant par transmission, enregistré dans un matériau photoréfractif.

Les deux ondes planes incidentes, créant le réseau d'indice, vérifient l'accord de phase (accord de Bragg). Elles sont caractérisées par leurs vecteurs champ électrique $\vec{E}_1^{\omega}$ et $\vec{E}_2^{\omega}$ dont les expressions figurent au chapitre I, paragraphe 3.d). Le pas du réseau inscrit est $\Lambda = \dfrac{\lambda}{2 \sin \theta_e}$, λ étant la longueur d'onde dans le vide et $2\theta_e$ l'angle entre les faisceaux à l'extérieur du cristal. Le module du vecteur réseau $\left(\vec{k}_R = \vec{k}_1 - \vec{k}_2\right)$ est $k_R = \dfrac{2\pi}{\Lambda}$.

A partir des équations de Maxwell (système I.1) nous déduisons l'équation de propagation à l'intérieur du cristal vérifiée par le champ électrique $\left(\vec{E}^{\omega} = \vec{E}_1^{\omega} + \vec{E}_2^{\omega}\right)$:

$$\overrightarrow{\text{rot}}\left(\overrightarrow{\text{rot}}\left(\vec{E}_1^{\omega} + \vec{E}_2^{\omega}\right)\right) = -\mu_o \frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(\underset{\approx}{\varepsilon}(x,t)\left(\vec{E}_1^{\omega} + \vec{E}_2^{\omega}\right)\right) - \mu_o \frac{\partial}{\partial t}\left[\underset{\approx}{\sigma}\left(\vec{E}_1^{\omega} + \vec{E}_2^{\omega}\right)\right] \quad \text{(III.1)}$$

$\underset{\approx}{\sigma}$ désigne le tenseur de conductivité qui relie le champ électrique de l'onde $\vec{E}^{\omega}$ à la densité de courant $\vec{j}$. Nous avons $\vec{j} = \underset{\approx}{\sigma}\,\vec{E}^{\omega}$.

$\underset{\approx}{\varepsilon}(x,t)$ est le tenseur de permittivité diélectrique du matériau dont l'expression est donnée au chapitre I paragraphe 3.d) page 30 :

$$\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}(x,t) = \underset{\approx}{\varepsilon}_{L} + \Delta\underset{\approx}{\varepsilon}\,(t) + \delta\underset{\approx}{\varepsilon}\,(x,t) \qquad (I.36)$$

Le premier terme correspond à la partie linéaire de ce tenseur, le second à la variation due à un champ électrique extérieur appliqué $\vec{E}_{o}(t)$ et le troisième à la modulation due à la création d'un champ variant spatialement : champ de charge d'espace.

Les ondes $\vec{E}_{1}^{\omega}$ et $\vec{E}_{2}^{\omega}$ se propageant selon l'axe y, si nous faisons l'hypothèse qu'il n'existe pas de variations des champs électriques selon les axes x et z, l'équation de propagation s'écrit :

$$\frac{\partial^2}{\partial y^2}\left(\vec{E}_{1}^{\omega}+\vec{E}_{2}^{\omega}\right) = -\mu_{o}\omega^{2}\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}(x,t)\left(\vec{E}_{1}^{\omega}+\vec{E}_{2}^{\omega}\right) - \mu_{o}\omega\,\underset{\approx}{\sigma}\left(\vec{E}_{1}^{\omega}+\vec{E}_{2}^{\omega}\right) \qquad (III.2)$$

Nous avons négligé les variations selon le temps des tenseurs $\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}$ et $\underset{\approx}{\sigma}$ par rapport à celles du champ électrique (variations lentes par rapport à celles de $\vec{E}^{\omega}$ (fréquences optiques)). Compte-tenu des expressions de $\vec{E}_{1}^{\omega}$ et $\vec{E}_{2}^{\omega}$ et après élimination des termes en dérivée seconde (approximation de l'enveloppe lentement variable) ainsi que des termes de la partie linéaire de $\underset{\approx}{\varepsilon}(x,t)$, nous obtenons :

$$\frac{1}{2}\left(ik\cos\theta\,\frac{\partial}{\partial y}\left(\hat{e}_1\,\xi_1\right)e^{-i\left(\vec{k}_1\vec{r}-\omega t\right)}+cc\right)$$

$$+\frac{1}{2}\left(ik\cos\theta\,\frac{\partial}{\partial y}\left(\hat{e}_2\,\xi_2\right)e^{-i\left(\vec{k}_2\vec{r}-\omega t\right)}+cc\right)$$

$$=-\mu_o\omega^2\,\underset{\approx}{\delta}\,\varepsilon(x,t)\left(\vec{E}_1^{\omega}+\vec{E}_2^{\omega}\right)-\mu_o\omega\,\underset{\approx}{\sigma}\left(\vec{E}_1^{\omega}+\vec{E}_2^{\omega}\right)\qquad\text{(III.3)}$$

Avec $k = n\,\frac{\omega}{c}$ où n, ω et c représentent respectivement l'indice de réfraction à la longueur d'onde utilisée, la pulsation de l'onde et la vitesse de propagation dans le vide, 2θ est l'angle entre les faisceaux à l'intérieur du cristal.

Nous rappelons l'expression de $\underset{\approx}{\delta\varepsilon}(x,t)$ donnée au chapitre I paragraphe 3.d) :

$$\underset{\approx}{\delta\varepsilon}(x,t) = -\frac{1}{2}\left(\underset{\approx}{\varepsilon}\left[\underset{\approx}{R}\,\hat{k}_R\right]\underset{\approx}{\varepsilon}\,E_1(t)\,e^{-i\left(\vec{k}_1-\vec{k}_2\right)\vec{r}}+cc\right)\qquad\text{(III.4)}$$

Avec $\underset{\approx}{\varepsilon}^{\omega}=\varepsilon_o\varepsilon_r\,\underset{\approx}{1}$, ε_o permittivité du vide, $\varepsilon_r = n^2$ permittivité relative du milieu aux fréquences optiques et $\underset{\approx}{1}$ tenseur unité. En regroupant les termes en $e^{i\omega t}$, l'équation (III.3) devient :

$$ik\cos\theta\left(\frac{\partial}{\partial y}\left(\hat{e}_1\,\xi_1\right)e^{-i\,\vec{k}_1\vec{r}}+\left(\hat{e}_2\,\xi_2\right)e^{-i\,\vec{k}_2\vec{r}}\right)$$

$$=-\mu_o\varepsilon_o\omega^2\left(\varepsilon_r\left[\underset{\approx}{R}\,\hat{k}_R\right]\varepsilon_r\right)\left(\frac{E_1(t)\,e^{-i\left(\vec{k}_1-\vec{k}_2\right)\vec{r}}+cc}{2}\right)\text{x A}$$

$$A = \left(\hat{e}_1 \xi_1 e^{-i\vec{k}_1\vec{r}} + \hat{e}_2 \xi_2 e^{-i\vec{k}_2\vec{r}}\right) - \mu_o \omega \underset{\approx}{\sigma} \left(\hat{e}_1 \xi_1 e^{-i\vec{k}_1\vec{r}} + \hat{e}_2 \xi_2 e^{-i\vec{k}_2\vec{r}}\right) \quad \text{(III.5)}$$

En regroupant les termes en accord de phase $e^{-i\vec{k}_1\vec{r}}$ puis $e^{-i\vec{k}_2\vec{r}}$, nous obtenons le système d'équations relatif aux amplitudes ξ_1, ξ_2 :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \xi_1}{\partial y} = i \dfrac{\omega}{2nc\cos\theta} \left(\hat{e}_1^* \left(\varepsilon_r \left[\underset{\approx}{R}\, \hat{k}_R\right] \varepsilon_r\right) \hat{e}_2\right) \xi_2 \, E_1(t) \\ \qquad + i \dfrac{\mu_o c}{n\cos\theta} \left(\hat{e}_1^* \left[\underset{\approx}{\sigma}\right] \hat{e}_2\right) \xi_2 \\ \dfrac{\partial \xi_2}{\partial y} = \dfrac{i\omega}{2nc\cos\theta} \left(\hat{e}_2^* \left(\varepsilon_r \left[\underset{\approx}{R}\, \hat{k}_R\right] \varepsilon_r\right) \hat{e}_1\right) \xi_1 \, E_1^*(t) \\ \qquad + i \dfrac{\mu_o c}{n\cos\theta} \left(\hat{e}_2^* \left[\underset{\approx}{\sigma}\right] \hat{e}_1\right) \xi_1 \end{cases} \quad \text{(III.6)}$$

On notera r_{eff}, le coefficient électro-optique effectif dont l'expression est :

$$r_{eff} = \left(\hat{e}_1^* \left(\varepsilon_r \left[\underset{\approx}{R}\, \hat{k}_R\right] \varepsilon_r\right) \hat{e}_2\right) = \left(\hat{e}_2^* \left(\varepsilon_r \left[\underset{\approx}{R}\, \hat{k}_R\right] \varepsilon_r\right) \hat{e}_1\right) \quad \text{(III.7)}$$

De plus, nous avons :

$$\left(\hat{e}_1^* \left[\underset{\approx}{\sigma}\right] \hat{e}_2\right) = \left(\hat{e}_2^* \left[\underset{\approx}{\sigma}\right] \hat{e}_1\right) = \frac{a^\lambda n}{\mu_o c} \quad \text{(III.8)}$$

où a^λ représente le coefficient d'absorption linéaire à la longueur λ dont la valeur a été donnée au chapitre II, paragraphe 4).

La résolution de ce système d'équations d'ondes couplées est dans le cas général très difficile parce que l'amplitude du champ de charge d'espace photoinduit $E_1(t)$ est une fonction compliquée des amplitudes ξ_1 et ξ_2 des ondes optiques faisant intervenir les

instants précédents (chapitre I, paragraphe 3 c et d). Nous traiterons au chapitre VI la détermination de $E_1(t)$ en régime nanoseconde.

Dans le cas d'un réseau photoréfractif induit en régime quasi-continu (faible puissance luumineuse, constante de temps d'évolution du réseau photoréfractif très grande devant les constantes de diffusion et de recombinaison des charges) plusieurs résolutions numériques ont été développées [81-83]. Cependant si l'on suppose que l'onde pompe $\left(E_2^{\omega}\right)$ n'est pas atténuée par le transfert d'énergie, des solutions analytiques peuvent être obtenues [84-86].

Nous proposerons au chapitre VI une résolution numérique dans le cas d'une excitation en régime nanoseconde. Comme dans les autres approches nous ferons l'hypothèse que le taux de modulation m du réseau d'illumination est petit devant l'unité et qu'il n'est pas sensiblement modifié par le transfert d'énergie qui est faible dans nos expériences. Ainsi que nous le montrerons l'amplitude du champ de charge d'espace $E_1(t)$ peut alors s'écrire :

$$E_1(t) = m\, E_{sc}(t)\, e^{i\Phi} \qquad \text{(III.9)}$$

où Φ est le déphasage entre les réseaux du champ de charge d'espace et d'illumination $E_{sc}(t)$ un terme indépendant des amplitudes ξ_1 et ξ_2 des ondes optiques.

La résolution des équations d'ondes couplées s'effectue alors simplement. Tout d'abord, on calcule les expressions de $\frac{\partial \xi_1^*}{\partial Y}$ et $\frac{\partial \xi_2^*}{\partial Y}$ (regroupement des termes en $e^{-i\omega t}$ puis de ceux en accord de phase). Nous obtenons ensuite les équations relatives aux densités de puissance des ondes I_1 et I_2 :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial I_1}{\partial y} = + \Gamma \dfrac{I_1 I_2}{I_1 + I_2} - \dfrac{a^{\lambda}}{\cos\theta} I_1 \\ \dfrac{\partial I_2}{\partial y} = - \Gamma \dfrac{I_1 I_2}{I_1 + I_2} - \dfrac{a^{\lambda}}{\cos\theta} I_2 \end{cases} \qquad \text{(III.10)}$$

Γ est le gain photoréfractif de couplage par unité de longueur d'interaction qui a pour expression :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{\left(\hat{e}_1 \hat{e}_2^*\right)}{n \cos\theta} r_{eff} E_{sc}(t) \sin\Phi \qquad \text{(III.11)}$$

Posant $I_o = I_1 + I_2$, la solution du système d'équations (III.10) est :

$$\begin{cases} I_1(y) = \dfrac{I_o e^{-\frac{a^{\lambda} y}{\cos\theta}}}{1 + \dfrac{I_2(0)}{I_1(0)} e^{-\Gamma v}} \\ I_2(y) = \dfrac{I_o e^{-\frac{a^{\lambda} y}{\cos\theta}}}{1 + \dfrac{I_1(0)}{I_2(0)} e^{+\Gamma v}} \end{cases} \qquad \text{(III.12)}$$

Si nous regardons l'effet d'un faisceau fort (faisceau pompe) sur un faisceau faible (faisceau sonde ou signal) nous avons $I_2(0) >> I_1(0)$ et la densité de puissance du faisceau sonde $I_1(\ell)$ que nous mesurons à la sortie du cristal s'écrit :

$$I_1(\ell) \simeq I_1(0)\, e^{-\frac{a^{\lambda} \ell}{\cos\theta}} e^{\Gamma \ell} \qquad \text{(III.13)}$$

ℓ étant l'épaisseur du cristal.

En l'absence de faisceau pompe, c'est à dire sans réseau d'indice photoinduit, la densité de puissance du faisceau sonde à la sortie du cristal est : I_1 (sans pompe) = $I_1(0)\, e^{-\frac{a^{\lambda}\ell}{\cos\theta}}$. Nous pouvons donc caractériser le transfert d'énergie photoréfractif en mesurant le gain relatif de couplage G_{pr} défini par :

$$G_{pr} = \frac{I_1 \text{ (avec pompe)}}{I_1 \text{ (sans pompe)}} = e^{\Gamma \ell} \qquad \text{(III.14)}$$

Selon le signe de Γ, il y aura en présence de l'onde pompe amplification de l'onde sonde ($G_{pr} \geqslant 1$) ou atténuation ($G_{pr} \leqslant 1$). Ce transfert d'énergie dépend de l'orientation du cristal et des polarisations des ondes (voir l'expression de Γ (relation III.11) liée à celle de r_{eff} (relation III.7)).

Les symétries de l'effet photoréfractif, étudiées dans le paragraphe suivant, permettent d'identifier cet effet et de l'isoler des autres phénomènes non linéaires.

III.3. SYMETRIES DE L'EFFET PHOTOREFRACTIF

Nous venons de voir, que dans le cas d'une expérience de couplage d'onde, dans laquelle nous regardons l'interaction d'un faisceau intense (pompe) sur un faisceau faible (sonde) et où le transfert d'énergie est faible, le taux de modulation m est petit devant 1 et peut être considéré comme indépendant du temps. Le transfert d'énergie peut alors être caractérisé par le gain photoréfractif par unité de longueur d'intéraction Γ dont nous

rappelons l'expression :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{\left(\hat{e}_1 \hat{e}_2^*\right)}{n \cos\theta} r_{eff} E_{sc}(t) \sin\Phi \qquad \text{(III.11)}$$

Dans nos expériences de couplage d'onde en régime nanoseconde décrites au prochain chapitre, il n'y aura pas de champ extérieur appliqué, il s'en suit que $|\sin \Phi| = 1$ et par conséquent l'étude du signe de Γ se réduit à celle du signe de r_{eff}. Il est intéressant de remarquer que le champ électrique à l'intérieur du cristal se résume dans ce cas au champ de charge d'espace modulé spatialement. Ainsi dans les deux configurations expérimentales étudiées, à savoir lorsque $\vec{k}_R$ //[001] et $\vec{k}_R$ //[110], le calcul de la biréfringence induite par effet photoréfractif s'effectue de la même manière qu'au chapitre I paragraphe 2.c) en remplaçant la valeur du champ extérieur $\vec{E}_o$ par celle du champ de charge d'espace qui est parallèle lui aussi à $\vec{k}_R$.

Rappelons l'expression du coefficient électro-optique effectif r_{eff} :

$$r_{eff} = \hat{e}_1^* \left(\varepsilon_r \left[\underset{\approx}{R}\, \hat{k}_R\right] \varepsilon_r\right) \hat{e}_2 \qquad \text{(III.7)}$$

Pour les cristaux d'InP:Fe et GaAs:Cr qui sont isotropes et de la classe de symétrie $\bar{4}3m$, le tenseur électro-optique s'écrit :

$$\underset{\approx}{R} = r_{41}(\hat{i} \otimes \hat{j} \otimes \hat{k} + \hat{i} \otimes \hat{k} \otimes \hat{j} + \hat{j} \otimes \hat{i} \otimes \hat{k} + \hat{j} \otimes \hat{k} \otimes \hat{i}$$
$$+ \hat{k} \otimes \hat{i} \otimes \hat{j} + \hat{k} \otimes \hat{j} \otimes \hat{i}) \qquad \text{(III.15)}$$

$\hat{i}$, $\hat{j}$, $\hat{k}$ étant les vecteurs unitaires selon les axes cristallographiques et $\otimes$ représentant le produit tensoriel qui vérifie la propriété suivante :

$$(\hat{i} \otimes \hat{j} \otimes \hat{k})\,\vec{V} = (\hat{i} \otimes \hat{j})\,(\hat{k} \otimes \vec{V}) \qquad \text{(III.16)}$$

a) <u>Configuration $\vec{k}_R$ // [001]</u>

Dans cette configuration, les ondes entrent par la face $(\bar{1}10)$ et le vecteur réseau est parallèle à la direction cristallographique [001] (figure III-3). Pour les cristaux de la classe de symétrie $\bar{4}3m$ tels InP et GaAs, les polarisations rectilignes sont des polarisations propres. Comme $\hat{k}_R = \hat{z}$ on trouve immédiatement :

$$\underset{\approx}{R}\,\hat{k}_R = r_{41}(\hat{i} \otimes \hat{j} + \hat{j} \otimes \hat{k}) \qquad \text{(III.17)}$$

Notant α_1 et α_2 les angles des vecteurs de polarisation $\hat{e}_1$ et $\hat{e}_2$ avec la direction [110], nous obtenons :

$$r_{eff} = n^4 r_{41}\left(\cos\alpha_1 \cos\alpha_2 + \sin\alpha_1 \sin\alpha_2 \sin^2\theta\right) \qquad \text{(III.18)}$$

2θ étant l'angle entre les faisceaux à l'intérieur du cristal. Comme ces matériaux ont un fort indice de réfraction et que nous aurons dans nos expériences un angle extérieur entre les faisceaux d'environ 60°, θ est petit ($\theta < 9°$).

Nous nous intéressons au cas où $\hat{e}_1 \hat{e}_2^*$ est maximum, soit $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$ ($\hat{e}_1 \hat{e}_2 = 1 - 2\sin^2\alpha \sin^2\theta$ est proche de 1 car $\sin^2\theta \simeq 0$). On obtient finalement :

$$r_{eff} \simeq n^4 r_{41} \cos^2\alpha \qquad \text{(III.19)}$$

Le transfert d'énergie est maximum, lorsque $\alpha = 0$, i.e. lorsque les polarisations des ondes sont suivant la direction [110]. Le module du gain de couplage par unité de longueur

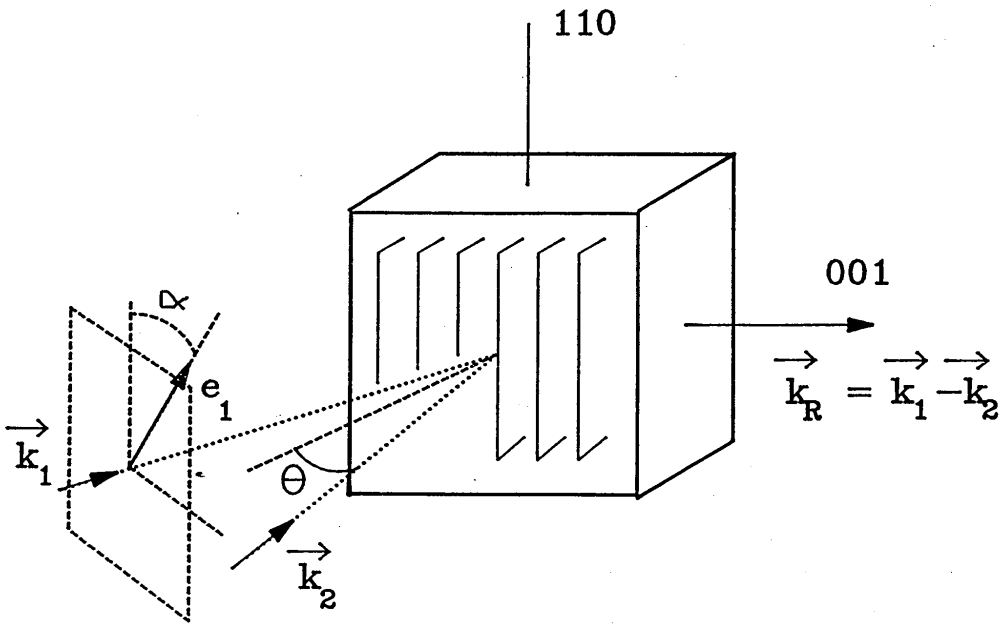


Figure III-3 : Configuration $\vec{k}_r$ // [001] .

d'interaction est maximum et s'écrit :

$$|\Gamma| = \frac{2\pi}{\lambda} n^3 r_{41} \frac{E_{sc}(t)}{\cos\theta} \qquad \text{(III.20)}$$

Si l'on retourne le cristal de 180° autour de la direction [110] , $\hat{k}_R = -\hat{k}$, alors r_{eff} change de signe. Γ change lui aussi de signe et le transfert d'énergie change de sens. L'amplification devient atténuation et inversement. Ceci est une caractéristique de l'effet photoréfractif. Nous verrons au chapitre IV d'une part la confirmation expérimentale en régime nanoseconde et d'autre part l'intérêt d'utiliser ces symétries pour séparer des effets nonlinéaires d'origines différentes.

b) Configuration $\vec{k}_R$ // [110]

Dans cette configuration les ondes entrent toujours par la face $(\bar{1}10)$ mais le vecteur réseau est parallèle à la direction cristallographique [110] (figure III-4). Dans les cristaux photoréfractifs de la classe de symétrie 23 comme BSO et BGO, les ondes propres sont circulaires et on peut montrer que r_{eff} est nul sauf si $\hat{e}_1$ et $\hat{e}_2$ sont orthogonaux. Dans ce cas, il ne peut pas y avoir de couplage cohérent d'onde entre deux ondes interférant avec la même polarisation.

Pour les cristaux de la classe de symétrie $(\bar{4}3m)$ les polarisations propres sont rectilignes et le résultat est tout à fait différent. Ayant $\hat{k}_R = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{i} + \hat{j})$ on calcule :

$$\overset{R}{\approx} \hat{k}_R = \frac{r_{41}}{\sqrt{2}} (\hat{j} \otimes \hat{k} + \hat{k} \otimes \hat{j} + \hat{i} \otimes \hat{k} + \hat{k} \otimes \hat{i}) \qquad \text{(III.21)}$$

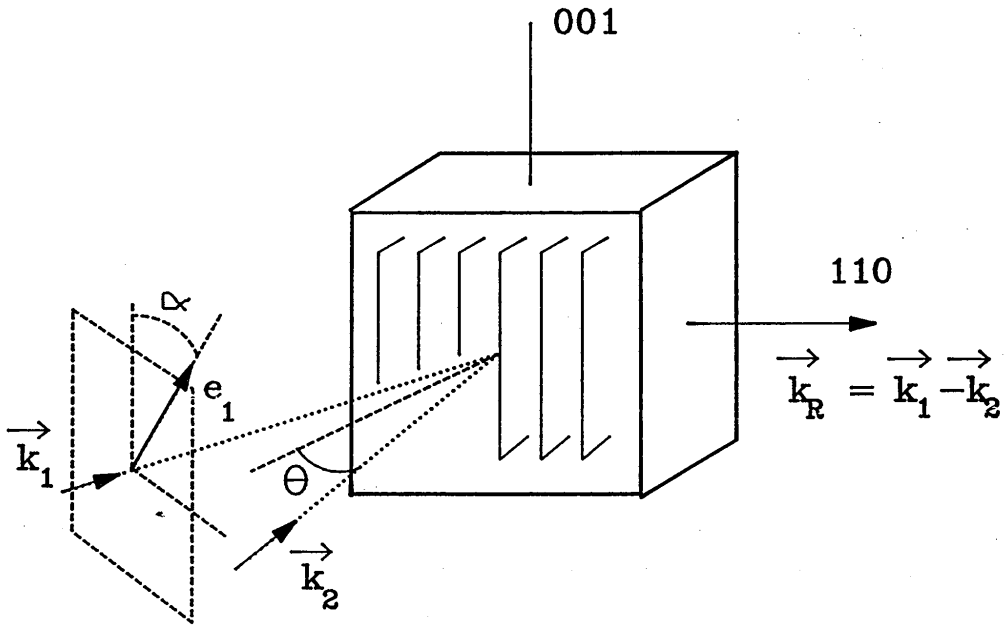


Figure III-4 : Configuration k_r // [110] .

En utilisant les mêmes notations que précédemment nous avons :

$$r_{eff} = n^4 r_{41} \sin(\alpha_1 + \alpha_2) \cos\theta \qquad \text{(III.22)}$$

Ce qui, dans le cas où $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$, devient :

$$r_{eff} = n^4 r_{41} \sin(2\alpha) \cos\theta \qquad \text{(III.23)}$$

Contrairement à la configuration expérimentale précédente, lorsque les polarisations sont suivant l'axe [001] ($\alpha = 0$), r_{eff}, donc Γ est nul. Il n'y a pas de couplage cohérent d'onde.

Le transfert d'énergie est maximum lorsque les polarisations sont à 45° de l'axe [001] ($\alpha = 45°$), le module du gain de couplage par unité de longueur d'interaction est maximum et s'écrit :

$$|\Gamma| = \frac{2\pi}{\lambda} n^3 r_{41} E_{sc}(t) \qquad \text{(III.24)}$$

Lorsque θ n'est pas trop important, cette valeur est identique à celle obtenue dans la configuration expérimentale $\vec{k}_R$ // [001] lorsque $\alpha = 0$. Si on bascule de 90° les polarisations des ondes ($\alpha = -45°$), le coefficient électro-optique effectif change de signe. Il en est de même du gain de couplage par unité de longueur d'interaction et le transfert d'énergie change de sens. Ce résultat est identique à celui obtenu lorsqu'on effectuait une rotation du cristal de 180° autour de la direction [110] dans la configuration expérimentale précédente, $\vec{k}_R$ // [001].

Ici une rotation de 180° autour de l'axe [001], changera l'orientation du cristal par rapport à $\vec{k}_R$ mais aussi par rapport aux directions des polarisations des ondes. Par suite, r_{eff} donc Γ garderont le même signe.

Dans le chapitre suivant, nous présenterons la confirmation expérimentale de ces résultats en étudiant le transfert d'énergie par mélange cohérent de deux impulsions lumineuses nanosecondes.

IV - ETUDE EXPERIMENTALE DU TRANSFERT D'ENERGIE EN REGIME NANOSECONDE

IV.1. Montage expérimental

Le montage experimental est représenté figure IV-1. La source laser est un laser Nd-YAG émettant des impulsions de largeur à mi-hauteur d'environ 5 ns. Il est constitué d'un oscillateur et de deux barreaux amplificateurs. La longueur d'onde d'émission est λ = 1,06 μm. La polarisation du laser est, à sa sortie, circulaire et nous pouvons ajuster l'énergie de chaque impulsion en utilisant une lame quart d'onde associée à un prisme de Glan.

Dans nos expériences la densité d'énergie au centre du cristal variera de 0,3 à 6 mJ/cm^2. La polarisation à la sortie du polariseur est perpendiculaire au plan de la figure. Une lame séparatrice S_1 sépare le faisceau en deux, donnant naissance à un intense faisceau pompe et à un faible faisceau sonde (2 % du pompe). Ces deux faisceaux font un angle $2\theta_e = 60°$, ce qui correspond à un demi-angle à l'intérieur du cristal $\theta \simeq 8°$, créant un réseau d'illumination de pas Λ = 1 μm.

Les polarisations des faisceaux pompe et sonde sont contrôlées grâce aux lames demi-onde. Sur le faisceau sonde, nous avons réalisé, à l'aide d'un prisme, une ligne à retard optique permettant d'équilibrer les chemins optiques des deux faisceaux qui interfèrent dans le cristal. En remplaçant le cristal par une lame séparatrice identique à S1, nous avons construit un interféromètre qui nous a permis de mesurer la longueur de cohérence du laser. Celle-ci est d'environ 3 cm. Nous avons réglé la ligne à

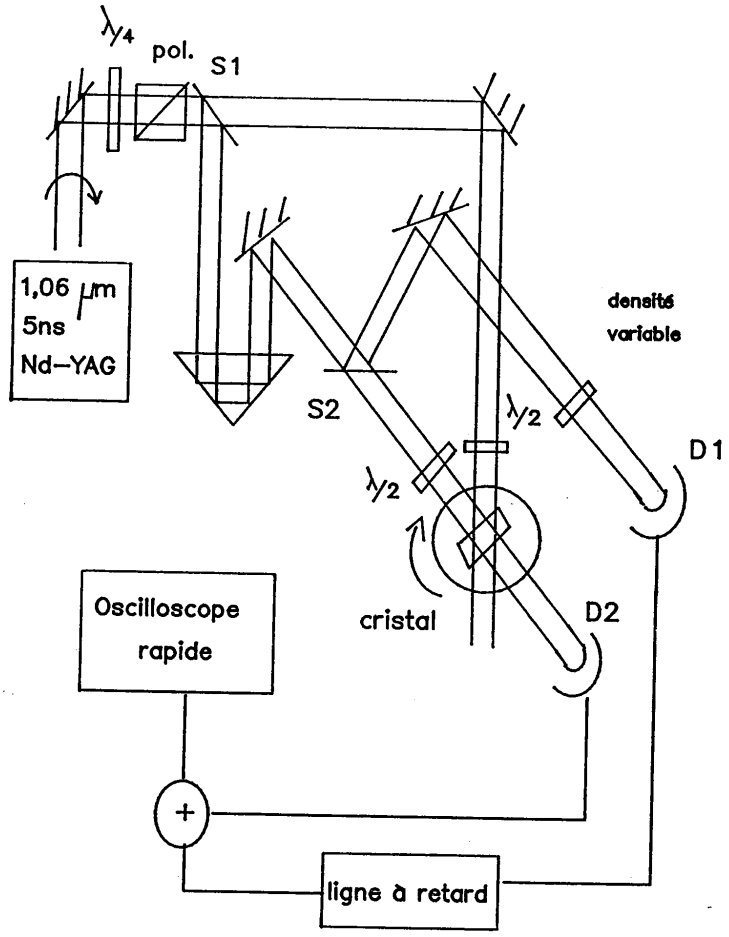


Figure IV-1 : Montage expérimental pour l'expérience de mélange à deux ondes en régime nanoseconde .

retard optique de manière à avoir le maximum de contraste des franges d'interférence ainsi créées, ce qui correspond à l'égalité des chemins optiques des faisceaux sonde et pompe.

Pour évaluer le transfert d'énergie photoréfractif, nous avons mesuré le gain relatif du couplage G_{pr} (relation III.15).

Pour ne pas être trop gêné par les fortes variations de l'énergie de l'impulsion d'un tir à l'autre (la cadence de tir est de 10 Hz) nous avons extrait du faisceau sonde, par une lame séparatrice S_2, un faisceau de référence qui ne traverse pas le cristal. Les deux faisceaux sonde et référence sont receuillis par des photodiodes rapides au silicium, de temps de montée inférieur à 1ns. Le signal référence obtenu est retardé électroniquement, puis il est additionné au signal sonde de manière à visualiser les deux impulsions sur un oscilloscope rapide, de 150MHz de bande passante.

La mesure du gain de couplage se fait alors en deux temps. Tout d'abord égalisation des signaux sonde et référence (en utilisant une densité variable sur le faisceau référence) le faisceau pompe étant coupé. Puis on mesure le rapport des valeurs maximales des deux signaux en présence du faisceau pompe (voir figure IV-2). On s'affranchit ainsi à peu près des fluctuations d'énergie du laser. La figure IV-2 montre l'amplification et l'atténuation du signal sonde en présence du faisceau pompe pour le cristal d'InP:Fe en configuration où $\vec{k}_R$ // [001].

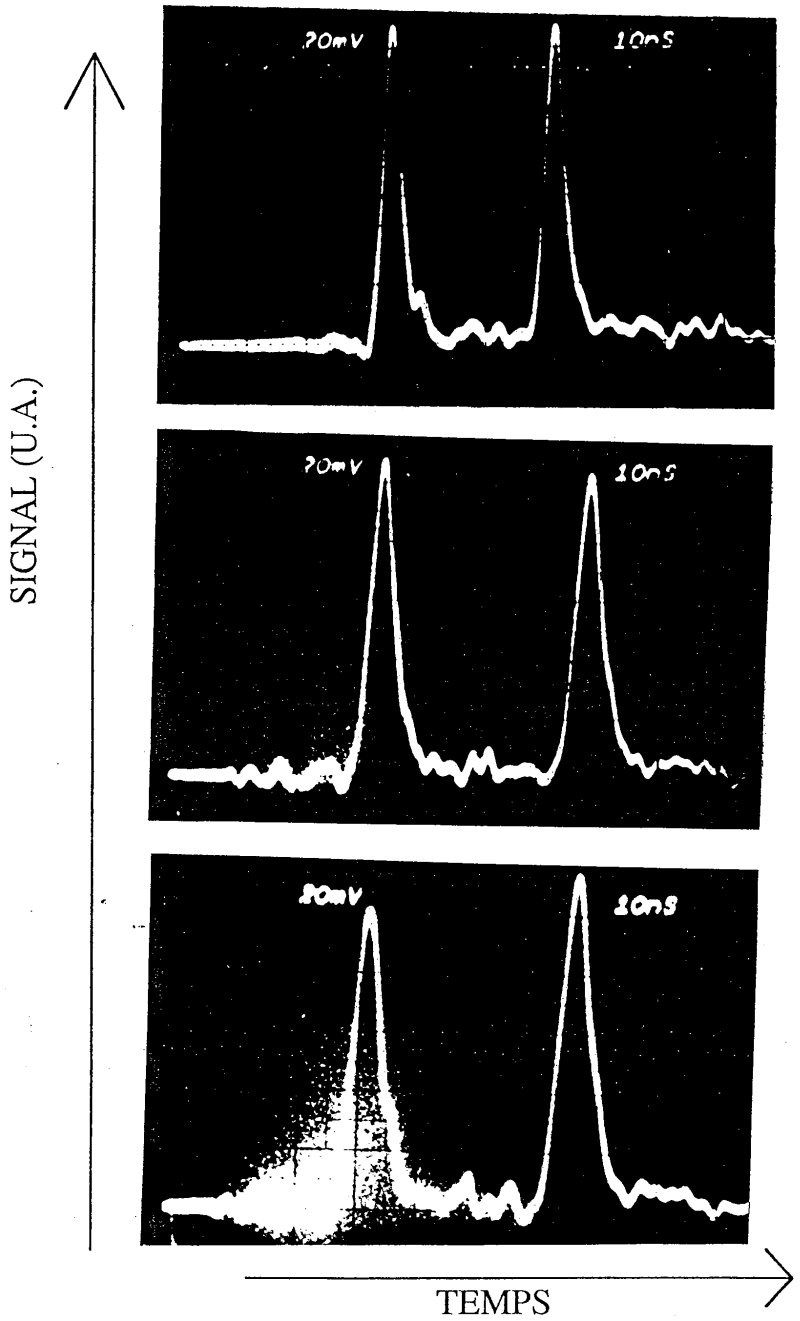


Figure IV-2 : Principe de mesure du gain relatif de couplage
(de haut en bas)
a)égalisation des signaux sonde et référence (pompe coupé)
b)atténuation du signal sonde(à droite) en présence du pompe
c)amplification du signal sonde en présence du pompe

IV.2. Résultats expérimentaux GaAs:Cr

L'étude du transfert d'énergie en régime nanoseconde, dans le cristal de GaAs:Cr, nous a permis de démontrer expérimentalement les symétries de l'effet photoréfractif précédemment décrites. Nous avons aussi étudié l'évolution du gain de couplage en fonction de la densité d'énergie lumineuse.

Ces expériences confirment la rapidité de l'effet photoréfractif dans ce matériau. De plus, le transfert d'énergie photoréfractif a été obtenu dans la configuration où $\vec{k}_R$ // [110], ce qui jusqu'alors n'avait pas été étudié.

a) Configuration $\vec{k}_R$ // [001]

Le gain relatif de couplage mesuré dans cette configuration, est représenté, figure IV.3, en fonction de la densité d'énergie E au centre du cristal. L'orientation <1> correspond à une amplification de l'onde sonde en présence de l'onde pompe. Une rotation de 180° du cristal autour de la direction [110] (orientation <2>) renverse le sens du transfert d'énergie (atténuation de l'onde sonde). Les polarisations des deux ondes sont choisies parallèles à la direction [110] afin que le transfert d'énergie soit maximum. Les résultats de la figure IV.3 montrent que $G_{pr_1} + G_{pr_2} \simeq 0$ et que ce transfert d'énergie est dû uniquement à l'effet photoréfractif.

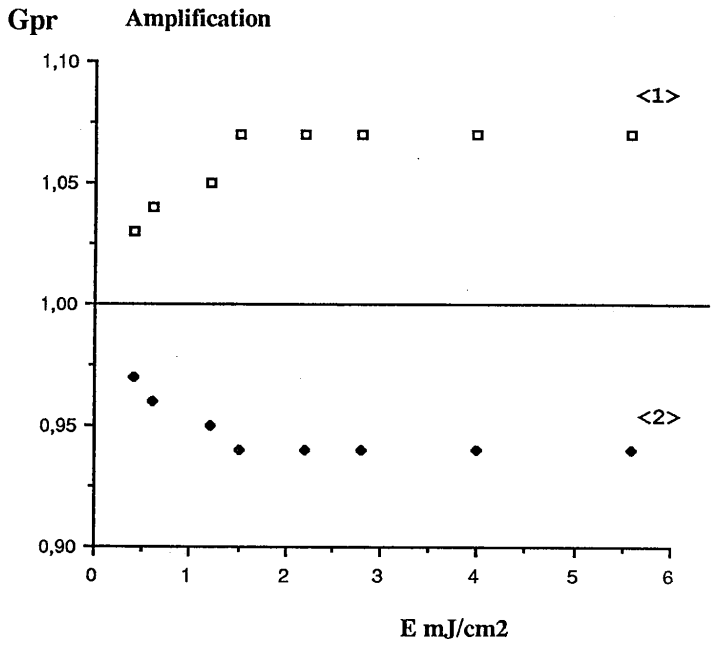


Figure IV-3 : Gain relatif de couplage en fonction de la densité d'énergie au centre du cristal de GaAs:Cr configuration $\overrightarrow{kr}$ // [001] .

b) Configuration $\vec{k}_R$ // [110]

Le gain relatif de couplage est représenté, figure IV.4, en fonction de la densité d'énergie E au centre du cristal. Les polarisations des deux ondes sont inclinées d'un angle $\alpha = + 45°$ par rapport à la direction [001]. L'orientation <1> correspond à une amplification de l'onde sonde. Après un basculement de 90° des polarisations ($\alpha = - 45°$), il y a atténuation de l'onde sonde (orientation <2>).

Nous avons toujours, pour ces polarisations, un transfert d'énergie maximum et $G_{pr_1} + G_{pr_2} \simeq 0$. Comme dans la configuration précédente, les symétries de l'effet photoréfractif sont bien vérifiées. De plus, les valeurs absolues du gain relatif de couplage obtenu dans les deux configurations sont identiques (figure IV-5). Ceci confirme notre analyse théorique. Nous avons vérifié d'une part que lorsque les polarisations sont parallèles à la direction [110] ($\alpha = 0$) il n'y a pas de transfert d'énergie et d'autre part que, lorsque $\alpha = 45°$ correspondant à un transfert d'énergie maximum, une rotation de 180° autour de l'axe cristallographique [001] ne change pas le sens du transfert d'énergie.

Les résultats expérimentaux montrent que contrairement au régime quasi-continu (laser cw de faible puissance) le gain photoréfractif varie avec l'énergie. Pour des densités d'énergies supérieures à 1,5 mJ/cm^2, un régime stationnaire est atteint. Dans ce cas le gain relatif de couplage est $G_{pr} \simeq 1,07$ ce qui correspond à un gain de couplage par unité de longueur d'interaction $\Gamma \simeq 0,17\ cm^{-1}$ (la longueur d'interaction est égale à l'épaisseur du cristal, soit $\ell = 0,4$ cm).

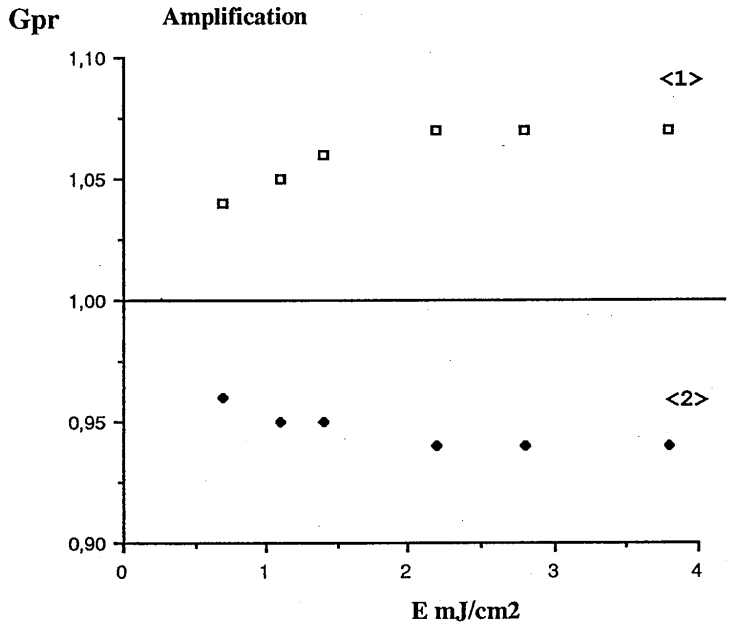


Figure IV-4 : Gain relatif de couplage en fonction de la densité d'énergie au centre du cristal de GaAs:Cr configuration $\vec{kr}$ // [110] .

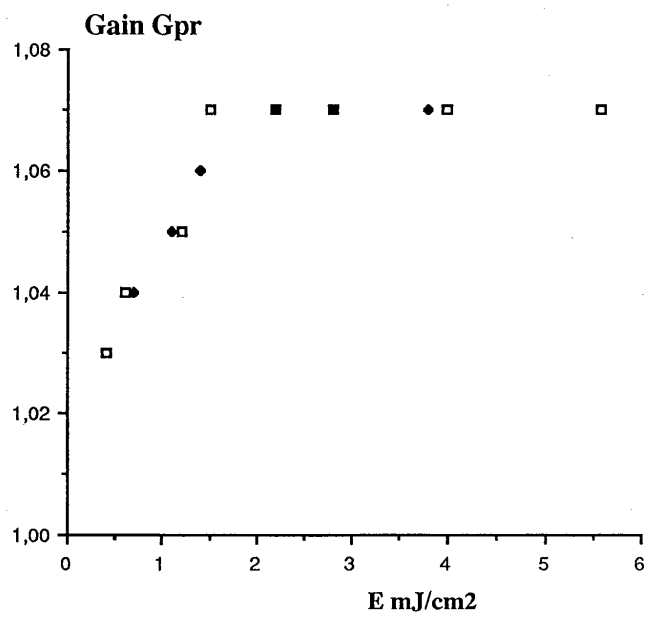


Figure IV-5: Gain relatif de couplage en fonction de la densité d'énergie au centre du cristal de GaAs:Cr cas de l'amplification 1°) configuration $\vec{kr}$ // [001] ( )
2°) configuration $\vec{kr}$ // [110] (◊)

Une explication éventuelle de cette saturation serait la limitation de la densité de centres photoexcitables. Nous avons étudié l'évolution de la photoconductivité en fonction de l'énergie optique (figure II.25, chapitre II, paragraphe 6.b) en régime nanoseconde qui montre une saturation pour des énergies similaires. Cependant, nous ne connaissons que trop peu de choses sur ce cristal pour conclure.

IV.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX InP:Fe

a) Courbe de transfert d'énergie

Nous avons conduit les mêmes expériences dans le cristal d'InP:Fe dans la configuration $\vec{k}_R$ // [001]. Les polarisations des ondes sonde et pompe sont suivant la direction [001]. L'évolution du gain relatif de transfert d'énergie en fonction de la densité d'énergie $\mathcal{E}$ au centre du cristal est représentée figure IV-6. Les orientations <1> et <2> correspondent aux deux orientations du cristal précédemment décrites. Contrairement à ce que nous avons observé dans le cristal de GaAs:Cr, le transfert d'énergie ne suit pas les symétries de l'effet photoréfractif. Ceci indique qu'un autre mécanisme non-linéaire se superpose à cet effet.

Ce mécanisme correspond quelque soit l'orientation du cristal, à une augmentation de son absorption en présence de l'onde pompe. Ce phénomène, que nous attribuons à une absorption non linéaire, a pu être séparé de l'effet photoréfractif en utlisant les symétries particulières de ce dernier (décrites au chapitre III, paragraphe 3).

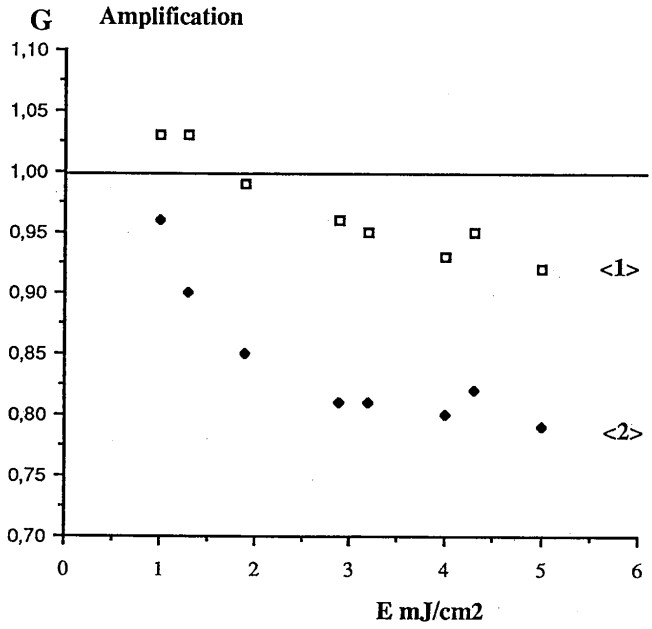


Figure IV-6 : Transfert d'énergie ($\vec{kr}$ // [001]) dans le cristal d'InP:Fe ; comportement non symétrique .

b) Mise en évidence de l'absorption non linéaire

Nous nous sommes placés dans l'approximation des faibles gains, qui correspond à nos résultats expérimentaux (faibles transferts d'énergie). Dans ce cas le gain relatif de transfert d'énergie peut être écrit sous la forme :

$$G_{1.2} = \frac{I_{sonde}\,(\text{avec pompe})}{I_{sonde}\,(\text{sans pompe})} \simeq 1 + \Gamma_{1.2}\ell - \Delta a\ell \qquad \text{(IV.1)}$$

Δa représente la contribution non photoréfractive du transfert d'énergie qui produit toujours une atténuation de l'onde sonde en présence de l'onde pompe.

$\Gamma_{1.2}$ représente le gain de couplage photoréfractif par unité de longueur d'interaction, pour les orientations <1> et <2> respectivement. D'après les symétries de l'effet photoréfractif, une rotation de 180° du cristal autour de la direction [110] (orientation <1> changée en <2>) inverse le signe de Γ. Nous avons donc $\Gamma_1 = -\Gamma_2$ et par suite, nous pouvons écrire :

$$\begin{cases} \Gamma\ell = \dfrac{1}{2}\,(G_1 - G_2) \\ \Delta a\ell = 1 - \dfrac{1}{2}\,(G_1 + G_2) \end{cases} \qquad \text{(IV.2)}$$

Par conséquent la contribution non photoréfractive au transfert d'énergie ($G_{npr} = 1 - \Delta a\ell$) peut être déduite des mesures du gain relatif de transfert d'énergie. Le résultat est illustré figure (IV-7) (losanges noirs).

Nous avons regardé si cette absorption non linéaire était due à un réseau d'absorption. Pour cela nous avons mesuré le gain

relatif de transfert d'énergie $G_{1.2}$ pour les deux orientations <1> et <2>, lorsque les polarisations des ondes sonde et pompe sont orthogonales. Ainsi aucun réseau d'intensité ne peut être inscrit et l'effet photoréfractif ne peut pas exister. Nous avons constaté que l'atténuation du faisceau sonde reste la même quelque soit l'orientation du cristal et les valeurs obtenues (carrés blancs figure IV-7) sont identiques à celles mesurées précédemment (G_{npr} losanges noirs). Ce phénomène d'absorption non linéaire n'est donc pas lié à l'existence d'un réseau d'absorption. Une étude détaillée de ce phénomène sera présentée au chapitre V.

c) Gain relatif de couplage, configuration $\vec{k}_R$ // [001]

De même, nous pouvons extraire l'expression du gain relatif de couplage photoréfractif $G_{pr_{1.2}} = 1 + \Gamma_{1.2}\ell$. Le résultat est représenté figure IV-8. Les valeurs du gain G_{pr} ainsi que son évolution avec l'énergie sont similaires à celles obtenues pour le cristal GaAs:Cr. Comme pour ce cristal il existe une saturation du gain G_{pr} pour des énergies supérieures à 1,5 mJ/cm^2. Nous avons étudié la photoconductivité en régime nanoseconde dans le cristal d'InP:Fe (figure II-19 du chapitre II, paragraphe 6.b). Sa variation est linéaire en fonction de l'énergie. Il n'existe donc pas de limitation de la densité de centres photoexcitables excluant cette hypothèse comme origine de cette saturation. Au chapitre VI, nous présenterons une modélisation de l'effet photoréfractif dans InP:Fe en régime nanoseconde qui permettra de décrire ce comportement expérimental.

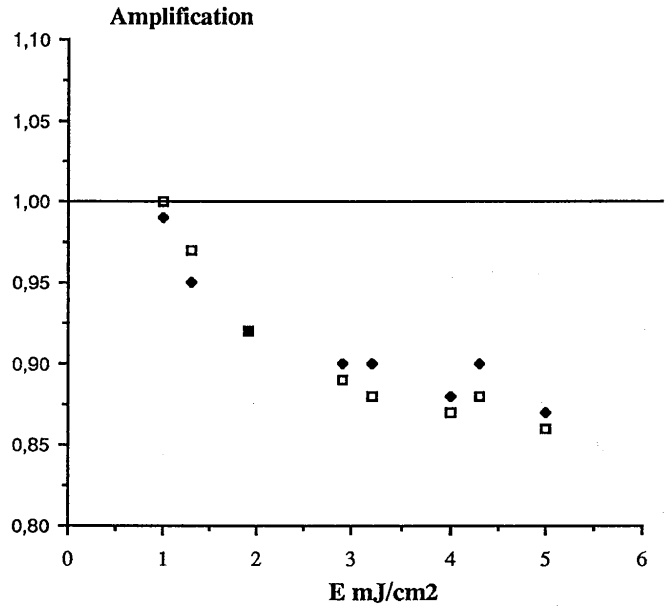


Figure IV-7 : Absorption induite dans le cristal d'InP:Fe

(◊) déduite de la mesure du gain relatif de transfert d'énergie

(◆) avec des polarisations orthogonales

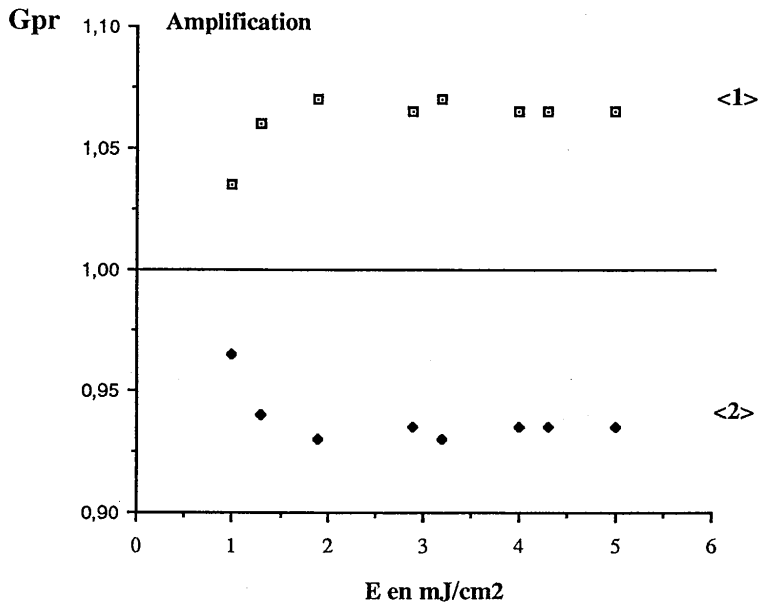


Figure IV-8 : Cristal d'InP:Fe

Gain relatif de couplage ($\overrightarrow{kr}$ // [001]) déduit du transfert d'énergie en utilisant les symétries de l'effet photoréfractif .

IV.4. CONCLUSION

Nous avons mis en évidence un couplage d'énergie photoréfractif, en régime nanoseconde, dans les cristaux de GaAs:Cr et InP:Fe [50] . Dans ce dernier a été aussi observé un autre phénomène de transfert d'énergie : une absorption non linéaire ou absorption induite optiquement.

Dans le cristal de GaAs:Cr, deux configurations expérimentales ont été étudiées $\left(\vec{k}_R // [001] \text{ et } \vec{k}_R // [110]\right)$. Le transfert d'énergie obtenu vérifie bien les symétries de l'effet photoréfractif dont l'étude théorique a été développée au chapitre III.

Dans le cristal d'InP:Fe, pour la configuration expérimentale étudiée $\left(\vec{k}_R // [001]\right)$, ces mêmes symétries nous ont permis d'isoler l'effet photoréfractif d'un autre mécanisme de transfert d'énergie non linéaire : l'absorption induite optiquement. La modélisation de l'effet photoréfractif dans ce matériau sera effectuée au chapitre VI. L'étude de la cinétique d'établissement et relaxation de l'absorption induite ainsi que sa modélisation sera développée au chapitre V.

De la confrontation des résultats des modélisations et des expériences nous estimerons certains paramètres importants de ce cristal.

V - ETUDE DE L'ABSORPTION NON LINEAIRE DANS LE CRISTAL D'InP:Fe

V.1. INTRODUCTION

Lors de l'expérience de couplage d'onde en régime nanoseconde dans le cristal d'InP:Fe, décrite au chapitre IV, paragraphe b), nous avons mis en évidence un phéomène non linéaire d'origine non photoréfractive. Ce phénomène correspond à une augmentation de l'absorption du cristal en présence d'un faisceau intense.

Dans ce chapitre, nous présentons d'une part l'étude expérimentale de cette absorption non linéaire ou absorption induite optiquement et d'autre part un modèle d'excitation et de redistribution de charge dans les pièges profonds qui permet d'expliquer ce phénomène [87]. Pour l'étude expérimentale, nous avons regardé la transmission du cristal. Celle-ci a été testée par un faisceau laser continu (sonde), pendant et après une impulsion lumineuse nanoseconde (pompe). Cette étude montre clairement que l'absorption induite optiquement existe pendant l'impulsion et même plusieurs centaines de nanosecondes après. Son amplitude et ses temps de relaxation dépendent de la densité d'énergie de l'impulsion.

Nous avons conduit des simulations numériques à partir d'un modèle déduit du diagramme d'énergie des niveaux du dopant fer dans le cristal d'InP:Fe [64] . La grandeur et l'évolution temporelle de l'absorption non linéaire peuvent être expliquées par la redistribution des populations électroniques dans les différents niveaux du fer.

La comparaison des résultats expérimentaux et des simulations, nous a permis de déterminer quelques paramètres de ce cristal. Citons parmi ceux-ci, la valeur de la section efficace de photoionisation des électrons à partir du niveau excité $^5T_2(Fe^{2+*})$.

Comme nous le montrerons au chapitre VI, le modèle présenté et les paramètres du matériau ainsi trouvés, permettent de rendre compte du transfert d'énergie photoréfractif en régime nanoseconde et de sa dépendance selon l'énergie.

V.2. RESULTATS EXPERIMENTAUX

a) Montage expérimental

Nous avons étudié la variation de la transmission d'un faisceau laser continu (sonde à λ = 1,06 μm ou λ = 1,3 μm) en présence d'un faisceau impulsionnel (pompe à λ = 1,06 μm). Le montage expérimental est décrit figure V-1.

Le faisceau pompe est issu d'un laser Nd-YAG ; la largeur à mi-hauteur des impulsions est T_L = 7,5 ns et le taux de répétition est 50 Hz. L'impulsion lumineuse possède une densité d'énergie que l'on fera varier entre 0,05 mJ/cm^2 et 7 mJ/cm^2. L'impulsion est détectée par une cellule rapide D_2 (de temps de montée 50 ps) et visualisée sur un oscilloscope rapide (500 MHz). On observe (figure II.20, page 69) plusieurs fluctuations rapides (0,5 ns) et une queue assez longue (4 % de l'intensité crête après 20 ns, 1 % après 100 ns et 0,3 % après 1 μs).

Le faisceau sonde est issu d'un laser continu Nd-YAG pompé par diode laser. Il s'agit soit d'un laser émettant une radiation de longueur d'onde 1,06 μm avec une puissance maximale de 44 mW soit d'un laser émettant une radiation de longueur d'onde 1,30 μm avec une puissance maximale de 17 mW. Le diamètre du faisceau sonde sur le cristal est de 2 mm. Le signal sonde transmis par le cristal est recueilli par une photodiode rapide au silicium (D1) et est amplifié par deux amplificateurs de bande passante 150M Hz avant d'être envoyé sur l'oscilloscope rapide associé au système d'acquisition.

Les polarisations des faisceaux sonde et pompe sont croisées.

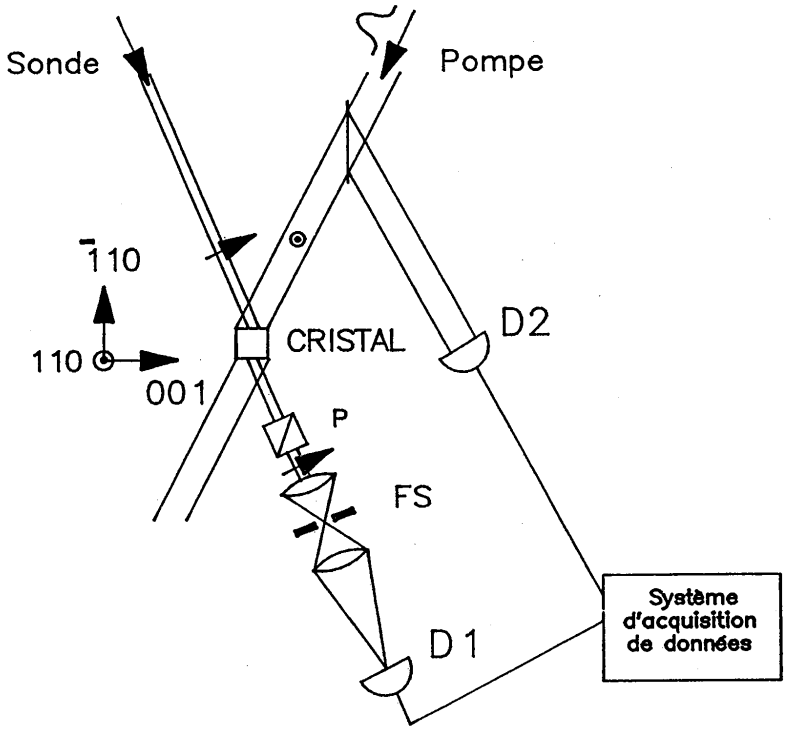


Figure V-1 : Montage expérimental pour l'étude de l'absorption induite dans le cristal d'InP:Fe .

Un prisme de Glan (polariseur P) et un filtre spatial (F.S.) sont utilisés pour réduire la lumière diffusée du faisceau pompe recueillie par le détecteur D1. Le système d'acquisition de données est constitué de l'oscilloscope rapide couplé avec une caméra à digitaliser. L'oscilloscope travaille en mode de couplage AC (pour supprimer la composante continue du signal sonde) et se déclenche sur un signal de référence issu de la photodiode D2 (sur laquelle est recueillie une partie du faisceau pompe). Nous faisons des moyennes d'acquisitions sur plus de 100 impulsions à l'aide d'un ordinateur de type PC.

Pour évaluer l'absorption induite, nous avons mesuré le coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a(t)$ défini par :

$$\frac{I + \Delta I(t)}{I} = \exp\ (-\ \Delta a(t)\ \ell) \qquad (V.1)$$

ℓ étant l'épaisseur du cristal, I et I + Δ I(t) étant respectivement la densité de puissance du faisceau continu sonde après le cristal en l'absence et en présence du faisceau pompe.

Comme nous supprimons la composante continue du signal sonde (mode de couplage AC), nous avons accès directement au rapport $\frac{\Delta I(t)}{I}$, changement relatif de la densité de puissance du faisceau pompe.

b) <u>Absorption non linéaire à 1,06 µm</u>

L'amplitude et la dépendance temporelle de l'absorption non linéaire, lorsque les faisceaux sonde et pompe sont à la longueur d'onde 1,06 µm, ont été mesurées en fonction de la densité d'énergie E de la pompe mesurée au centre du cristal.

Un premier résultat est représenté figure V.2 : pour différentes densités d'énergie E, nous avons tracé le rapport $\frac{\Delta I(t)}{I}$, qui est égal (lorsque l'absorption induite est faible), au produit $-\Delta a(t).\ell$. Ce changement relatif de densité de puissance du faisceau sonde en présence du faisceau pompe, $\frac{\Delta I(t)}{I}$, est dans ce cas proportionnel au coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a(t)$. Sur cette figure, nous observons que pour une énergie donnée, l'absorption induite croît pendant l'impulsion puis, décroît avec deux constantes de temps. La rapide est notée τ_r^{abs}, l'autre plus lente est notée τ_ℓ^{abs} . Il est logique, dans une première approche, de considérer cette absorption non linéaire, comme la superposition de deux fonctions exponentielles notées respectivement composante lente et rapide.

La mesure de τ_ℓ^{abs}, constante de temps de décroissance lente est rendue difficile à cause de la faiblesse du signal (0,8 % de la composante continue du signal) et des fluctuations du laser continu (1 à 5 % du signal) qui oscille à une fréquence d'environ 200 kHz. Cependant la moyenne sur de nombreuses mesures, nous a permis d'obtenir un bon ordre de grandeur de la constante de temps lente : $\tau_\ell^{abs} = 2 \pm 0{,}5\ \mu s$. Cette valeur ne varie pas de façon significative avec l'énergie.

Nous avons déduit ensuite les valeurs de l'amplitude maximale Δa_{max} du coefficient d'absorption non linéaire et celle Δa_ℓ de sa composante lente (toujours en considérant une relaxation bi-exponentielle de l'absorption non linéaire). L'amplitude de la composante lente Δa_ℓ a été mesurée 500 ns après le sommet de l'impulsion puis extrapolée de façon linéaire à t = 0.

La figure V.3 représente les valeurs de Δa_ℓ(+++) et Δa_{max}(■■■) en fonction de la densité d'énergie E au centre du cristal.

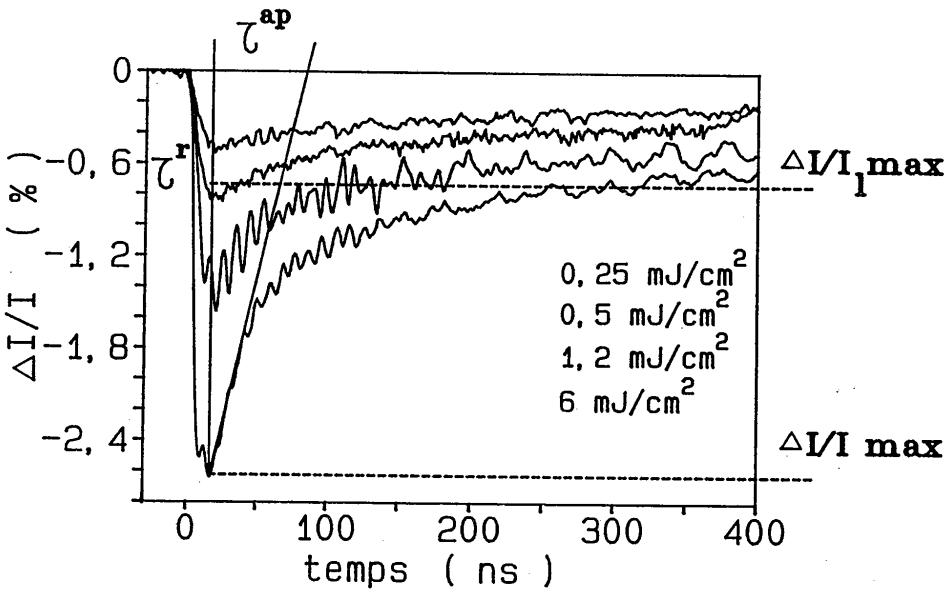


Figure V-2 : Signal d'absorption induite : évolution temporelle de l'intensité relative $\Delta I(t) / I$, pour différentes valeurs de la densité d' énergie au centre du cristal . La sonde est à 1,06µm .

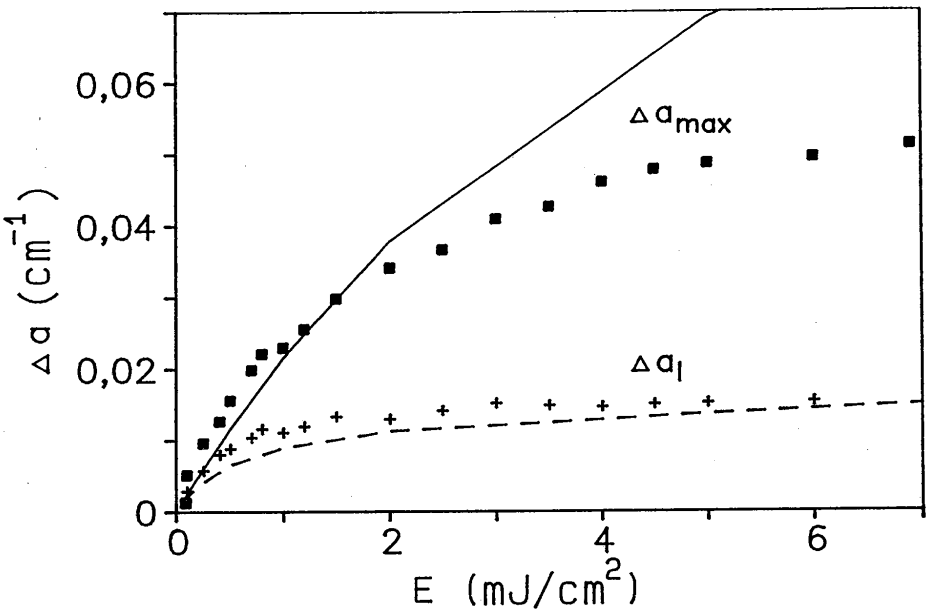


Figure V-3 : Amplitude du maximum du coefficient d'absorption non linéaire Δa_{max} et de sa composante lente Δa_{l} en fonction de la densité d'énergie .
(les lignes pleines ou pointillées sont les résultats de nos simulations)

Le coefficient d'absorption linéaire à la longueur d'onde 1,06 μm a été précédement mesuré (voir chapitre II, paragraphe 4); sa valeur est $a^{1,06} = 1,95 \pm 0,05\ cm^{-1}$. Par conséquent la variation relative d'absorption maximale observée est : $\frac{\Delta a_{max}}{a^{1,06}} = 2,6\ \%$ pour une densité d'énergie $E_c = 6\ mJ/cm^2$.

La constante de temps rapide de relaxation τ_r^{abs} est déduite (figure V.2) de la mesure de celle apparente τ^{ap}, évaluée au départ de la décroissance de l'absorption induite, par la relation :

$$\tau_r^{abs} = \tau^{ap} \frac{\Delta I_{max} - \Delta I_{\ell\ max}}{\Delta I_{max}} \qquad (V.2)$$

où ΔI_{max} représente la valeur maximale de $\Delta I(t)$ et $\Delta I_{\ell\ max}$ celle de sa composante lente précédemment déterminée. Nous avons représenté figure V-4, la variation de la constante de temps rapide τ_r^{abs} (■■) en fonction de la densité d'énergie E. τ_r^{abs} décroit tout d'abord lorsque la densité d'énergie augmente (basses énergies), puis demeure à peu près constante pour des densités d'énergies supérieures à 2 mJ/cm^2 ; sa valeur est alors environ 40 ns.

Nous avons aussi observé que l'absorption induite s'établit avec un léger retard Δt par rapport à l'impulsion lumineuse. Ce retard a été déterminé en comparant la montée du signal d'absorption induite avec celle d'un signal produit par la diffusion du faisceau pompe sur une épingle métallique qui est placée 1 mm devant le cristal. Δt est défini comme la différence des temps pour lesquels chacun des signaux atteint la moitié de sa valeur maximale (valeur à mi-hauteur). Des moyennes sur 100 impulsions sont effectuées. Les deux signaux sont recueillis sur le même détecteur, puis regardés sur le même canal de l'oscilloscope. Pour une densité d'énergie au centre du cristal du

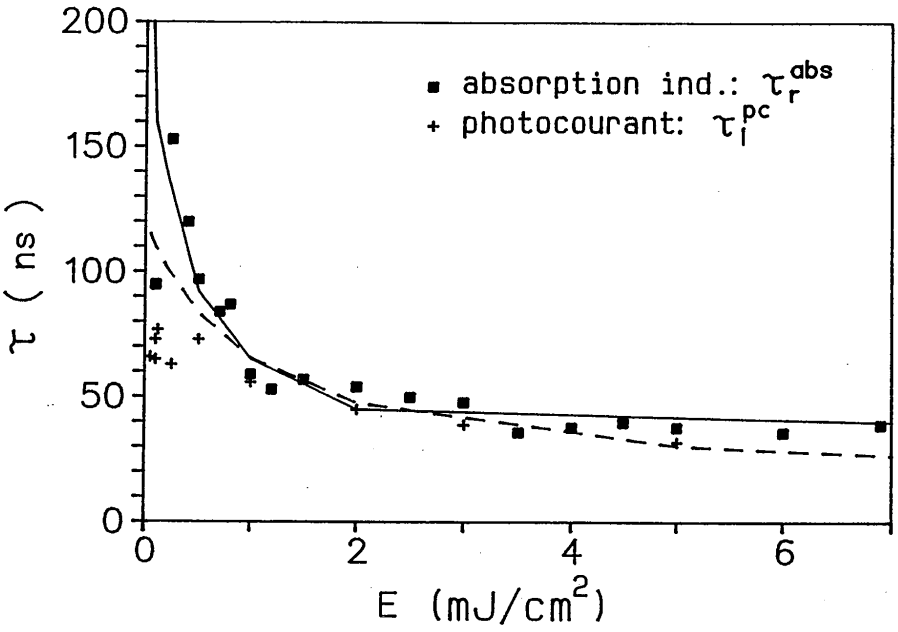


Figure V-4 : Evolution de la constante de temps rapide de l'absorption induite et de la constante de temps de décroissance lente du photocourant (sonde à 1,06 μm) (les lignes pleines ou pointillées sont les résultats de nos simulations) .

faisceau pompe, E = 3,5 mJ/cm^2, le retard vaut $\Delta t = 1,5 \pm 0,2$ ns. Ce retard décroît lorsque l'énergie augmente (figure V-5, ■■).

Finalement, nous avons regardé l'influence des polarisations des ondes pompe et sonde sur l'absorption induite. Pour des polarisations croisées cela n'a aucune influence. Il en est vraisemblablement de même pour des polarisations parallèles. Cependant, ces mesures sont moins précises, car le laser continu (sonde) est momentanément déstabilisé par la diffusion du laser impulsionnel (pompe).

c) Absorption non linéaire à 1,30 μm

Nous disposons pour ces mesures d'un laser continu, sonde à la longueur d'onde 1,30 μm. L'absorption non linéaire est dans ce cas environ 7 fois plus importante qu'à la longueur d'onde 1,06μm. ($\Delta a^{1,30}_{max} = 0,35$ cm^{-1} pour une densité d'énergie du faisceau pompe au centre du cristal E = 5 mJ/cm^2). Les variations, en fonction de la densité d'énergie E , du maximum du coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a^{1,30}_{max}$ (■■) et de la constante de temps apparente $\tau^{ap}_{1,30}$ (++) mesurée au début de la relaxation sont représentées, figure V.6. Comme le coefficient d'absorption linéaire à 1,30 μm (voir chapitre II paragraphe 4)) est $a^{1,30} = 0,67$ cm^{-1}, la variation relative d'absorption maximale observée est $\frac{\Delta a^{1,30}_{max}}{a^{1,30}} \simeq 50$ % pour une densité d'énergie E = 5 mJ/cm^2.

Nous observons une évolution temporelle de l'absorption non linéaire à peu près semblable à celle déterminée à la longueur d'onde 1,06 μm ; il existe aussi deux constantes de temps de décroissance. La constante de temps lente est légèrement plus cour-

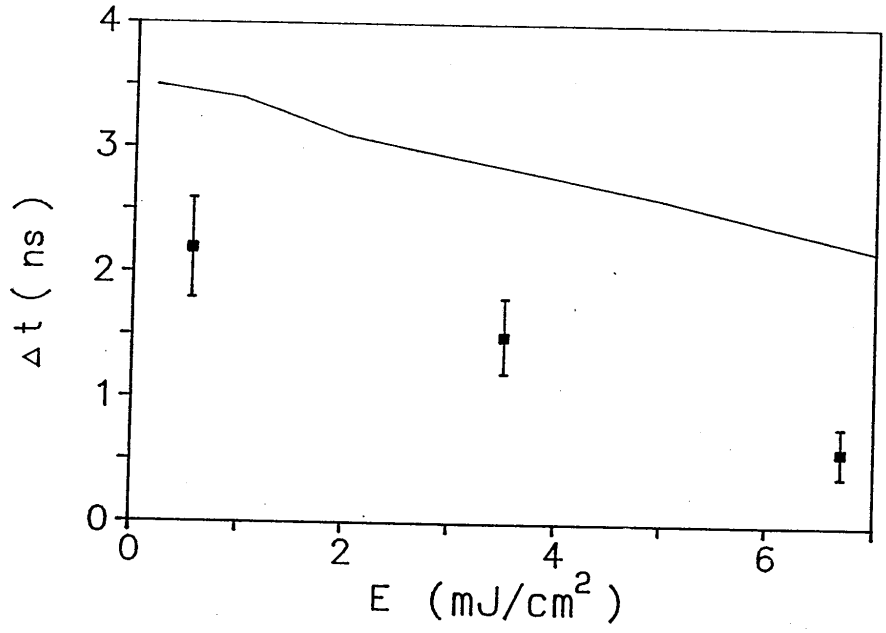


Figure V-5: Evolution en fonction de la densité d'énergie du retard Δt entre la montée du signal d'absorption induite et l'impulsion lumineuse (sonde à 1,06μm) la ligne pleine représente le résultat de nos simulations .

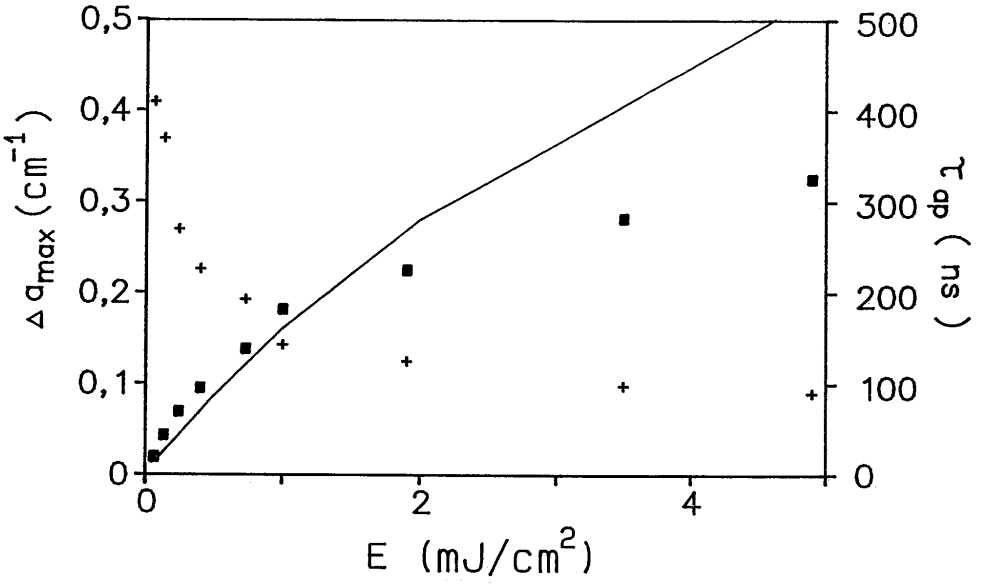


Figure V-6 : Dépendance selon la densité d'énergie du maximum du coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a^{1,30}_{max}$ (■) et de la constante de temps apparente (+) τ_{ap} (sonde à 1,30µm) la ligne pleine représente la simulation de $\Delta a._{max}$.

te, $\tau_{\ell}^{abs\,1,30} \simeq 500$ ns, tandis que la constante de temps apparente $\tau_{ap}^{1,30}$ apparait plus longue ($\tau_{ap}^{1,30} = 90$ ns pour $E \geqslant 2$ mJ/cm^2). Par conséquent, comme ces deux valeurs sont très proches, une décomposition simple en deux composantes lente et rapide n'est plus possible.

d) Photoconduction

Au chapitre II paragraphe 6) nous avons décrit l'étude de la photoconduction dans le cristal d'InP:Fe. Les principales conclusions sont :

α) en régime continu

La variation de la photoconductivité en fonction de la puissance optique est linéaire et s'écrit :

à 1,06 μm $\quad \sigma_{1,06} = (1,2 + 123\ I)\ 10^{-8}\ \Omega^{-1}\,cm^{-1}$ (II.5)

à 1,30 μm $\quad \sigma_{1,3} = (1,2 + 16\ I)\ 10^{-8}\ \Omega^{-1}\,cm^{-1}$ (II.6)

avec I , densité de puissance au centre du cristal en W/cm^2 .

β) en régime nanoseconde

La variation de la photoconductivité est quasi-linéaire dans la gamme de densité de puissance I = 0,045 mW/cm^2 à 1 MW/cm^2 , qui correspond à des densités d'énergie E au centre du cristal de 0,45 à 10 mJ/cm^2 . Ainsi à la longueur d'onde λ = 1,06 μm, la variation de photoconductivité s'écrit :

$$\Delta\sigma_{1,06ns} I = 3\ I\ 10^{-8}\Omega^{-1}cm^{-1} \qquad (II.11)$$

Ainsi que nous l'avons déjà signalé l'impulsion de photocourant présente deux constantes de temps de décroissance $\tau_r^{pc} \leqslant 0,5$ ns et $\tau_\ell^{pc} \simeq 50$ à 100 ns selon l'énergie. Compte tenu des valeurs généralement admises pour les sections efficaces de recombinaison des électrons, des trous et des concentrations estimées lors de la cristallogénèse des ions Fe^{2+} et Fe^{3+} [77], nous avons déduit que la constante de temps de décroissance rapide du photocourant τ_r^{pc} doit être identifiée à la constante de temps de recombinaison des électrons τ_{Rn} sur le fer (Fe^{2+}), tandis que l'autre plus lente τ_ℓ^{pc} doit être assimilée à la constante de temps de recombinaison des trous τ_{Rp} sur cette même impureté (Fe^{3+}).

L'évolution de $\tau_\ell^{pc} = \tau_{Rp}$ en fonction de la densité d'énergie E au centre du cristal, est représentée figure V.4 (+++). Nous voyons que cette évolution est semblable à celle de la constante de temps rapide de l'absorption induite τ_r^{abs}.

V.3. MODELE D'EXCITATION ET RECOMBINAISON DES CHARGES

Pour expliquer les phénomènes observés, nous avons étudié les mécanismes de redistribution des populations des différents niveaux Fe^{3+}, Fe^{2+} et Fe^{2+*} du dopant fer. Nous montrons que la prise en compte de cette seule impureté permet de décrire l'évolution temporelle et les variations d'amplitude de l'absorption induite. Le diagramme d'énergie de ces différents niveaux est représenté figure I.3, page 19 [64]. Nous rappelons qu'à l'état neutre, le fer existe sous la forme Fe^{3+} et que par capture électronique il devient Fe^{2+} ou Fe^{2+*}. Fe^{2+*} est situé dans le niveau d'énergie $^5T_2$ à 0,35eV du niveau ^5E (niveau Fe^{2+}/Fe^{3+}). Ce niveau est considéré comme initialement vide. Nous avons les processus de photo-excitation suivants :

- pour les trous :

$$\begin{cases} Fe^{3+} + h\upsilon \xrightarrow{S'_p} Fe^{2+} + h^+ \\ Fe^{3+} + h\upsilon \xrightarrow{S^*_p} Fe^{2+*} + h^+ \end{cases} \qquad (V.3)$$

pour les électrons :

$$\begin{cases} Fe^{2+} + h\upsilon \xrightarrow{S_n} Fe^{3+} + e^- \\ Fe^{2+*} + h\upsilon \xrightarrow{S^*_n} Fe^{3+} + e \end{cases} \qquad (V.4)$$

h^+ désigne un trou dans la bande de valence ; e^- un électron dans la bande de conduction ; $h\upsilon$ l'énergie d'un photon à la longueur d'onde 1,06 μm ($h\upsilon$ = 1,17 eV) et S'_p, S^*_p, S_n, S^*_n les sections efficaces de photoionisation correspondant aux différents processus. La section efficace de photoionisation totale des trous est $S_p = S'_p + S^*_p$.

Le dernier phénomène $\left(Fe^{2+*} + h\upsilon \xrightarrow{S_n^*} Fe^{3+} + e^-\right)$ n'existe que si le niveau Fe^{2+*} est peuplé. A l'équilibre thermodynamique $[Fe^{2+*}] \simeq 0$ et par conséquent la section efficace de photoionisation totale des électrons est égale alors à S_n.

Pendant et après l'illumination, les processus de recombinaison sont :

- pour les trous :

$$\begin{cases} Fe^{2+} + h^+ \xrightarrow{\tau'_{Rp}} Fe^{3+} \\ Fe^{2+*} + h^+ \xrightarrow{\tau^*_{Rp}} Fe^{3+} \end{cases} \qquad (V.5)$$

- pour les électrons :

$$Fe^{3+} + e^- \xrightarrow{\tau_{Rn}} Fe^{2+*} \qquad (V.6)$$

pour la relaxation du niveau excité :

$$Fe^{2+*} \xrightarrow{\tau_o} Fe^{2+} \qquad (V.7)$$

Par souci de simplification, nous avons suivi les hypothèses de Klein et al. qui supposent que la recombinaison des électrons sur le niveau ^5E $\left(Fe^{3+} + e^- \xrightarrow{\tau_{Rn}} Fe^{2+}\right)$ est très lente par rapport à celle sur le niveau excité $^5T_2$ (processus V.6) et que par conséquent elle peut être négligée. Ces auteurs supposent aussi que les temps de recombinaison des trous τ'_{Rp} et τ^*_{Rp} sont reliés au même coefficient de capture γ_p et donc que le temps caractéristique de recombinaison totale des trous est $\tau_{Rp} = \dfrac{\tau'_{Rp}\,\tau^*_{Rp}}{\tau'_{Rp} + \tau'_{Rp}}$ (proces-

sus V.5). Nous avons aussi supposé que l'ionisation thermique est négligeable devant l'excitation produite par une impulsion lumineuse de durée nanoseconde.

Dans cette approche, les temps caractéristiques de relaxation sont donc τ_{Rp}, τ_{Rn} et τ_o.

A partir des processus d'excitation et de recombinaison des porteurs de charge (processus V.3 - V.7), nous pouvons écrire le système d'équations fondamentales suivant :

$$\frac{dn}{dt} = F\left\{S_n [Fe^{2+}] + S_n^* [Fe^{2+*}]\right\} - \gamma_n n [Fe^{3+}] \qquad (V.8)$$

$$\frac{dp}{dt} = F\, S_p [Fe^{3+}] + \gamma_p p \left\{[Fe^{2+}] + [Fe^{2+*}]\right\} \qquad (V.9)$$

$$\frac{d[Fe^{3+}]}{dt} = \frac{dn}{dt} - \frac{dp}{dt} \qquad (V.10)$$

$$\frac{d[Fe^{2+}]}{dt} = F\left\{S'_p [Fe^{3+}] - S_n [Fe^{2+}]\right\} - \gamma_p p [Fe^{2+}] + \frac{1}{\tau_o} [Fe^{2+*}] \qquad (V.11)$$

$$\frac{d[Fe^{2+*}]}{dt} = - \frac{d[Fe^{3+}]}{dt} - \frac{d[Fe^{2+}]}{dt} \qquad (V.12)$$

$F = \dfrac{I_c}{h\upsilon}$ désigne le nombre de photons par unité de surface et de temps au centre du cristal. $[Fe^{3+}]$, $[Fe^{2+}]$, $[Fe^{2+*}]$ représentent les différentes populations des niveaux fer. n est la concentration des électrons dans la bande de conduction et p celle des trous dans la bande de valence. γ_n, γ_p sont les constantes de recombinaison (ou de capture) reliées aux sections efficaces de captures $\bar{S}_n$ et $\bar{S}_p$ par la vitesse moyenne thermique v_n^{th} et v_p^{th} par la relation $\gamma_{n,p} = v_{n,p}^{th}\ \bar{S}_{n,p}$. La constante de temps de recombinaison des électrons est :

$$\tau_{Rn} = \frac{1}{\gamma_n [Fe^{3+}]} \qquad (V.13)$$

et celle totale des trous est :

$$\tau_{Rp} = \frac{1}{\gamma_p \left\{ [Fe^{2+}] + [Fe^{2++}] \right\}} \qquad (V.14)$$

Rappelons que τ_{Rn} s'identifie à la constante rapide de décroissance du photocourant τ_r^{pc} et que τ_{Rp} s'identifie à la constante lente τ_ℓ^{pc}. Nous avons aussi remarqué que l'évolution et l'ordre de grandeur de la constante rapide de l'absorption induite τ_r^{abs} en fonction de la densité d'énergie E sont semblables à ceux de τ_ℓ^{pc}. Nous en déduisons que τ_r^{abs} est relative à la recombinaison des trous. Cela fait intervenir une combinaison des constantes de recombinaison τ'_{Rp} et τ^*_{Rp}. Par contre, la constante de temps lente de l'absorption induite τ_ℓ^{abs} n'a pas d'équivalent dans le photocourant. Nous l'identifions à la relaxation du niveau excité Fe^{2+*} de constante de temps τ_o.

Avec ces notations, le coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a(t) = a(t) - a^\lambda$ ($a(t)$ étant l'absorption totale du cristal sous illumination, a^λ le coefficient d'absorption linéaire à la longueur d'onde λ) s'écrit :

$$\Delta a(t) = (S_p - S_n)\, \Delta[Fe^{3+}] + \left(S_n^* - S_n\right) [Fe^{2+*}] \qquad (V.15)$$

avec :

$$\Delta[Fe^{3+}] = [Fe^{3+}] - [Fe^{3+}]_{eq} \qquad (V.16)$$

l'indice eq signifie que la grandeur est à l'équilibre thermique (sans illumination).

De même le coefficient d'absorption linéaire a^{λ} est :

$$a^{\lambda} = S_p [Fe^{3+}]_{eq.} + S_n [Fe^{2+}]_{eq.} \qquad (V.17)$$

Nous allons montrer, dans le paragraphe suivant que le phénomène d'absorption induite, son amplitude, sa dynamique d'établissement et de relaxation peuvent être expliqués par l'évolution des populations de ces différents niveaux du dopant Fer induite par l'impulsion lumineuse.

V.4. SIMULATIONS NUMERIQUES ET COMPARAISON AVEC L'EXPERIENCE

a) Introduction

Nous avons réalisé des simulations numériques à partir des équations (V.8 à V.16). Nous avons choisi une impulsion de forme gaussienne et de largeur à mi-hauteur 7,5 ns. Nous avons supposé que l'énergie du faisceau continu sonde est suffisament faible pour ne pas contribuer à la redistribution de la population des différents niveaux Fe^{3+}, Fe^{2+} et Fe^{2+*}.

Pour nos premières simulations, nous avons pris des valeurs des paramètres du matériau tirées de la littérature (présentées au chapitre II) ; la table V.1.A résume les principales.

Ne connaissant rien sur le niveau Fe^{2+*}, nous avons fait varier la valeur du rapport S_p^*/S_p. Pour une variation de ce rapport entre 0,3 et 0,9, nous n'avons vu que peu de différences. Pour nos simulations, nous avons pris $S_p^* \simeq \frac{2}{3} S_p$ et $S_p' \simeq \frac{S_p}{3}$. Cependant les simulations conduites avec ces paramètres, nous prédisent une diminution de l'absorption du cristal en présence du faisceau pompe (en opposition avec l'expérience), ceci tant que la section efficace d'ionisation des électrons à partir du nivau excité Fe^{2+*} vers le niveau Fe^{3+} (processus V.4) S_n^* reste inférieure à S_p. Dans le cas contraire $\left(S_n^* > S_p\right)$, nous avons alors une augmentation de l'absorption induite optiquement, qui croît juste après l'impulsion. Elle ne possèderait qu'une seule constante de temps de relaxation. Ainsi pour rendre compte d'une part du comportement temporel (deux constantes de temps de décroissance) observé pour l'absorption induite et d'autre part obtenir les amplitudes effectivement mesurées (Δa_{max} et Δa_{ℓ}), nous avons dû augmenter les

	A		B
$[Fe^{3+}]_{eq}$	$\approx 5\ 10^{16}\ cm^{-3}$	[77]	$3,5\ 10^{16}\ cm^{-3}$
$[Fe^{2+}]_{eq}$	$\approx 5\ 10^{15}\ cm^{-3}$	[77]	$5\ 10^{15}\ cm^{-3}$
$S_n^{1.06}$	$4\ 10^{-18}\ cm^2$	[76]	$5\ 10^{-17}\ cm^2$
$S_p^{1.06}$	$5\ 10^{-17}\ cm^2$	[76]	$5\ 10^{-17}\ cm^2$
$S_n^{*1.06}$	-		$5,35\ 10^{-17}\ cm^2$
$S_p^{*1.06}$	-		$2/3 \cdot s_p$
μ_n	$1300\ cm^2/Vs$	[77]	id.
μ_p	$130\ cm^2/Vs$	[77]	id.
m_n^*/m_o	0.078	[79]	id.
m_p^*/m_o	0.5	[79]	id.
τ_{Rn}^{eq}	-		≤ 0.5 ns
τ_{Rp}^{eq}	-		120 ns
τ_o	-		2 μs

Table V-1 : Principaux paramètres du cristal d'InP:Fe utilisés pour nos simulations informatiques

A : déduits de la littérature

B : donnant le meilleur accord entre les valeurs calculées et expérimentales.

valeurs des sections efficaces de photoionisation des électrons S_n, S_n^* (paramètres, table V-1.B). La valeur de S_n a été multipliée par un facteur 10 environ, conduisant à une valeur proche de celle de S_p ($\simeq 5\ 10^{-17} cm^2$). Nos études de l'effet photoréfractif qui seront présentées au chapitre VI conduisant à une conclusion similaire.

De même, nous avons pris, compte tenu de la remarque qui précède, une valeur de S_n^* supérieure d'environ 10 % à celle de S_p. Les valeurs de la concentration des ions Fe^{3+} et de celle des ions Fe^{2+} à l'équilibre ont été ajustées pour obtenir la valeur mesurée du coefficient d'absorption linéaire à la longueur d'onde 1,06 µm soit $a^{1.06} = 1,95 \pm 0,05\ cm^{-1}$.

La valeur prise pour τ_o est celle de la constante de temps lente de l'absorption induite, soit $\tau_\ell^{abs} = 2$ µs.

τ_{Rn} et τ_{Rp} sont reliées aux constantes de recombinaison γ_n et γ_p des électrons et des trous respectivement par les relations (V.13) et (V.14). γ_n et γ_p peuvent donc se déduire des valeurs mesurées de τ_{Rn} et $\tau_{R}p$ identifiées aux constantes de temps de décroissance du photocourant.

Les paramètres de la table (V.1.B) permettent le meilleur ajustement de nos simulations avec nos résultats expérimentaux. Les résultats des simulations correspondant à ce choix de paramètres sont représentés en traits pleins ou pointillés sur les figures V.3 à V.6.

b) Discussion

α) sonde à λ = 1,06 μm

Un résultat typique de nos simulations est illustré figure V.7. Il s'agit de l'évolution temporelle du coefficient d'absorption non linéaire Δa(t), pour une densité d'énergie E = 1,2 mJ/cm² (le faisceau sonde est à la longueur d'onde 1,06 μm). La courbe en trait plein représente la courbe expérimentale, celle en traits pointillés la courbe calculée à partir de nos simulations.

L'évolution temporelle des différentes populations des niveaux fer correspondant est tracée figure V.8. Nous pouvons observer tout d'abord que la population du niveau Fe^{3+} chute pendant l'impulsion puis se reconstruit après (recombinaison des trous). Par contre, la population du niveau Fe^{2+} change peu alors que celle du niveau Fe^{2++} croît pendant l'impulsion lumineuse et, pour des densités d'énergie élevées, peut même dépasser celle du niveau Fe^{2+}. Ensuite après l'impulsion ces deux populations diminuent à cause de la recombinaison des trous. Quelques 2 μs après l'impulsion, alors que la population du niveau Fe^{2++} devient quasi-nulle, celle du niveau Fe^{2+} réaugmente vers sa valeur d'équilibre (relaxation du niveau excité Fe^{2++}).

La dépendance en énergie du maximum du coefficient d'absorption non linéaire Δa_{max} et de sa composante lente Δa_{ℓ} est bien ajustée par nos simulations. Cependant, la saturation à haute énergie, observée expérimentalement, n'est pas aussi prononcée dans nos résultats numériques (figure V.3).

L'évolution simulée en fonction de la densité d'énergie E_c de la constante rapide de l'absorption induite τ_r^{abs} (courbe en trait

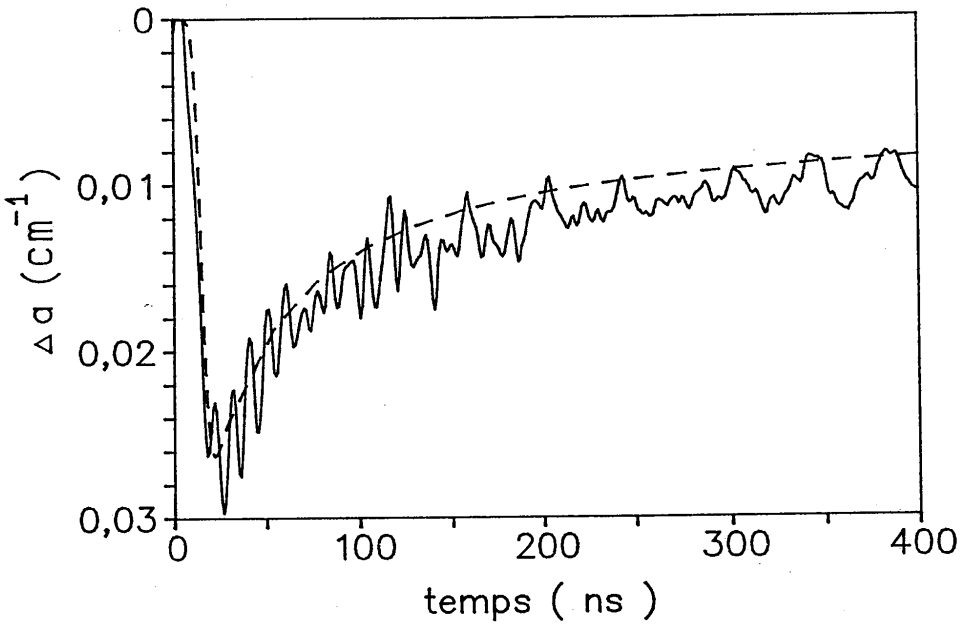


Figure V-7 : Evolution temporelle du coefficient d'absorption non linéaire $\Delta a(t)$ pour une densité d'énergie de 1,2 mJ/cm^2 (sonde à 1,06 µm) .

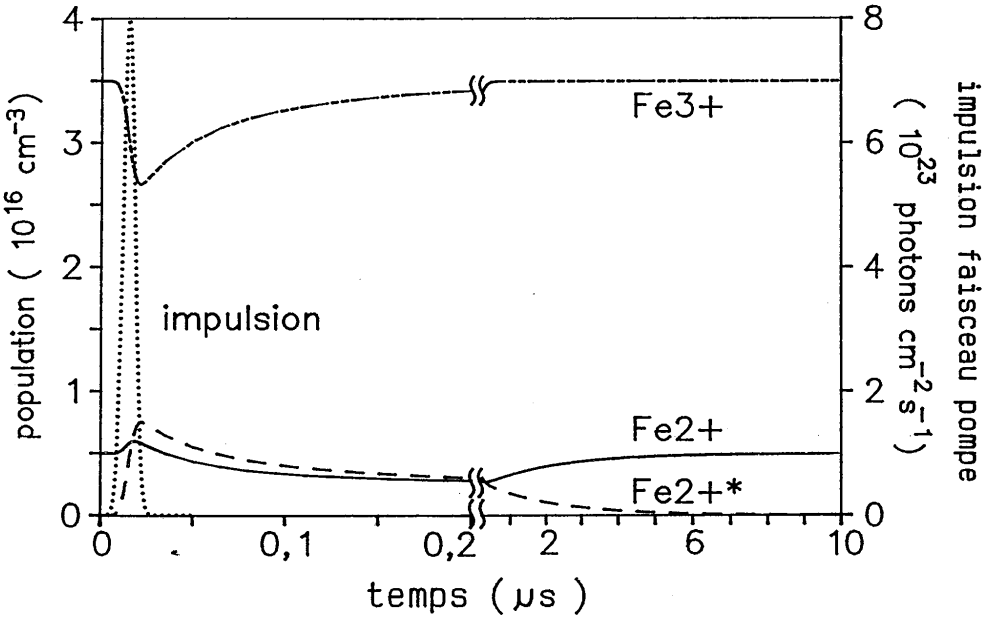


Figure V-8: Evolution des différentes populations des niveaux du dopant fer correspondant à la simulation de la figure V-7 .

plein figure V.4) représente exactement la courbe expérimentale. En prenant $S_n \simeq S_p$ (choix de nos paramètres), l'équation (V.15) devient $\Delta a(t) = \left(S_n^* - S_n\right)[Fe^{2+*}]$. Par conséquent la décroissance rapide de l'absorption induite est due au processus de recombinaison des trous, sur le niveau Fe^{2+*} pour donner un ion Fe^{3+} (processus V.5) et nous avons alors $\tau_r^{abs} = \tau_{Rp}^*$.

A partir de l'équation V.14 et des valeurs calculées des concentrations des ions Fe^{2+} et Fe^{2+*}, nous avons déterminé l'évolution, en fonction de la densité d'énergie E, de la constante de recombinaison totale des trous τ_{Rp} (courbe en traits pointillés figure V.4). Cette courbe déduite de nos simulations s'ajuste avec les points expérimentaux de la constante de temps de recombinaison lente du photocourant $\tau_\ell^{p,c}$. Ceci confirme l'hypothèse $\tau_\ell^{p,c} = \tau_{Rp}$. La différence visible à basse énergie est principalement causée par une erreur expérimentale systématique : $\tau_\ell^{p,c}$ a été mesurée 20 ns après le pic de photocourant, or la densité d'énergie de l'impulsion n'est pas exactement égale à zéro. Sa valeur est encore environ 4 % du maximum de l'impulsion et elle décroit avec une constante de temps d'environ 25 ns (voir figure II.20 page 69 qui représente l'impulsion lumineuse et le photocourant). Nous voyons aussi sur cette même figure, que la conductivité due aux électrons est supérieure à celle due aux trous.

La partie du photocourant due aux électrons et créée par cette queue d'impulsion suit donc cette évolution 20 ns après le pic du photocourant, elle est superposée à la composante lente du photocourant (due aux trous) créée par la partie principale de l'impulsion. Comme $\tau_\ell^{p,c}$ est mesuré à cet instant. Par suite, les valeurs que nous avons déduites sont moins élevées que les valeurs réelles. A haute énergie, les deux constantes de temps de décroissance de l'impulsion et du photocourant sont du même ordre de grandeur ($\simeq$ 30 ns) et l'erreur de mesure n'est pas trop importante ($\simeq$ 15 %). Par contre à basse énergie, les deux constantes de temps

de décroissance sont assez différentes (25 ns et 100 ns) et cette erreur n'est désormais plus négligeable : les valeurs expérimentales tracées sont à peu près 50 % trop basses.

Nos simulations indiquent que le temps caractéristique de recombinaison des électrons, τ_{Rn}, varie peu. A basse énergie ($E \leqslant 0,5$ mJ/cm^2) nous avons $\tau_{Rn} \leqslant 0,5$ ns et à haute énergie ($E = 7$ mJ/cm^2) sa valeur est 1 ns.

Nous avons aussi étudié le retard Δt entre la montée du signal d'absorption induite et l'impulsion lumineuse. Le résultat de nos simulations est représenté figure V.5 (trait plein). La différence d'environ 1,5 ns entre nos points expérimentaux et la courbe déduite de nos simulations peut s'expliquer par l'asymétrie de la forme de l'impulsion. En effet, celle-ci croît plus rapidement qu'elle ne décroît. Sa "demi-largeur" à mi-hauteur est de 2,5 ns pour sa croissance et 5 ns pour sa décroissance. Dans nos simulations la forme de l'impulsion est gaussienne et symétrique de largeur à mi-hauteur 7,5 ns. On peut considérer que la construction de l'absorption induite résulte en fait d'une impulsion de forme à peu près gaussienne mais de largeur réduite. D'autres simulations conduites avec une impulsion gaussienne de largeur à mi-hauteur 5 ns, donnent des valeurs de Δt inférieures à celle précédemment calculées (de 0,5 à 1,5 ns plus basses). Un meilleur accord est obtenu dans ce cas.

β) sonde à 1,30 μm

Nous avons pris les mêmes paramètres que précédemment (table V.1.B) en ajoutant les valeurs des sections efficaces de photoionisation à 1,30 μm. Les rapports entre ces valeurs et celles des sections efficaces de photoionisation à la longueur d'onde 1,06 μm ont été mesurés par la technique D.L.O.S. (Deep

Level Optical Spectroscopy) [88]. Compte-tenu des valeurs tirées de la référence [88] et de celles de la table V.1.B, nous obtenons les deux premières des trois relations suivantes :

$$S_p^{1,30} = 0,33\ S_p^{1,06} = 1,65\ 10^{-17}\,cm^2$$

$$S_n^{1,30} = 0,15\ S_n^{1,06} = 7,5\ 10^{-18}\,cm^2 \qquad (V.18)$$

$$S_n^{*1,30} = 0,8\ S_n^{*1,06} = 4\ 10^{-17}\,cm^2$$

La troisième relation a été établie afin que la valeur choisie de $S_n^{*1,30}$ donne un bon accord entre les valeurs expérimentales et les simulations décrivant l'évolution de $\Delta a_{max}^{1,30}$ (maximum d'absorption induite à la longueur d'onde 1,30 μm) en fonction de la densité d'énergie E au centre du cristal (voir figure V.6).

Il est important de remarquer que l'absorption induite à la longueur d'onde 1,30 μm est plus importante de presque un ordre de grandeur que celle à 1,06 μm, alors que les sections efficaces de photoionisation S_n, S_p sont plus faibles. Pour rendre compte de phénomène nous avons pris une valeur élevée de $S_n^{*1,30}$. Cela s'explique en suivant les conclusions de Bremond et al [88], qui soutiennent, à partir des analyses de leurs spectres de D.L.O.S., qu'une large part de la photoionisation des électrons est due à leur excitation à partir du niveau Fe^{2+} vers la vallée L de la bande de conduction (voir figure V.9). La distance intervallée Γ et L est de 0,55 eV. A la longueur d'onde 1,06 μm, l'énergie par photon ($h\upsilon$ = 1,17 eV) est proche de l'énergie nécessaire à l'ionisation d'un électron du niveau Fe^{2+} vers le minimum de la vallée L (≃ 1,10 eV). Par contre à la longueur d'onde 1,30 μm, l'énergie par photon (0,95 eV) n'est pas suffisante pour avoir ce processus et la photoconductivité, pour les électrons, résulte de l'excitation d'un électron du niveau Fe^{2+} vers la vallée Γ. Ceci explique

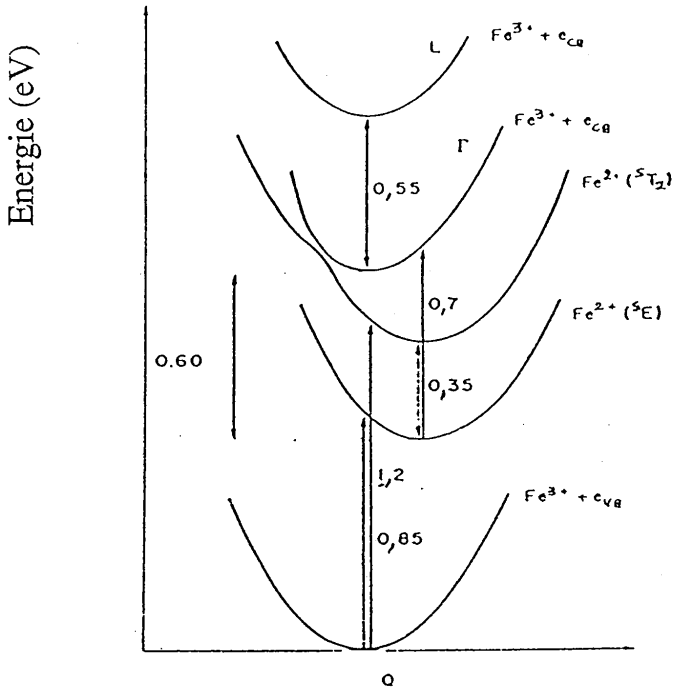


Figure V-9 : Diagramme schématique d'excitation du niveau profond Fe^{3+}/Fe^{2+} dans le cristal d'InP .

Q représente la coordonnée de configuration [88] .

la différence entre les valeurs des sections efficace de photionisation $S_n^{1.06}$ et $S_n^{1.30}$ (relation V.18).

Le niveau excité Fe^{2+*}, qui se peuple lors de l'excitation lumineuse, se situe 0,35 eV au-dessus du niveau fondamental Fe^{2+}/Fe^{3+}. L'excitation d'un électron à partir de ce niveau excité vers la vallée L est possible dans tous les cas (excitation à 1,30 µm ou 1,06 µm). Ceci explique le peu de différence entre les valeurs des sections efficaces de photoionisation $S_n^{*1.06}$ et $S_n^{*1.30}$.

Nos simulations ne prédisent pas de différences significatives dans l'évolution temporelle de l'absorption induite testée aux deux longueurs d'onde 1,06 µm et 1,30 µm. Expérimentalement, nous avons obtenu deux valeurs différentes de la constante de temps de décroissance lente τ_ℓ^{abs} (2 µs et 0,5 µs respectivement), constante que nous avons identifiée au temps de relaxation τ_o. Cependant, comme nous l'avons déjà signalé, la mesure de τ_ℓ^{abs} à la longueur d'onde 1,30 µm n'est pas très précise car dans cette expérience, les constantes de temps de décroissance lente et rapide sont du même ordre de grandeur. La différence observée expérimentalement n'est donc pas significative.

Nous avons aussi remarqué une différence entre les temps de décroissance apparents τ^{ap} à la longueur d'onde 1,06 µm et 1,30 µm ($\tau_{1.30}^{ap}$ légèrement supérieur à τ^{ap}). Une telle différence n'apparait pas dans nos résultats de simulations conduites avec les paramètres de la table V.1.B.

γ) Photocourant

Nous avons calculé l'amplitude du photocourant avec les paramètres déduits de notre modélisation comparée à l'expérience. La photoconductivité en régime continu peut être écrite par :

$$\Delta\sigma_{1.06} = \left(S_n [Fe^{2+}] \tau_{Rn} \mu_n + S_p [Fe^{3+}] \tau_{Rp} \mu_p\right) e \frac{I}{h\upsilon} \qquad (V.19)$$

Le résultat de nos simulations donne :

$$\Delta\sigma_{1.06} = 2,3\ 10^{-5} I\ \Omega^{-1} cm^{-1} \qquad (V.20)$$

avec I en W/cm^2 densité de puissance au centre du cristal.

Cette valeur peut être comparée à la valeur expérimentale donnée ($1,2\ 10^{-6} I\ \Omega^{-1} cm^{-1}$) (relation II-5), elle est environ 20 fois supérieure. Cependant, elle est proche de celle mesurée par nos collègues du CNET Lannion pour un échantillon semblable d'InP:Fe ($\simeq 5\ 10^{-5} I\ \Omega^{-1} cm^{-1}$ [89]). L'amplitude du photocourant en régime nanoseconde a aussi été calculée, toujours avec les mêmes paramètres et nous trouvons encore des valeurs calculées environ 10 à 50 fois plus grandes que les valeurs expérimentales. Nous pensons que ces différences résultent de la création de jonctions métal-semiconducteur (laque d'argent-InP:Fe). Une chute du champ appliqué aux bornes du cristal, ($E < \frac{V_x}{d}$, V_x étant la tension inter-électrodes et d l'épaisseur du cristal) suffirait à rendre compte de ces différences.

Tous ces résultats confirment le rôle du dopant Fer dans le phénomène d'absorption non-linéaire. Les choix de nos paramètres (Table V.1.B) et de nos hypothèses (identification des différentes constantes de temps de décroissances aux constantes de temps des processus de recombinaison-relaxation) nous apparaissent raisonnables.

V.5. CONCLUSION

Nous avons mesuré et analysé la cinétique de l'absorption induite optiquement et celle du photocourant en régime nanoseconde dans le cristal d'InP:Fe. Nous avons déterminé les constantes de temps de recombinaison des trous et donné une borne supérieure pour celle des électrons. Nous avons montré que l'absorption induite peut être entièrement expliquée par la redistribution des populations dans les différents états de l'impureté fer.

Nous avons trouvé deux constantes de temps de relaxation de cette absorption non linéaire. A la longueur d'onde 1,06 μm la première, qui est de l'ordre de grandeur 100 ns, correspond à la recombinaison des trous ; la seconde, de valeur environ 2 μs, correspond à la relaxation du niveau excité $^5T_2(Fe^{2+*})$ vers le niveau fondamental $^5E(Fe^{2+})$. A cette longueur d'onde 1,06 μm, la variation maximale du coefficient d'absorption induite est 0,05 cm^{-1} (2,6 % de l'absorption linéaire). A la longueur d'onde 1,30 μm ce maximum vaut 0,30 cm^{-1} , soit 50 % de l'absorption linéaire. Des simulations numériques ont redonné les différents comportements expérimentaux, tant en ce qui concerne l'évolution temporelle (deux constantes de temps de décroissance et un retard à l'établissement), que pour la dépendance en énergie (pour l'amplitude de l'absorption induite et de ses constantes de temps) et aussi la dépendance selon la longueur d'onde.

Cette étude nous a aussi permis d'estimer les valeurs des sections efficaces de photoionisation à partir des différents niveaux Fe^{3+}, Fe^{2+} et surtout Fe^{2+*} pour lequel nous n'avions aucune connaissance a priori.

D'autres simulations conduites à partir des valeurs de la table V.1.B, nous ont permis de déterminer les "gammes" de valeurs

de ces paramètres compatibles avec l'expérience. Nous avons tout d'abord augmenté toutes les sections efficaces de photoionisation $\left(S_p^{1.06}, S_n^{1.06}, S_n^{*1.06}\right)$ par un facteur de deux environ et diminué du même facteur la concentration des ions Fe^{3+}. Le résultat obtenu reste en accord avec l'expérience. D'un autre côté, si nous diminuons toujours d'un facteur de deux environ $S_p^{1.06}$, $S_n^{1.06}$, $S_n^{*1.06}$ et augmentons les concentrations des ions Fe^{2+} et Fe^{3+}, l'accord devient moins bon. Pour chaque série de simulations, les valeurs de $S_n^{1.06}$ et $S_n^{*1.06}$ qui donnent le meilleur accord avec l'expérience sont proches à 10 % près de celle de $S_p^{1.06}$. Le meilleur jeu de paramètres donnant un bon accord avec l'expérience est résumé Table V.2..

Ces paramètres du matériau obtenus par l'étude de l'absorption non linéaire sont, ainsi que nous le verrons au prochain chapitre, en total accord avec ceux qui seront trouvés dans notre analyse de l'effet photoréfractif.

- sections efficaces de photoionisation:

$S_p^{1.06} = (5 \pm 3)\ 10^{-17}\ cm^2$ $\qquad$ $S_p^{1.30} \approx 1,5\ 10^{-17}\ cm^2$

$S_n^{1.06} / S_p^{1.06} = 1 \pm 0,1$ $\qquad$ $S_n^{1.30} / S_p^{1.30} \approx 0,5$

$S_n^{*1.06} / S_p^{1.06} = 1,08 \pm 0,03$ $\qquad$ $S_n^{*1.30} / S_p^{1.30} \approx 2,5$

$S_p^{*1.06} / S_p^{1.06} = 0,6 \pm 0,3$ $\qquad$ $S_p^{*1.30} / S_p^{1.30} = 0,6 \pm 0,3$

- constantes de temps de recombinaison:

$\tau_{Rn} \leq 0,5$ ns (voisin de la résolution expérimentale)

$\tau_{Rp} = 150 \pm 50$ ns

- rapport entre les concentrations en ions Fe^{2+}, Fe^{3+}:

$[Fe^{2+}] / ([Fe^{2+}] + [Fe^{3+}]) = 0,2 \pm 0,1$

- absorption linéaire:

$a_\ell^{1.06} = S_n^{1.06} [Fe^{2+}]_{eq} + S_p^{1.06} [Fe^{3+}]_{eq} = 1,95 \pm 0,05\ cm^{-1}$

$a_n / a_p = S_n^{1.06} [Fe^{2+}]_{eq} / S_p^{1.06} [Fe^{3+}]_{eq} = 15 \pm 8\ \%$

Table V-2 : Jeu de paramètres du cristal d'InP:Fe donnant un bon accord avec l'expérience.

VI - ETUDE THEORIQUE DU COUPLAGE D'ONDE EN REGIME NANOSECONDE DANS InP:Fe ET COMPARAISON AVEC L'EXPERIENCE

VI.1. INTRODUCTION

Nous avons présenté au chapitre IV, paragraphe 3, les résultats expérimentaux de l'expérience de couplage d'onde dans le cristal d'InP:Fe. Nous avons mis en évidence un transfert d'énergie dû à l'effet photoréfractif. Grâce aux symétries de cet effet (chapitre III, paragraphe 3)), nous avons pu isoler ce phénomène des autres mécanismes d'origine non photoréfractive.

Ces expériences ont montré que la valeur du gain relatif de couplage G_{pr} (donc du gain photoréfractif Γ) dépendait de la densité d'énergie du faisceau pompe au centre du cristal (figure IV-8). Nous rappelons que le gain relatif G_{pr} est relié au gain Γ de couplage par unité de longueur d'interaction par la relation (relation III-17).

$$G_{pr} = \frac{I_{sonde}\,(\text{avec pompe})}{I_{sonde}\,(\text{sans pompe})} = e^{+\Gamma \ell}$$

ℓ étant la longueur d'intéraction (peu différente de l'épaisseur du cristal).

Cette expression a été déduite de la résolution des équations d'ondes couplées dans l'hypothèse où le taux de modulation m du réseau d'illumination est faible devant l'unité et est non sensiblement modifié par le transfert d'énergie. Dans ce cas et comme dans notre expérience, il n'y pas de champ extérieur appliqué ($E_o = 0$), nous avons alors :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda} n^3 r_{41} \frac{E_1^{im}(t)}{m} \qquad (IV.1)$$

Où $E_1^{im}(t)$ représente la partie imaginaire du champ de charge d'espace $E_1(t)$ photoinduit. L'expression du gain photoréfractif Γ a été calculée dans la configuration $\vec{k}_R$//[001] pour des polarisations parallèles à la direction [110] au chapitre III paragraphe 3). L'évolution de Γ (et celle de G_{pr}) résulte donc de celle de $\frac{E_1^{im}}{m}$, terme indépendant des amplitudes des ondes qui interfèrent dans le matériau (indépendant donc de m).

A partir du modèle de transport de charge à deux types de porteurs de charge (électrons et trous), qui a été présenté au chapitre I paragraphe 3 c), nous avons déduit un système d'équation d'évolution des différentes grandeurs, densité des porteurs, concentrations des centres photoexcitables, champ de charge d'espace... Une résolution numérique exacte de ces équations dans le cas d'une excitation nanoseconde a été réalisée.

Par conséquent, nous avons pu faire une comparaison entre le gain relatif G_{pr} déduit de la valeur calculée du champ de charge d'espace $E_1^{im}(t)$ et nos valeurs expérimentales. Lors de la discussion de ces résultats numériques, la compréhension des phénomènes et de leurs évolutions sera illustrée à l'aide d'expressions analytiques approchées que nous déterminerons.

VI.2. MODELE DE TRANSPORT DE CHARGE A DEUX TYPES DE PORTEURS : EQUATIONS D'EVOLUTION

Nous présentons une analyse de la construction du champ de charge d'espace qui régit l'effet photoréfractif. Cette analyse repose sur l'intégration numérique des équations différentielles d'évolution déduites du modèle de transport de charge. Dans ce modèle, deux types de porteurs de charge (électrons et trous) sont excités à partir d'un niveau piège (Fe^{3+}/Fe^{2+}) situé dans la bande interdite.

A l'origine nous avions développé un premier modèle à un seul type de porteurs de charge (trous) ; cependant avec les valeurs estimées des concentrations des ions Fe^{2+} et Fe^{3+} et de la section efficace des trous, le transfert d'énergie calculé était trop important par rapport aux valeurs expérimentales. On peut montrer que toutes choses étant égales par ailleurs, la partie imaginaire du champ de charge d'espace ($m\ E_{sc}(t)\ \sin\Phi$) , créée par une migration de trous, a un signe opposé à celle résultant d'une migration d'électrons [90] . Le gain de transfert d'énergie photoréfractif étant proportionnel à cette partie imaginaire, (voir relation (III-14)), on comprend aisément que l'existence simultanée d'électrons et de trous va tendre à diminuer le gain photoréfractif. D'où le choix d'un modèle de transport de charge à deux types de porteurs.

Ce modèle a été décrit au chapitre I, paragraphe 3), le système d'équations fondamentales est décrit par les équations I.28 à I.33. Dans le cas du cristal d'InP:Fe, les centres photoexcitables en densité N_D^- correspondent aux ions Fe^{2+} et le reste en densité $N_D - N_D^-$ aux ions Fe^{3+}. Dans le noir, pour assurer la neutralité électrique dans le cristal, existent des centres

donneurs superficiels en densité N_{DS}^{+} qui ne participent pas à l'effet photoréfractif, nous avons $N_{DS}^{+} = [Fe^{2+}]_{eq}$ (ions Fe^{2+} à l'équilibre).

Si nous considérons l'expérience de couplage d'onde, l'illumination à l'intérieur du cristal résulte de l'interférence des deux ondes planes sonde et pompe. Le taux de modulation m du réseau ainsi créé est faible devant 1. Les grandeurs s'écrivent alors comme la somme d'un terme constant (ordre zéro) et d'un terme sinusoïdal (ordre un), (relation I.35). De plus, dans nos expériences aucun champ extérieur n'est appliqué $\left(\vec{E}_o(t) = \vec{0}\right)$. Le champ de charge d'espace est donc déphasé de $\frac{\pi}{2}$ par rapport à la modulation de charge (d'après la loi de Poisson I.33). $\vec{E}_1(t)$ est donc imaginaire pur. Nous avons :

$$\vec{E}_1(t) = i\, E_1^{im}(t)\, \hat{k}_R$$

Les équations d'évolution déduites des équations I.28 à I.33 par linéarisation du système sont :

- pour l'ordre zéro :

$$\frac{\partial n_o}{\partial t} = S_n \frac{I}{h\upsilon} N_{Do}^{-} - \gamma_n\, n_o \left(N_D - N_{Do}^{-}\right) \qquad \text{(VI.2)}$$

$$\frac{\partial p_o}{\partial t} = S_p \frac{I}{h\upsilon} \left(N_D - N_{Do}^{-}\right) - \gamma_p\, p_o N_{Do}^{-} \qquad \text{(VI.3)}$$

$$\frac{\partial N_{Do}^{-}}{\partial t} = S_p \frac{I}{h\upsilon} \left(N_D - N_{Do}^{-}\right) - \gamma_p p_o N_{Do}^{-} - S_n \frac{I(t)}{h\upsilon} N_{Do}^{-} - \gamma_n n_o \left(N_D^{+} - N_{Do}^{-}\right) \qquad \text{(VI.4)}$$

Avec la relation :

$$N_{Do}^{-} = p_o - n_o + N_{DS}^{+} \qquad \text{(VI.5)}$$

- pour l'ordre un :

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = S_n \frac{I}{h\upsilon} m N_{D\,o}^- - \gamma_n n_1 \left(N_D - N_{D\,o}^-\right) + \left(S_n \frac{I}{h\upsilon} + \gamma_n n_o\right) N_{D\,1}^-$$

$$- k_R \mu_n n_o E_1^{i\,m}(t) - k_R \mu_n n_1 E_D \qquad \text{(VI.6)}$$

$$\frac{\partial p_1}{\partial t} = S_p \frac{I}{h\upsilon} m \left(N_D - N_{D\,o}^-\right) - \gamma_p p_1 N_{D\,o}^- - \left(S_p \frac{I}{h\upsilon} + \gamma_p p_o\right) N_{D\,1}^-$$

$$- k_R \mu_p p_o E_1^{i\,m}(t) - k_R \mu_p p_1 E_D \qquad \text{(VI.7)}$$

$$\frac{\partial N_{D\,1}^-}{\partial t} = \left(S_p \frac{I}{h\upsilon} m + \gamma_n n_1\right)\left(N_D^T - N_{D\,o}^-\right) - \left(S_n \frac{I}{h\upsilon} m + \gamma_p p_1\right) N_{D\,o}^-$$

$$- \left(S_n \frac{I}{h\upsilon} + \gamma_n n_o + S_p \frac{I}{h\upsilon} + \gamma_p p_o\right) N_{D\,1}^- \qquad \text{(VI.8)}$$

et la relation :

$$E_1^{i\,m}(t) = \frac{e}{\varepsilon\, \varepsilon_o k_R} \left(N_{D\,1}^- - p_1 + n_1\right) \qquad \text{(VI.9)}$$

I est la densité de puissance mesurée au centre du cristal, les autres grandeurs ont été définies au chapitre I. Pour nos expériences, le pas du réseau inscrit est $\Lambda = 1\ \mu m$ ce qui correspond à un champ de diffusion $E_D = \frac{k_B T}{e} k_R$ d'environ 1520 V/cm. Les réseaux de porteurs de charge, ainsi que celui créé dans les ions Fe^{2+} et Fe^{3+} ont le même taux de modulation m que le réseau d'illumination. Il s'ensuit que la partie imaginaire du champ de charge d'espace $E_1^{i\,m}(t)$ est directement proportionnelle à m (relation VI.9). Nous pouvons donc écrire : $\vec{E}_1(t) = im\, E_{sc}(t)\, \hat{k}_R$, avec $E_{sc}(t)$ étant un terme indépendant de m par conséquent des amplitudes des ondes ξ_1 et ξ_2. Ceci vérifie à postériori l'hypothèse faite pour la résolution des ondes couplées au chapitre III.

V.3. SIMULATIONS NUMERIQUES : DISCUSSION

A partir des équations d'évolution, nous avons calculé de manière exacte le champ de charge d'espace et donc le transfert d'énergie photoréfractif. Ces équations ont été résolues numériquement par la méthode de Runge Kutta au second ordre. La variation temporelle de l'impulsion lumineuse est choisie gaussienne. Comme lors de nos expériences, nous avons choisi un pas du réseau inscrit Λ = 1 μm, un taux de modulation m de 20 à 30 % et la durée des impulsions (largeur à mi-hauteur) que nous avons prise est T_L = 5 ns. Ainsi que nous l'avons montré précédemment, les mesures de photocourant nous donnent les constantes de temps de recombinaison des électrons $\tau_{Rn} \leqslant$ 0.5 ns et les trous $\tau_{Rp} \simeq$ 100 ns. Les autres paramètres initialement utilisés pour ces simulations sont donnés par la Table II-1.

Dans notre échantillon d'InP:Fe, on estime que la concentration des ions Fe^{3+} est supérieure à celle des ions Fe^{2+} [77] . Ceci est en contradiction avec les résultats obtenus dans un autre cristal d'InP:Fe [91], mais est confirmé d'une part par l'étude du phénomène d'absorption non linéaire (chapitre V) [87] et d'autre part sera aussi confirmé par la présente analyse de vos expériences de couplage d'onde [92].

Sur la figure VI.1 est représentée l'évolution temporelle des différentes grandeurs, à savoir :

- la partie imaginaire du champ de charge d'espace $E_1^{im}(t) = m\, E_{sc}(t)$.
- les densités non modulées spatialement $\bar{n}_1 = \dfrac{n_1}{m\, n_o}$ et $\bar{p}_1 = \dfrac{p_1}{m\, p_o}$.

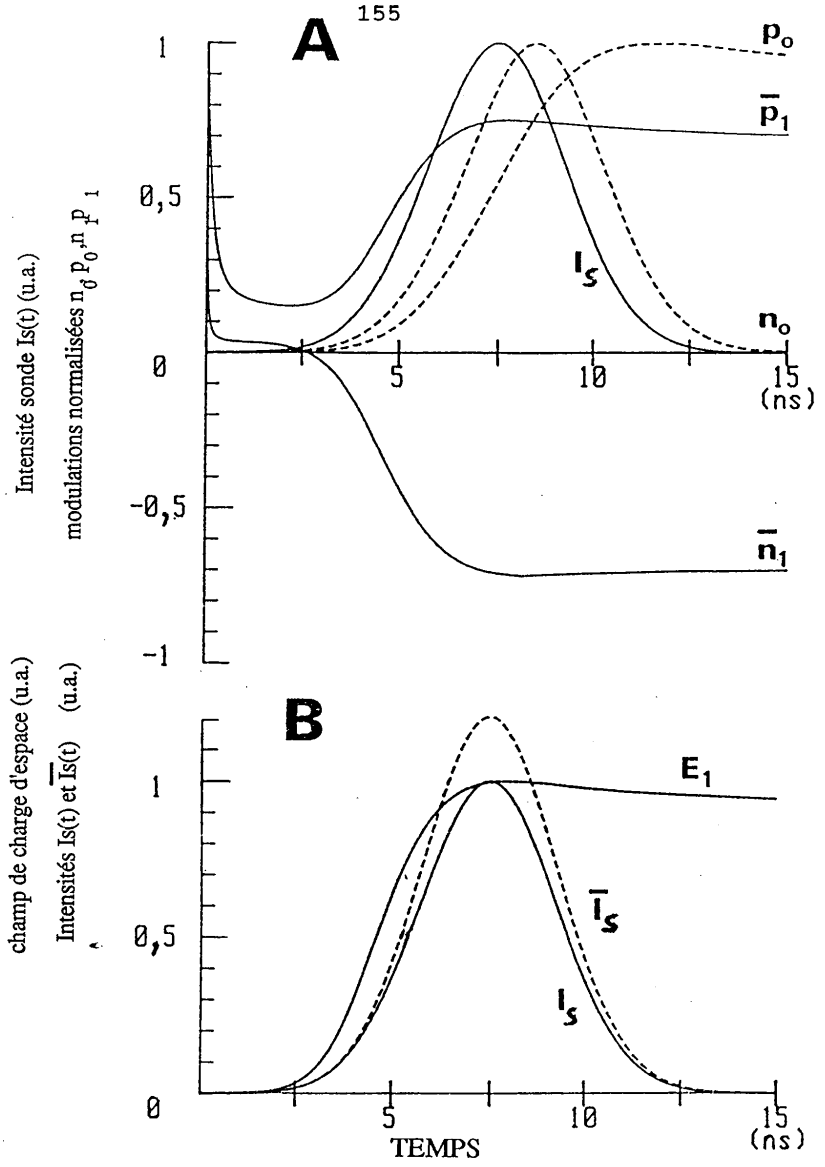


Figure VI-1 : Evolution du champ de charge d'espace et d'autres grandeurs caractéristiques ; la densité d'énergie au centre du cristal est de 1 mJ/cm^2.

- la densité de puissance $I_s(t)$ du faisceau sonde en l'absence du faisceau pompe (impulsion gaussienne) et celle $\bar{I}_s(t)$ du faisceau sonde en présence du faisceau pompe.

Le gain relatif de couplage G_{pr} que nous avons mesuré est égal au rapport de $\bar{I}_s(t)$ sur $I_s(t)$ pour t au sommet de l'impulsion.

a) **Evolution temporelle des grandeurs non modulées spatialement**

Comme la durée de l'impulsion T_L (5 ns) est très grande devant la constante de temps de recombinaison des électrons ($\tau_{Rn} \leqslant 0,5$ ns), la concentration des électrons dans la bande de conduction n_o suit l'évolution de l'impulsion avec un léger retard. Les électrons se recombinent pendant l'impulsion (figure VI.1 A).

Par contre, la constante de temps de recombinaison des trous τ_{Rp} ($\simeq$ 100 ns) est grande par rapport à T_L. Nous pouvons donc négliger leur recombinaison, le phénomène de mélange d'onde n'existant que pendant l'impulsion. La concentration des trous dans la bande de valence p_o représente alors l'intégrale de l'impulsion (figure VI.1.A).

Il est à remarquer que, compte-tenu des valeurs des sections efficaces de photoionisation ($S_p \geqslant S_n$) et des concentrations à l'équilibre des ions Fe^{3+} et Fe^{2+} ($[Fe^{3+}]_{eq.}$ étant supérieur à la concentration $[Fe^{2+}]_{eq.}$ [77]), nous avons p_o grand devant n_o et nous pouvons écrire d'après l'équation (VI.5) :

$$N_{Do}^{-} \simeq p_o + N_{DS}^{+} \qquad \text{(VI.10)}$$

L'évolution de la concentration en ions Fe^{2+} , $N_{D_o}^-$ est donc identique à celle de p_o (je rappelle que dans le noir nous avons $N_{D_o}^- = N_{D_S}^+$).

b) **Evolution temporelle des grandeurs modulées spatialement**

Au tout début de l'excitation optique, il y a création de trois réseaux de charges p_1 , n_1 et $N_{D_1}^-$. Le réseau d'électrons dans la bande de conduction vérifie alors $n_1 = m\ n_o$, celui de trous dans la bande de valence est $p_1 = m\ p_o$ et celui des ions Fe^{2+} a pour expresison $N_{D_1}^- = p_1 - n_1$.

Avant les processus de diffusion et de recombinaison, ces trois réseaux se compensent mutuellement et le champ de charge d'espace résultant est nul (relation VI.9). Il est important de remarquer que la modulation $N_{D_1}^-$ des ions est positive (i.e. réseau en phase avec la figure d'interférence) parce que la photoionisation des trous est supérieure à celle des électrons. De même, à ce stade de l'illumination, les réseaux d'électrons et de trous sont aussi en phase avec le réseau d'illumination (figure VI.1.A).

Pour le pas du réseau inscrit choisi (Λ = 1 μm) le temps de diffusion des porteurs libres est très court par rapport à la durée de l'impulsion ($\tau_{n,p}^d = \dfrac{e}{k_B T\ k_R^2 \mu_{n,p}}$ $\tau_n^d \simeq$ 0,01 ns et $\tau_p^d \simeq$ 0,1 ns). Il y a donc diffusion immédiate des porteurs libres. Les parties modulées $\bar{n}_1 = \dfrac{n_1}{m\ n_o}$ et $\bar{p}_1 = \dfrac{p_1}{m\ p_o}$ chutent rapidement (figure VI-1.A pour $t < 0{,}5$ ns). Cependant le réseau formé dans les ions reste immobile et par conséquent il y a création du champ de charge d'espace modulé spatialement.

Principalement dominé par le réseau d'ions N_{D1}^{-} positif, la partie imaginaire du champ de charge d'espace $E_1^{im} = m\, E_{sc}$ est elle aussi positive (relation VI.9). Ce champ oblige les électrons et les trous à migrer. L'entrainement des trous par ce champ de charge d'espace reconstruit la modulation du réseau de trous, en phase avec celle créée par la photoionisation, donc $\overline{p_1}$ augmente. Par contre, à cause du signe opposé de leur charge, les électrons sont entrainés dans le sens opposé à celui du champ et leur entrainement sous ce champ réduit la modulation de leur réseau, jusqu'à ce que $\overline{n_1}$ devienne négatif. Le réseau d'électron devient en oposition de phase avec le réseau d'illumination (figure VI.1.A).

Comme les mobilités μ_n , μ_p sont relativement grandes et dans notre expérience le module du vecteur k_R du réseau l'est aussi nous pouvons faire d'importantes simplifications des équations d'évolution. Ceci permet de mieux comprendre les résultats de nos simulations.

Pendant l'illumination, lorsque le temps augmente, le champ de charge d'espace devient rapidement suffisamment grand pour que les termes d'entrainement $\left(- k_R \mu_n n_o E_1^{im}(t)\right)$ et $\left(+ k_R \mu_p p_o E_1^{im}(t)\right)$ dans les équations (VI.6) et (VI.7) deviennent largement prépondérants devant les termes correspondant aux processus de photoionisation et de recombinaison. Dans ce cas, l'entrainement sous champ et la diffusion sont en compétition. Parce que la diffusion est quasi-immédiate, ces deux termes se contrebalancent l'un l'autre pour la création des réseaux d'électrons et de trous. Il s'en suit que les équations (VI.6) et (VI.7) deviennent :

$$- k_R \mu_n n_o E_1^{im}(t) - k_R \mu_n n_1 E_D \simeq 0 \qquad \text{(VI.11)}$$

$$k_R \mu_p p_o E_1^{im}(t) - k_R \mu_p p_1 E_D \simeq 0 \qquad (VI.12)$$

et nous avons la relation importante (pendant l'illumination et juste après) :

$$p_1/p_o \approx - n_1/n_o \approx E_1^{im}(t)/E_D \qquad (VI.13)$$

Ainsi les deux modulations des réseaux de porteurs libres $\frac{p_1}{p_o}$ et $\frac{n_1}{n_o}$ sont de signes opposés et sont proportionnelles à $E_1^{im}(t)$ (figure VI.1 pour t > 3 ns). En reportant ce résultat (relation VI.13) dans l'équation d'évolution du champ de charge d'espace (équation VI.9), nous obtenons :

$$E_1^{im}(t) = \frac{N_{D1}^- E_D}{\left(\frac{\varepsilon \varepsilon_o k_R E_D}{e} + p_o + n_o\right)} \qquad (VI.14)$$

Comme nous l'avons vu précédemment, n_o est très petit devant p_o et peut être négligé dans cette expression de $E_1^{im}(t)$. Ceci signifie que le champ de charge d'espace est déterminé par l'évolution de la modulation des ions N_{D1}^- et de la densité p_o des trous dans la bande de valence. A un instant t donné, comme la valeur de la densité de trous dépend de l'énergie optique déjà absorbée, nous pouvons distinguer alors trois cas caractéristiques. Cette séparation est réalisée dans le but de suivre plus facilement la dépendance tant en énergie que temporelle du champ de charge d'espace qui nous le rappelons nous permet d'évaluer le transfert d'énergie photoréfractif.

α) Energie absorbée faible

Ce cas correspond soit à une énergie de l'impulsion faible (<0,3 mJ/cm²), soit au début d'une illumination à plus forte énergie. L'évolution temporelle du champ de charge d'espace $E_1^{im} = m\, E_{sc}$ pour une densité d'énergie de 0,1 mJ/cm² a été représentée figure VI.2.A.

Dans ce cas, nous avons $p_o << \frac{\varepsilon\, \varepsilon_o\, k_R\, E_D}{e}$ (environ $10^{15}\,cm^{-3}$) et $p_o << N_{Do}^-$. N_{Do}^- peut être approximé par la concentration de donneur superficiels N_{DS}^+ (relation VI.10). L'équation (VI.14) devient alors:

$$E_1^{im}(t) \simeq \frac{e}{\varepsilon\, \varepsilon_o\, k_R}\, N_{D1}^- \qquad \text{(VI.15)}$$

et la variation de la modulation N_{D1}^- (équation VI.8) peut s'écrire plus simplement :

$$\frac{\partial N_{D1}^-}{\partial t} \simeq \left(\left(N_D - N_{DS}^+\right) S_p - N_{DS}^+\, S_n\right) m\, \frac{I}{h\upsilon} \qquad \text{(VI.16)}$$

Par conséquent la modulation des ions N_{D1}^- et le champ de charge d'espace E_1^{im} augmentent proportionnellement à $\int I dt$, l'intégrale de l'impulsion lumineuse au cours du temps. Ceci est clairement observé sur le résultat exact de notre simulation figure VI.2.A. Cela apparait aussi dans le cas d'une énergie plus importante (figure VI.2.B) pour un temps inférieur à 4 ns.

Il est à remarquer que dans ce cas, après l'impulsion le champ de charge d'espace atteint une valeur stationnaire et que cette valeur augmente linéairement avec l'énergie.

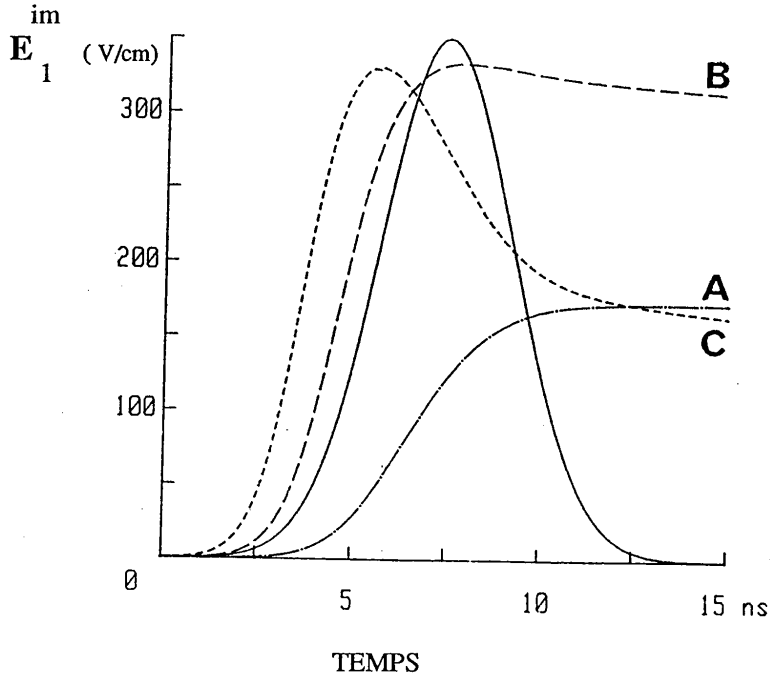


Figure VI-2 : Evolution temporelle du champ de charge d'espace $E_1^{im} = m\ Esc$ pour trois cas d'énergie absorbée A : $E = 0{,}1\ mJ/cm^2$; B : $E = 1\ mJ/cm^2$ et C : $E = 4\ mJ/cm^2$

les paramètres utilisés sont issus de la table II-1 .

Comme le gain photoréfractif par unité de longueur d'interaction Γ est proportionnel à $E_1^{im} = m\, E_{sc}$, il suit la même évolution avec l'énergie optique absorbée.

β) Energie absorbée intermédiaire

Sur la figure VI.2.B est représentée l'évolution temporelle du champ de charge d'espace pour une densité d'énergie de 1 mJ/cm² correspondant au cas d'une énergie absorbée intermédiaire.

Au début de l'impulsion, p_o est faible et les hypothèses du cas α) sont encore valables. L'expression de $E_1^{im}(t)$ est encore donnée par la relation (VI.15). Puis lorsque l'énergie absorbée devient plus grande, la densité des trous p_o augmente et vérifie : $\varepsilon\, \varepsilon_o k_R \dfrac{E_D}{e} \ll p_o \ll N_{Do}^-$. L'équation (VI.14) est changée en l'expression :

$$E_1^{im}(t) = + \frac{N_{D1}^-}{p_o} E_D \qquad \text{(VI.17)}$$

La variation temporelle de la modulation des ions N_{D1}^- reste la même (équation VI.16) et celle de p_o (équation VI.3) peut se simplifier (si l'on néglige la recombinaison des trous $\tau_{RD} \gg T_L$) en la relation :

$$\frac{\partial p_o}{\partial t} \simeq \left(N_D - N_{DS}^+\right) S_p \frac{I}{h\upsilon} \qquad \text{(VI.18)}$$

D'après ces deux équations (VI.16 et VI.18) nous voyons que N_{D1}^- et p_o évoluent tous deux comme $\int I dt$ l'intégrale de l'impulsion.

Ainsi le champ de charge d'espace $E_1^{im}(t)$ et donc le gain photoréfractif Γ demeurent constant pendant et après l'impulsion,

quelque soit l'énergie (voir figure VI.2.B. pour t > 7 ns).

Remarque : Grossièrement N_{D1}^- peut être approximé par $N_{D1}^- \simeq m\ p_o \left(1 - \frac{S_n}{S_p} \frac{N_D - N_{DS}^+}{N_{DS}^+}\right) \simeq m\ p_o$ et par conséquent pour les valeurs prises (Table II.1) nous avons $E_1^{1m} \simeq m\ E_D \simeq 500$ V/cm. C'est le champ maximal qu'il est possible de photoinduire avec cette modulation.

Pour $4 < t < 7$ ns nous sommes dans un cas entre les deux cas cités α et β et seul le calcul exact montre toute l'évolution du champ de charge d'espace.

γ) Fortes énergies absorbées

Ceci correspond à la figure VI.2.C où la densité d'énergie est de 4 mJ/cm^2. Lorsque l'énergie absorbée est très grande, on assiste à une évolution du champ de charge d'espace différente de celles correspondant aux autres cas α) et β).

Au début de l'impulsion, les conditions α) puis β) sont vérifiées. Lorsque p_o devient important nous avons toujours $\frac{\varepsilon\ \varepsilon_o}{e} k_R E_D << p_o$ mais p_o n'est plus négligeable devant N_{Do}^- (concentration des ions Fe^{2+}) voir même de $N_D - N_{Do}^-$ (concentration des ions Fe^{3+}). Par conséquent dans l'équation d'évolution de $\frac{\partial N_{D1}^-}{\partial t}$ il n'est plus possible de négliger les termes en p_o. Elle s'écrit donc (voir équation VI.8) :

$$\frac{\partial N_{D1}^-}{\partial t} \simeq \left(\left(N_D - N_{DS}^+\right) S_p - N_{DS}^+ S_n - p_o (S_n + S_p)\right) m \frac{I}{h\upsilon} \quad \text{(VI.19)}$$

(nous avons tout simplement remplacé N_{Do}^- par $N_{DS}^+ + p_o$ (équation VI.10).

Dans les cas α et β nous avions négligé p_o devant N_{DS}^+).

De même la variation de p_o s'écrit :

$$\frac{\partial p_o}{\partial t} \simeq \left(N_D - N_{DS}^+ - p_o\right) S_p \frac{I}{h\upsilon} \qquad \text{(VI.20)}$$

La relation (VI.17) reste toujours valable : le champ de charge d'espace $E_1^{im}(t)$ est proportionnel au rapport $\frac{N_{D1}^-}{p_o}$.

Il est important de remarquer que le terme en p_o dans l'équation (VI.19) est opposé au terme principal $\left(N_D - N_{DS}^+\right) S_p$ (l'autre terme est négligeable car $S_p >> S_n$). Lorsque p_o croît, la valeur de N_{D1}^- décroît de plus en plus. N_{D1}^- n'est plus proportionnel à $\int I dt$. Le rapport $\frac{N_{D1}^-}{p_o}$ diminue à forte énergie et par conséquent le champ de charge d'espace aussi (voir figure VI.2.C. pour t > 7 ns). Il en est donc de même pour le gain photoréfractif Γ. L'évolution temporelle du champ de charge d'espace $\left(E_1^{im}(t) = m\, E_{sc}(t)\right)$ selon l'énergie déduite de nos simulations peut maintenant être facilement expliquée. Ceci nous permet de comprendre la dépendance en énergie du gain de couplage par unité de longueur d'interaction Γ et donc celle du gain relatif de couplage $G_{pr} = e^{+\Gamma \ell}$.

- Aux faibles énergies (<0,3 mJ/cm ^{2} figure VI.2.A.) les conditions du cas α) sont parfaitement remplies. E_1^{im} croît comme l'intégrale de l'impulsion $\int I dt$ et reste constant à la fin de l'impulsion. En fait les simulations montrent qu'il décroît très lentement et faiblement à cause de la recombinaison des trous ce que nous avions négligé, nous intéressant à ce qui se passe durant l'impulsion pour notre échelle de temps. Le gain relatif de couplage G_{pr} (équation III-17) est effectivement déterminé par la

valeur de Γ (donc par celle de $E_1^{im}(t) = m\, E_{sc}(t)$ voir équation III-23) prise à peu près au milieu de l'impulsion. La valeur de G_{pr} dans ce cas est faible et croît linéairement avec l'énergie.

Dans le cas des énergies absorbées intermédiaires ($\simeq$ 1 mJ/cm^2 figure VI.2B), nous sommes, au tout début de l'impulsion, encore dans le cas α) ; le champ de charge d'espace $E_1^{im}(t)$ augmente puis sature lorsque la condition β) est vérifiée. Le maximum de E_1^{im} est atteint plus rapidement et la saturation avec l'énergie absorbée correspond à un maximum atteint au milieu de l'impulsion. Par suite le gain relatif de couplage G_{pr} va croître avec l'énergie absorbée jusqu'à ce que la saturation de $E_1^{im}(t)$ soit atteinte. La valeur maximale alors du champ de charge d'espace est alors égale à $m\, E_D$ (E_D champ de diffusion) soit environ 500 V/cm.

- Energies fortes ($\geqslant$ 2 mJ/ cm^2 , figure VI.2.C), au tout premier commencement de l'impulsion nous sommes dans le cas α) ; Le champ de charge d'espace, $E_1^{im}(t)$ cependant croît très rapidement parce que l'énergie absorbée est très vite élevée. Or la concentration des trous dans la bande de valence p_o augmente très vite aussi et la condition β) est atteinte très tôt. Ceci a pour conséquence que le champ de charge d'espace atteint son maximum bien avant le sommet de l'impulsion. Ensuite, lorsque p_o devient très grand les conditions γ) à leur tour sont vérifiées et donc $E_1^{im}(t)$ chute. Si cela est réalisé avant le sommet de l'impulsion, le gain de couplage G_{pr} mesuré pendant l'impulsion décroît avec l'énergie.

Remarque : le maximum du champ de charge d'espace est toujours obtenu sous la condition β). Ce maximum est d'ailleurs identique à haute énergie et à énergie intermédiaire (figures VI.2 B et C).

VI.3. COMPARAISON AVEC LES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Si le résultat de nos simulations effectuées à partir des paramètres de la Table II.1 rend à peut près compte de la variation du gain relatif de couplage G_{pr}, l'amplitude obtenue ne correspond pas à nos résultats expérimentaux. Nous avons effectué d'autres simulations afin d'ajuster les différents paramètres du matériau pour obtenir un meilleur accord. La figure VI.3 représente à la fois nos résultats expérimentaux (gain relatif de couplage G_{pr} en fonction de la densité d'énergie E_c au centre du cristal ce qui correspond à la figure IV.8, cas de l'amplification) et aussi ceux déduits de nos simulations. La courbe 1 est celle menée à partir des paramètres de la table II-1 ; on s'aperçoit effectivement que le gain calculé est trop important. On peut aussi observer une décroissance avec l'énergie qui est difficilement visible dans notre expérience.

Dans le régime d'énergie intermédiaire ou forte ($E \geqslant 1 mJ/cm^2$), nous avons montré que les variations de la modulation des ions N_{D1}^- pouvait se simplifier en les expressions (VI.16) ou (VI.19). Son amplitude est donc déterminée par la concentration des ions fer, soit $[Fe^{3+}]_{eq.} = N_D - N_{DS}^+$ et $[Fe^{2+}]_{eq.} = N_{DS}^+$. Elle est aussi fortement dépendante des sections efficaces de photoionisation S_n et S_p (des électrons et des trous respectivement). Nous avons vu de même, que le champ de charge d'espace $E_1^{im}(t)$ (donc le gain Γ de couplage par unité de longueur d'interaction) était proportionnel au rapport $\frac{N_{D1}^-}{p_o}$. Afin de réduire le gain relatif de couplage G_{pr}, c'est à dire Γ, nous avons réduit l'influence des trous et augmenté celle des électrons. Ce raisonnement d'ailleurs confirme notre choix de modèle de transport de charge à deux types de porteurs.

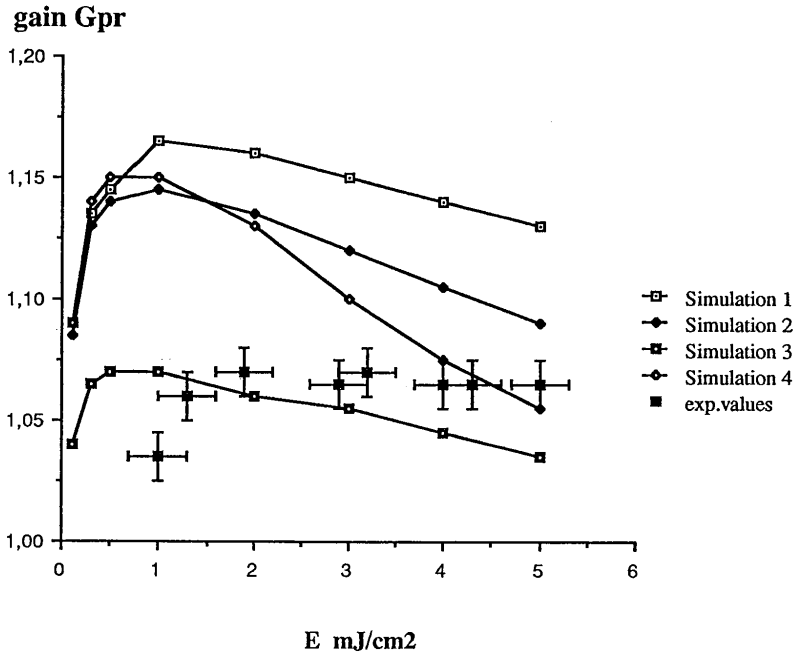


Figure VI-3 : Résultats expérimentaux du gain relatif de couplage G_{pr} en fonction de la densité d'énergie E et résultats déduits de nos simulations numériques

- Simulation 1 paramètres table II-1
- Simulations 2 ,3 et 4 paramètres table VI-1

Les différentes grandeurs S_p, S_n, N_S^+ et $N_D - N_{DS}^+$ n'étant pas connues avec une grande précision, nous nous sommes autorisés à les faire varier légèrement. Cependant ces valeurs doivent respecter celle mesurée du coefficient d'absorption linéaire ($a^{1.06} \simeq 1,95 \pm 0,05\ cm^{-1}$). Nous rappelons l'expression de ce coefficient donnée au chapitre V :

$$a^{1.06} = S_p [Fe^{3+}]_{eq.} + S_n [Fe^{2+}]_{eq.} \qquad (VI.17)$$

soit encore en fonction de N_D et N_{DS}^+ :

$$a^{1.06} = S_p \left(N_D - N_{DS}^+ \right) + S_n \ N_{DS}^+ \qquad (VI.21)$$

La table VI.1 résume les valeurs des sections efficaces de photoionisations S_n, S_p et des concentrations des ions Fe^{2+} et Fe^{3+} à l'équilibre que nous avons choisies pour réaliser les simulations 2, 3 et 4. Les variations correspondantes du gain G_{pr} relatif de couplage en fonction de la densité d'énergie E sont représentées figure VI.3.

Pour la simulation 2, nous avons réduit S_p d'un facteur 2, augmenté S_n d'un facteur 6 et enfin accru $[Fe^{3+}]_{eq.}$ d'un facteur 1,75. Le gain relatif de couplage ainsi calculé reste encore trop important. Cette différence peut être partiellement expliquée par la structure temporelle de l'impulsion. En effet, pour une durée d'impulsion (largeur à mi-hauteur) de 5 ns (valeurs que nous avons prises pour nos simulations) la longueur de cohérence était de l'ordre de 3 cm (voir début chapitre IV le principe de cette mesure) ; ceci correspond à un temps de 0,1 ns.

Ainsi, s'il existe une petite différence de chemin optique entre les faisceaux sonde et pompe, la modulation des franges d'interférence chute et il en est de même pour le champ de charge d'espace. Le gain relatif de couplage est encore plus réduit. En

	Simulation 2	Simulation 3	Simulation 4
s_n (cm^2)	$2.5\ 10^{-17}$	$2\ 10^{-17}$	$1.3\ 10^{-17}$
s_p (cm^2)	$2.5\ 10^{-17}$	$2\ 10^{-17}$	$1.1\ 10^{-16}$
$[Fe^{3+}]$ (cm^{-3})	$7\ 10^{16}$	$7\ 10^{16}$	$1.7\ 10^{16}$
$[Fe^{2+}]$ (cm^{-3})	10^{16}	$3\ 10^{16}$	$2\ 10^{15}$

Table VI-1 : Paramètres du cristal d'InP:Fe utilisés dans nos simulations 2 , 3 et 4 .

effet, lorsque nous avons déduit l'expression du gain de couplage Γ par la théorie des ondes couplées (équation III-18), nous avions supposé l'interaction de deux ondes totalement cohérentes entre elles. Finalement la part réelle de l'énergie qui participe à l'effet photoréfractif est moins grande que l'énergie totale de l'impulsion. De plus, comme nous l'avons déjà signalé (chapitre V paragraphe 2.a) l'impulsion possède une queue assez longue (4 % de l'intensité crête après 20 ns, 1 % après 100 ns et 0,3 % après 1μs) et la mesure de l'énergie avec un calorimètre intègre toute l'énergie. La forme Gaussienne de l'impulsion choisie dans nos programmes de simulations n'en tient pas compte.

L'énergie qui contribue à l'effet photoréfractif est donc nettement inférieure à l'énergie totale mesurée. Cela peut expliquer d'une part la différence des valeurs du gain calculées et d'autre part le décalage en énergie des courbes expérimentales et théoriques, ainsi que la non observation de la diminution à haute énergie (une diminution de l'énergie décalerait la courbe simulation 2 vers le bas et vers la droite et nous donnerait un meilleur résultat).

Pour la simulation 3, (figure VI-3), nous avons augmenté la concentration des ions Fe^{2+} $\left(N_{Ds}^{+}\right)$ à l'équilibre d'un facteur trois. Nous obtenons une allure similaire de la variation du gain relatif de couplage G_{pr} selon la densité d'énergie, mais les valeurs de G_{pr} sont plus faibles.

Enfin, nous avons réalisé une dernière simulation (simulation 4, figure VI.3) avec des valeurs de sections efficaces de photoionisation prises dans la littérature [93], qui sont nettement plus grandes. Les concentrations des ions Fe^{2+} et Fe^{3+} à l'équilibre ont été déduites de ces valeurs et de nos mesures du coefficient d'absorption linéaire (nous avons considéré que

$[Fe^{3+}] > [Fe^{2+}]$, comme l'a déjà confirmé notre étude de l'absorption non linéaire). Les valeurs de ces concentrations ne sont plus en accord avec celles que nous a donné le CNET Lannion [77] et conduisent à une décroissance du gain G_{pr} avec l'énergie encore plus nettement prononcée, ce qui n'a pas été observé.

L'influence des mobilités des porteurs de charge (μ_n et μ_p) a été étudiée. Prendre des mobilités supérieures à celles choisies précédemment (Table II-1), ne change pratiquement rien (l'équation VI.14 n'est que mieux vérifiée). Avec une mobilité des électrons plus faibles nous obtenons aussi le même résultat. Si nous diminuons la mobilité des trous par un facteur 2 ou 3 nous obtenons environ un gain de couplage relatif identique à basse énergie mais une décroissance de ce gain à haute énergie trop prononcée. Ce comportement selon l'énergie n'est pas en accord avec nos résultats expérimentaux.

VI.4. CONCLUSION

En conclusion deux types de porteurs de charge, électrons et trous doivent être pris en compte dans le modèle de transport de charge régissant l'effet photoréfractif. L'évolution temporelle et le rôle des différentes grandeurs importantes ont été expliqués en utilisant des simplifications appropriées.

Nous avons déduit de cette étude un ensemble de paramètres (tables II.1 et VI.1) donnant un assez bon accord entre nos expériences et nos simulations. Nous avons aussi regardé l'influence des concentrations en ions Fe^{2+}, Fe^{3+} ainsi que celle des mobilités des porteurs de charge et celle des sections efficaces de photoionisation sur le gain relatif de couplage qui caractérise le transfert d'énergie photoréfractif.

CONCLUSION GENERALE

Nous avons réalisé une étude théorique et expérimentale de deux effets non linéaires (effet photoréfractif et absorption induite) dans un cristal d'InP:Fe et de l'effet photoréfractif dans un cristal de GaAs:Cr. Nous avons également présenté et vérifié les symétries particulières de l'effet photoréfractif. Notre étude en régime d'excitation nanoseconde a démontré que le temps d'établissement de cet effet est très court dans ces deux cristaux, ce qui était prévisible (matériaux possédant de grandes mobilités des porteurs de charge).Pour expliquer et analyser ces phénomènes, nous avons développé des modèles théoriques où deux types de porteurs de charge (électrons et trous) sont impliqués. Notre compréhension de ces mécanismes nous conduit à croire que l'utilisation d'impulsions de durée picoseconde permettrait d'obtenir des résultats équivalents mais avec des temps caractéristiques mille fois plus courts.

De larges perspectives pour la réalisation de composants optiques très rapides sont ouvertes. De plus, la gamme de longueur d'onde utilisée (proche infrarouge) rend ces matériaux de base de l'optoélectronique particulièrement intéressant pour des applications dans le domaine des communications optiques.

Outre l'intérêt d'étudier ces semiconducteurs en vue des applications , notre étude de l'effet photoréfractif et de l'absorption non linéaire en régime d'excitation nanoseconde, nous a permis de comprendre les mécanismes de redistribution de charges dans les niveaux d'impureté et d'estimer plusieurs paramètres importants de notre échantillon d'InP:Fe.

[1] A. Ashkin, G.D. Boyd, J.M. Dziedzic, R.G. Smith, A.A. Ballman, J.J. Levinqstein, K. Nassau, "Optically-induced refractive index inhomoqeneities in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$", Appl. Phys. Lett., Vol. 9, n° 1, p. 72 (1966).

[2] J.P. Huignard, G. Roosen, "Photorefractive Materials for Optical Processinq", Ed. C. Flytzanis and J.L. Oudar, Springer-Verlaq, Berlin, p. 128, (1986).

[3] J.P. Huignard, H. Rajbenbach, Ph. Refrégier, L. Solymar, "Wave mixing in photorefractive bismuth silicon oxide crystals and its applications", Opt. Eng., Vol. 24, n° 4, p. 586 (1985).

[4] Topics in Applied Physics, Vol. 61, "Photorefractive materials and their Applications II", (Fundamental Phenomena), Physics, Vol. 62 "Photorefractive materials and their Applications II, (Applications) , Ed. P.Günter, J.P.Huignard, Springer-Verlaq, Berlin (1989).

[5] H. Rajbenbach, J.P. Huignard, B. Loiseaux, Spatial frequency dependence of energy transfer in two-wave mixing experiments with BSO crystals", Opt. Comm., Vol. 48, n° 4, p. 247 (1983).

[6] R.B. Bylsma, A.M. Glass, D.H. Olson, "Optical signal amplification at 1.3 μm by two-wave mixing in InP:Fe", Elect. Lett., Vol. 24, n° 6, p. 360 (1988).

[7] B. Imbert, H. Rajbenbach, S. Mallick, J.P. Herriau, J.P. Huignard, "High photorefractive gain in two-beam coupling with moving fringes in GaAs:Cr Crystals", Opt. Lett., Vol. 13, n° 4, p. 327, (1988).

[8] A. Yariv, IEEE, J. Quant. Elect., Vol. 14, p. 650 (1978).

[9] A. Erdmann, G. Hesse, R. Kowarsckik, L. Wenke, "Optimized Phase Conjugating Mirror for Interferometric Arrangements", Exp. Technik der Phys., Vol. 35, n°4, p. 225 (1987).

[10] J. Feinberg, R.W. Hellwarth, "Phase-conjugating mirror with continuous-wave gain", Opt. Lett., Vol. 5, n° 12, p. 519, (1980).

[11] J.O. White, M. Cronin-Golomb, B. Fisher, A. Yariv, "Coherent oscillation by self-induced gratings in the photorefractive crystal $BaTiO_3$", Appl. Phys. Lett., Vol. 40, n°6, p. 450, (1982).

[12] R.K. Jain, G.J. Dunning, "Spatial and temporal properties of a continuous-wave phase conjugate resonator based on the photorefractive crystal $BaTiO_3$", Opt. Lett., Vol. 7, n° 9, p.420 (1982).

[13] J. Feinberg, G.D. Bacher, "Phase-locking lasers with phase conjugation", Appl. Phys. Lett., Vol. 48, n° 9, p. 570 (1986).

[14] P. Yeh, "Theory of unidirectional photorefractive ring oscillators", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 2, n° 12, p. 1924 (1985).

[15] G.Pauliat, P.Günter, "Coherent light oscillators with photorefractive $KNbO_3$ crystals ", Opt.Comm., Vol.66, n°5,6, p 317,(1988) .

[16] H. Rajbenbach, B.Imbert, J.P. Huignard, S. Mallick, "Near-infrared four-wave mixing with gain and self-starting oscillators with photorefractive GaAs, "Opt. Lett., Vol. 14, n° 1, p. 78, (1989).

[17] J.W. Goodman, F.I. Leonberger, S.Y. Kung, R.A. Athale, Proceeding for the IEEE, Vol. 72, n° 7 (1984).

[18] G. Pauliat, J.P. Herriau, A. Delboulbé, G. Roosen, J.P. Huignard, "Dynamic beam deflection using photorefractive gratings in $Bi_{12}SiO_{20}$ crystals", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 13, n° 2, p. 306, (1986).

[19] J.P. Huignard, F. Micheron, "High sensitivity read-write volume holographic storage in $Bi_{12}SiO_{20}$ and $Bi_{12}GeO_{20}$ crystals", Appl. Phys. Letters, Vol. 29, n° 9, p. 591, (1976).

[20] S.L. Hou, D.S. Oliver,"Pockels readout optical memory using in $Bi_{12}SiO_{20}$", Appl. Phys. Lett., Vol. 18, n° 8, p. 325 (1971).

[21] F.S. Chen, J.T. LaMacchia, D.B. Fraser, "Holographic Storage in Lithium Niobate", Appl. Phys. Lett., Vol. 13, n° 7, p. 223 (1968).

[22] N.V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M.S. Soskin, V.L. Vinetskii, "Holographic Storage in electrooptic crystals.I.Steady state", Ferr., Vol. 22, pp. 949-960, (1979).

[23] D.L. Staebler, J.J. Amodei, "Coupled-Wave Analysis of Holographic Storage in $LiNbO_3$ ", J. Appl. Phys., Vol. 43, n° 3, p. 1042, (1972).

[24] P. Yeh, T.Y. Chang, P.J. Beckwith, "Real-time optical image substraction using dynamic holographic interference in photorefractive media", Opt. Lett., Vol. 13, n° 7, p. 586 (1988).

[25] J. Feinberg, "Real-time edge enhancement using the photorefractive effect", Opt. Lett. , Vol. 5 , n° 8 , p.330 (1980).

[26] J.O. White, A. Yariv, "Real-time image processing via four-wave mixing in a photorefractive medium", Appl. Phys. Lett., Vol. 37, n° 1, p. 5, (1980).

[27] G. Gheen, L.J. Cheng, "Image processing by four-wave mixing in photorefractive GaAs", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, n° 19, p. 1481 (1987).

[28] L.J. Cheng, G. Gheen, M.F. Rau, F.C. Wang, "Image transfer in photorefractive GaAs", J. Appl. Phys., Vol. 62, n° 9, p. 3991 (1987).

[29] J.P. Huignard, J.P. Herriau, "Real-time coherent object edge reconstruction with $Bi_{12}Si_{20}$ crystals", Appl. Optics, Vol. 17, n° 17, p. 2671 (1978).

[30] V. Hornung-Lequeux, P. Lalanne, G. Roosen, "Photorefractive wave mixing in $BaTiO_3$ for graded neurons with gain and signal binarization", Opt. Comm., Vol. 73, n°1, p. 12 (1989).

[31] N.A. Vainos, J.A. Khoury, R.W. Eason, "Real-time parallel optical logic in photorefractive bismuth silicon oxide", Opt. Lett., Vol. 13, n° 6, p. 503, (1988).

[32] L. Pichon, J.P. Huignard, "Dynamic joint-Fourier transform correlator by Bragg diffraction in photorefractive $Bi_{12}SiO_{20}$ crystals", Opt. Comm., Vol. 36, n° 4, p. 277 (1981).

[33] N.A. Vainos, "Real-time optical Wiener-Kolmogorov and novelty filtering with phase conjugation", Opt. Lett., Vol. 14, n° 2, p. 128, (1989).

[34] A. Marrakchi, "Photorefractive spatial light modulation based on enhanced self-diffraction in sillenite crystals", Opt. Lett., Vol. 13, n° 8, p. 654, (1988).

[35] L.J. Cheng, T.H. Chao, H.K. Liu, A. Partovi, J. Katz, E.M. Garmire, "Spatial light modulation by beam-coupling in GaAs crystals", Opt. Lett., Vol. 12, n° 9, p. 705, (1987).

[36] L.J. Cheng, G. Gheen, "Matrix-vector multiplication in thin photorefractive GaAs crystals", Appl. Opt., Vol. 27, n° 20, p. 4236 (1988).

[37] F.S. Chen, "A laser-induced inhomogeneity of refractive indices in KTN", J. Appl. Phys., Vol. 38, n° 8, p. 3418, (1967).

[38] P. Günter, A. Krumins, "High sensitivity read-write volume holographic storage in reduced $KNbO_3$ crystals", Appl. Phys., Vol. 23, p. 199 (1980).

[39] R.L. Townsend, J.T. LaMacchia, "Optically Induced Refractive Index Changes in $BaTiO_3$", J. Appl. Phys., Vol. 41, n° 13, p. 5188 (1970).

[40] G. Pauliat, J.M.C. Jonathan, M. Allain, J.C. Launay , G. Roosen, "Determinations of the photorefractive parameters of $Bi_{12}GeO_{20}$ crystals using transient grating analysis", Opt. Comm., Vol. 59, n° 4, p. 266 (1986).

[41] G. Pauliat, M. Allain, J.C. Launay, G. Roosen, "Optical evidence of a photorefractive effect due to holes in $Bi_{12}GeO_{20}$ crystals", Opt. Comm., Vol. 61, n° 5, p. 321 (1987).

[42] C. Besson, J.M.C. Jonathan, A. Villing, G. Roosen, "Nonlinear Optical Materials", SPIE 1017, 183 (1988), Proceedings ECO1, Hamburg.

[43] C. Besson , J.M.C. Jonathan , A. Villing, G. Pauliat, G. Roosen, Optics Letters accepté pour publication (1989).

[44] G. Le Saux, G. Roosen, A. Brun, "Nanosecond light energy transfer in $Bi_{12}SiO_{20}$ at 532 nm", Opt. Comm., Vol. 58, n° 4, p. 238, (1986) ; "Observation and analysis of the fast photorefractive process in BSO", Opt. Comm., Vol. 56, n° 6, p. 374 (1986).

[45] G. Le Saux, A. Brun, "Photorefractive Material Response to Short Pulse Illumination", IEEE, J. Quant. Elect., Vol. 23, n° 10, p. 1680 (1987).

[46] J.M.C. Jonathan, G. Roosen, Ph. Roussignol, "Time-resolved build-up of a photorefractive grating induced in $Bi_{12}SiO_{20}$ by picosecond light pulses", Opt. Lett., Vol. 13, p. 224 (1988).

[47] A.M. Glass, A.M. Johnson, D.H. Olson, W. Simpson and A.A. Ballman, "Four-wave mixing in semi-insulating InP and GaAs using the photorefractive effect", Appl. Phys. Lett., Vol. 44, n° 10, p. 948 (1984).

[48] A.M Glass, M.B. Klein, G.C. Valley, "Photorefractive determination of the sign of photocarriers in InP and GaAs", Elect. Lett., Vol. 21, n° 6, p. 220 (1985).

[49] J. Strait, A.M. Glass, "Time-resolved photorefractive four-wave mixing in semiconductors materials", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 3, n° 21, p. 342 (1986).

[50] J.C. Fabre, J.M.C. Jonathan, G. Roosen, $\bar{4}3$ m photorefractive materials in energy transfer experiments", Opt. Comm., Vol. 65, n° 4, p. 257 (1988) ; "Photorefractive beam coupling in GaAs and InP generated by nanosecond light pulses", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 5, n° 8, p. 1730 (1988).

[51] B. Mainguet, "Characterization of the photorefractive effect in InP:Fe by using two-wave mixing under electric fields", Opt. Lett., Vol. 13, n°8, p. 657 (1988).

[52] P. Gravey, G. Picoli, J.Y. Labandibar, "Stabilization of photorefractive two-beam coupling in InP:Fe under high fields by temperature control", Opt. Comm., Vol. 70, n° 3, p. 190 (1989).

[53] M.B. Klein, "Beam coupling in undoped GaAs at 1.06 μm using the photorefractive effect", Opt. Lett., Vol. 9, n° 8, p. 350, (1984).

[54] G.C. Valley, A.L. Smirl, M.B. Klein, "Picosecond photorefractive beam coupling in GaAs", Opt. Lett., Vol. 11, n° 10, p. 647 (1986).

[55] G. Albanese, J. Kumar, W.H. Steier, "Investigation of the photorefractive behavior of chrome-doped GaAs by using two-beam coupling", Opt. Lett., Vol. 11, n° 10, p.650 (1986).

[56] A. Partovi, E.M. Garmire, L.J. Cheng, "Enhanced beam coupling modulation using the polarization properties of photorefractive GaAs", Appl. Phys. Lett., Vol. 51, n° 5, p. 299 (1987).

[57] J. Kumar, G. Albanese, W.H. Steier, "Measurements of two-wave mixing in GaAs with a moving grating", Opt. Comm., Vol. 63, n° 3, p. 191 (1987).

[58] K. Walsh, T.J. Hall, R.E. Burge, "Influence of polarization state and absorption gratings on photorefractive two-wave mixing in GaAs", Opt. Lett., Vol. 12, n° 12, p. 1026 (1987).

[59] L.J. Cheng, P. Yeh, "Cross-polarization beam coupling in photorefractive GaAs crystals", Opt. Lett., Vol. 13, n° 1, p. 50 (1988).

[60] A.L. Smirl, G.C. Valley, K.M. Bohnert, T.F. Boggess, "Picosecond Photorefractive and Free-Carrier transient energy transfer in GaAs at 1 μm", IEEE, Vol. 24, n° 2, p. 289 (1988).

[61] G.C. Valley, A.L. Smirl, "Theory of Transient Energy Transfer in Gallium Arsenide", IEEE, Vol. 24, n° 2, p. 304 (1988).

[62] T.Y. Chang, A.E. Chiou, P. Yeh, "Cross-polarization photorefractive two-beam coupling in gallium arsenide", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 5, n° 8, p. 1724 (1988).

[63] S.G. Bishop, "Deep Centers in Semiconductors, A state of the Art Approach", ed. S.T. Pantelides, Gordon and Breach, New York, Vol. 541, (1986).

[64] D.C. Look, "Model for Fe^{2+} intra center-induuced photoconductivity in InP:Fe", Phys. Review B, Vol. 2, n° 10 p. 4160 (1979).

[65] S.G. Bishop, P.B. Klein, R.L. Henry, B.D. Mc Combe, "Semi-insulating III-V Materials", ed. G.J. Reeves, Shiva, Orpington, p. 261, (1980).

[66] J.S. Blakemore, "Semi-insulating III-V Materials", ed. G.J. Reeves, Shiva, Orpington, p. 29, (1980).

[67] B. Clerjaud, "Transition-metal impurities in III-V compounds " , J. Phys. C : Solid State Phys. , Vol. 18, p. 3615 (1985).

[68] D.C. Look, S. Chaudhuri, L. Eaves, "Positive Identification of the Cr^{4+} Cr^{3+} Thermal Transition in GaAs", Phys. Rev. Lett., Vol. 49, n° 23, p. 1728 (1982).

[69] N.V. Kukhtarev, "Kinetics of hologram recording and erasure in electrooptic crystals", Sov. Tech. Phys. Lett. 2, p. 438, (1976).

[70] G.P. Pettit and W.J. Turner, "Refractive index of InP", J. Appl. Phys., Vol. 36, n° 6, p. 2081, (1965).

[71] D.T.F. Marple, "Refractive index of GaAs", J. Appl. Phys., Vol. 35, n° 4, p. 1241 (1964).

[72] N. Suzuki, K. Tada, "Electrooptic Properties and Raman Scattering in InP", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 23, n° 3, p. 291 (1984).

[73] M. Sugie, K. Tada, "Measurements of the Linear Electrooptic Coefficients and Analysis of the Nonlinear Susceptibilities in cubic GaAs and Hexagonal CdS", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 15, n° 3, p. 421, (1976).

[74] S.M. Sze, Physics of Semiconductors Devices (Wiley New-York) p. 849.

[75] K.S.Champling, R.J. Erlandson, G.H. Glover, P.S. Hauge, T.Lu , "Search for resonance behavior in the microwave dielectric constant of GaAs", Appl. Phys. Lett., Vol. 11, n° 11, p. 348 (1967).

[76] G. Bremond, G. Guillot, A. Nouailhat, "Spectres de sections efficaces absolues de photoionisations des ions de transition 3d dans InP", Rev. Phys. Appl., Vol. 22, p. 873 (1987).

[77] B. Lambert, Y. Toudic, H. Coquillet, CNET Lannion, France, Communication privée .

[78] G.P. Martin, G. Jacob, J.P. Hallais, F. Grainger, J.A. Roberts, B. Clegg, P. Blood, G. Poiblaud, "Oxygen-related gettering of silicon during growth of bulk GaAS Bridgman crystals", J. Phys. C : Solid State Phys., Vol. 15, p. 1841 (1982).

[79] H. Mathieu, Physique des semiconducteurs et des composants électroniques, ed. Masson Paris, chapitres 1 et 4 (1987).

[80] H. Kogelnik, "Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings", Bell Syst. Techn. J., Vol. 48, n° 9, p. 2909 (1969).

[81] L. Solymar, J.M. Heaton, "Transient energy transfert in photorefractive materials ; an analytic solution", Opt. Comm., Vol. 51, n° 2, p. 76 (1984).

[82] R. Magnusson, T.K. Gaylord, "Use of dynamic theory to describe experimental results from volume holography", J. Appl. Phys., Vol. 47, n° 1, p. 190 (1976).

[83] J.M. Heaton, L. Solymar, "Transient energy transfer during hologram formation in photorefractive crystals", Optica Acta, Vol. 32, n° 4, p. 397 (1985), "Transient effects during dynamic hologramme formation in BSO crystals : theory and experiment", IEEE, Vol.24, n°3, p. 558 (1988).

[84] N. Kukhtarev, V. Markov, S. Odulov, "Transient energy transfer during hologram formation in $LiNbO_3$ in external electric field", Opt. Comm., Vol. 23, n° 3, p. 338 (1977).

[85] J. Goltz, F. Laeri, T. Tschudi, "Transient index grating formation in photorefractive crystals : an analytical treatment", Optik, Vol. 71, n° 4, p. 163 (1985).

[86] D.R. Erbschloe, T. Wilson, "A simple analytic solution for transient two-wave mixing in photorefractive materials", Opt. Comm., Vol. 72, n° 1,2, p. 135 (1989).

[87] P.U. Halter, J.C. Fabre and G. Roosen, "Induced nanosecond absorption in InP:Fe", Submitted to IEEE, Journ. Quantum Elect.

[88] G. Bremond, A. Nouilhat, G. Guillot, B. Cockayne, "Fe Deeps Level Optical Spectroscopy in InP", Solid State Comm., Vol. 41, n° 6, p. 477 (1982).

[89] J.Y. Moisan, CNET Lannion, Communication privée .

[90] F.P. Strohkendl, J.M.C. Jonathan, R.W. Hellwarth, "Hole-electron competition in photorefractive gratings" Opt. Lett., Vol. 11, n° 5, p. 312 (1986).

[91] G.C. Valley, S.W. Mc Cahan, M.B. Klein, "Photorefractive measurement of photoionization and recombination cross sections in InP:Fe", J. Appl. Phys., Vol. 64, n°12, p. 6684 (1988).

[92] J.C. Fabre, E. Brotons, P.U. Halter, J.M.C. Jonathan and G. Roosen, "Theoretical analysis of nanosecond photorefractive wave mixing in InP:Fe", Submitted to IEEE, Journ. Quantum Elect. , "Analysis of the energy dependence of the photorefractive gain in nanosecond wave mixing in semi-conductor crystals", The International Congress on Optical Science and Engineering, ECO 2, Paris 1989, Proceed. SPIE Nonlinear Materials II, Vol. 1127, 1989.