



HAL
open science

Etude des propriétés photoréfractives des oxydes de bismuth silicium et germanium en régime d'excitation nanoseconde : photoconduction, holographie dynamique, couplage d'onde

Gilles Le Saux

► **To cite this version:**

Gilles Le Saux. Etude des propriétés photoréfractives des oxydes de bismuth silicium et germanium en régime d'excitation nanoseconde : photoconduction, holographie dynamique, couplage d'onde. Optique [physics.optics]. Université Paris Sud - Paris XI, 1984. Français. NNT : . pastel-00716163

HAL Id: pastel-00716163

<https://pastel.hal.science/pastel-00716163>

Submitted on 10 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.

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée

Pour obtenir

Le TITRE de DOCTEUR en Sciences

Arrêté du 5/7/1984

PAR

Gilles LE SAUX

SUJET : ETUDE DES PROPRIETES PHOTOREFRACTIVES DES OXYDES DE BISMUTH
SILICIUM ET GERMANIUM EN REGIME D'EXCITATION NANOSECONDE :
PHOTOCONDUCTION, HOLOGRAPHIE DYNAMIQUE, COUPLAGE D'ONDE.

soutenue le 1er juillet 1986 devant la Commission d'examen

MM. IMBERT C. Président
BRUN A.
HUIGNARD J.P.
LIZOT M.
Mme RIVOIRE G.

ABSTRACT

We present theoretical and experimental results relative to the photoconductive and photorefractive properties of Bismuth Silicium or Germanium oxyde under nanosecond excitation. The analysis of transient photocurrents induced by the optical pulses permits to measure the electron mobility and life time in the conduction band. We developpe a theoretical model explaining our experimental observations. Its extension to the case of non-uniform illumination leads to the value of the space charge field created in the crystal in two wave mixing experiments. The experimental results, in good agreement with the model's previsions, show a fast response time (in the nanosecond time scale) of these crystals thus permitting to envisage their application to fast optical data storage and processing.

Je suis très sensible à l'honneur que me font Messieurs et Madame les membres du Jury en acceptant de lire et de juger ce mémoire : Monsieur le Professeur C. IMBERT, Directeur de l'Institut d'Optique, qui a accepté de présider le jury de soutenance ; Monsieur le Professeur A. BRUN, Chef du Groupe d'Optique non-linéaire et subpicoseconde, qui a été mon directeur de thèse ; Madame le Professeur G. RIVOIRE, Présidente de l'Université d'Angers, Monsieur J.P. HUIGNARD, Ingénieur Thomson-CSF, Monsieur LIZOT, Ingénieur D.R.E.T..

Je remercie tout particulièrement, Monsieur le Professeur A. BRUN qui a dirigé ces travaux. Sans sa disponibilité, son dévouement et les nombreuses discussions scientifiques toujours fructueuses que nous avons eues, rien n'aurait été possible. Qu'il trouve ici le témoignage sincère d'une amicale reconnaissance.

Je souhaite aussi vivement remercier Messieurs A. VILLING et A. AIDE, pour leurs conseils toujours précieux en électronique ou en mécanique, ainsi que Monsieur M. ALLAIN qui a eu la gentillesse de s'occuper du tirage des photographies, et qui m'a fait bénéficier de ses compétences en informatique.

Je remercie l'ensemble des ateliers de l'Institut d'Optique et en particulier les ateliers du verre, qui ont pris en charge le polissage des cristaux étudiés ; les spectres de transmissions des échantillons ont été réalisés par Monsieur SLUCKI, qu'il en soit remercié.

Je souhaite remercier la D.R.E.T., Division Optique qui a financé cette étude.

Je voudrais dire aussi un grand merci à Mademoiselle N. BONAVENT qui avec dévouement et gentillesse s'est occupée de la frappe et de la mise en page de ce mémoire. Sa rapidité, sa compétence et son efficacité m'ont été d'un grand secours et ont permis à ce manuscrit de voir le jour dans les délais prévus. 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, dès mon arrivée au laboratoire, m'ont fait bénéficier de leurs connaissances, de leur savoir faire, de leurs compétences, et qui m'ont ainsi permis de travailler dans une atmosphère d'émulation et de saine collaboration.

Introduction

Ce mémoire présente les résultats théoriques et expérimentaux obtenus lors de l'étude des propriétés des cristaux photoréfractifs de type $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (BSO) $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ (BGO), en régime d'excitation pulsée nanoseconde. S'il est maintenant couramment admis que l'effet photoréfractif est du à l'établissement d'un champ de charge d'espace créé par déplacement de porteurs de charge photoexcités, les processus d'excitation et de transport de charge sont encore mal connus et font l'objet de nombreuses recherches. La plupart des études réalisées jusqu'à présent ont été effectuées à l'aide d'excitations quasi-continues ou à l'échelle de la microseconde. Les résultats donnés par ces expériences sont importants mais à notre avis encore insuffisants pour décrire totalement les processus conduisant à la création de l'effet photoréfractif.

En utilisant des excitations lumineuses de durée trois nanosecondes, le but recherché est double : d'une part caractériser de manière plus complète les processus responsables de l'effet photoréfractif, et d'autre part, tenter d'atteindre la limite ultime des temps de réponse de ce type de matériaux.

Dans le premier chapitre, nous rappelons le mécanisme régissant l'effet photoréfractif, et décrivons quelques unes des nombreuses applications auxquelles il a donné le jour. Nous présentons ensuite le modèle théorique actuellement utilisé et décrivant les phénomènes observés dans le cas des excitations continues. Enfin, nous analysons les raisons qui nous ont poussé à étudier les cristaux de type BSO et BGO.

Le second chapitre présente les propriétés optiques et électro-optiques du BSO (BGO), ainsi que les conditions de cristallogénèse de certains des cristaux étudiés.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude de la photoconduction en régime d'excitation nanoseconde. Après avoir rappelé la structure énergétique de la bande interdite du cristal, nous présentons les résultats théoriques prévus par un modèle simple issu du modèle proposé par Kukhtarev ne prenant en compte qu'un centre donneur de charge et un centre accepteur. Les résultats obtenus, en désaccord avec les prévisions

.../...

de ce modèle, nous conduisent à développer une nouvelle approche théorique expliquant les processus de transport de charge mis en jeu aussi bien en régime pulsé que continu : nous prenons en considération un nouveau type de centre accepteur.

Enfin, au quatrième chapitre, nous étendons notre modèle en calculant l'amplitude et la cinétique de formation du champ de charge d'espace induit lors d'expériences de mélange à deux ondes. Nous présentons les résultats obtenus dans le cas d'expériences d'enregistrement holographique et de couplage d'ondes et pouvons grâce à notre modèle expliquer le temps de réponse rapide de l'effet photoréfractif.

Chapitre 1

RESUME

=====

Ce chapitre a pour but d'exposer les motivations qui nous ont poussé à entreprendre l'étude des cristaux de BSO et BGO en régime d'excitation nanoseconde.

Après avoir défini l'effet photoréfractif, nous décrivons quelques unes des nombreuses applications existant à ce jour. Nous rappelons ensuite, le modèle théorique développé par Kukhtarev en précisant bien ses limitations et le cadre de ses approximations.

Enfin, nous montrons l'intérêt de l'étude nanoseconde et les raisons du choix des cristaux étudiés : $Bi_{12}SiO_{20}$, $Bi_{12}GeO_{20}$.

1 - L'EFFET PHOTORÉFRACTIF

Un matériau est dit *photoréfractif* s'il possède les deux propriétés suivantes :

- il est *électrooptique*, c'est à dire, que l'on peut modifier son indice de réfraction par application d'un champ électrique ;

- il est *photoconducteur*, placé dans le noir le cristal est isolant, et devient conducteur dès qu'il est éclairé par un rayonnement d'énergie bien choisie.

L'adjonction de ces deux propriétés confère aux matériaux qui les possèdent un potentiel d'applications considérables, notamment dans les domaines de l'optique cohérente [1...4], du traitement d'image [5,6], des télécommunications optiques [7]. Il est en effet possible en utilisant une onde optique de modifier localement l'indice de réfraction du milieu donc d'y enregistrer des réseaux de phase, et ce de façon réversible.

Le mécanisme de base est le suivant : le flux lumineux incident sur le cristal ayant une fréquence bien choisie fournit à un porteur de charge l'énergie nécessaire pour parvenir dans la bande de conduction où il peut se déplacer, ou par diffusion, ou sous l'action d'un champ externe. Le déplacement de ce porteur photoexcité crée une perturbation locale de la densité de charge et donc une variation locale du champ interne. Ce champ appelé champ de charge d'espace modifie l'indice de réfraction par effet électrooptique.

On voit donc que toutes les performances de ces matériaux sont intimement liées, d'une part aux processus d'excitation et de transport de charges, et d'autre part, aux coefficients électrooptiques notés r_{ij} qui permettent de relier les modifications de l'indice au champ de charge d'espace créé.

Inversement, l'étude des caractéristiques de l'effet photoréfractif (vitesse, efficacité) doit permettre de caractériser les processus de transport de charge, c'est à dire de mesurer : la probabilité d'excitation d'un porteur, sa durée de vie dans la bande de conduction, ainsi que son libre parcours moyen.

Les principaux cristaux possédant ces propriétés sont :

- le Niobate de Lithium LiNbO_3
- le Titanate de Barium BaTiO_3
- l'Oxyde de Bismuth silicium $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (BSO)
- l'Oxyde de Bismuth germanium $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ (BGO)

Nous décrivons maintenant quelques unes des nombreuses applications de ce phénomène déjà réalisées en utilisant comme sources excitatrices des lasers continus.

2 - APPLICATIONS

2-1 - Support holographique

a) stockage optique d'informations [8, 9, 10]

i - enregistrement

La technique utilisée est la technique classique d'enregistrement holographique : un faisceau laser généralement issu d'un laser argon est séparé en deux voies. La première sert d'onde de référence (elle est souvent plane), la seconde éclaire l'objet qui devient source secondaire. Une partie de la lumière diffusée par l'objet interfère avec l'onde de référence dans le support photosensible créant une répartition spatiale d'intensité lumineuse qui par le mécanisme précédemment décrit (effet électrooptique et photoconduction) induit des variations locales de l'indice de réfraction fonctions des amplitudes et phases relatives de l'onde objet et de la porteuse (onde de référence).

Un cas particulier intéressant est celui où l'onde objet et la porteuse sont toutes les deux des ondes planes. On obtient alors, sur le support holographique une répartition sinusoïdale d'éclairement générant ainsi un *réseau d'indice épais*.

$$n(x) = n_0 (1 + m \cos \vec{k} \cdot \vec{r})$$

où m représente le taux de modulation et \vec{k} le vecteur d'onde du réseau photoinduit.

On appellera un tel hologramme, un hologramme élémentaire. Nous verrons plus loin que l'étude de l'efficacité de diffraction et du temps d'inscription de cet hologramme permet de caractériser complètement l'effet photoréfractif.

ii - mémorisation de l'information

Une fois l'information enregistrée, si on coupe les faisceaux d'écriture, le cristal placé dans le noir redevient isolant. Les charges ne peuvent plus se déplacer, le champ de charge d'espace photoinduit reste donc constant, l'information est conservée.

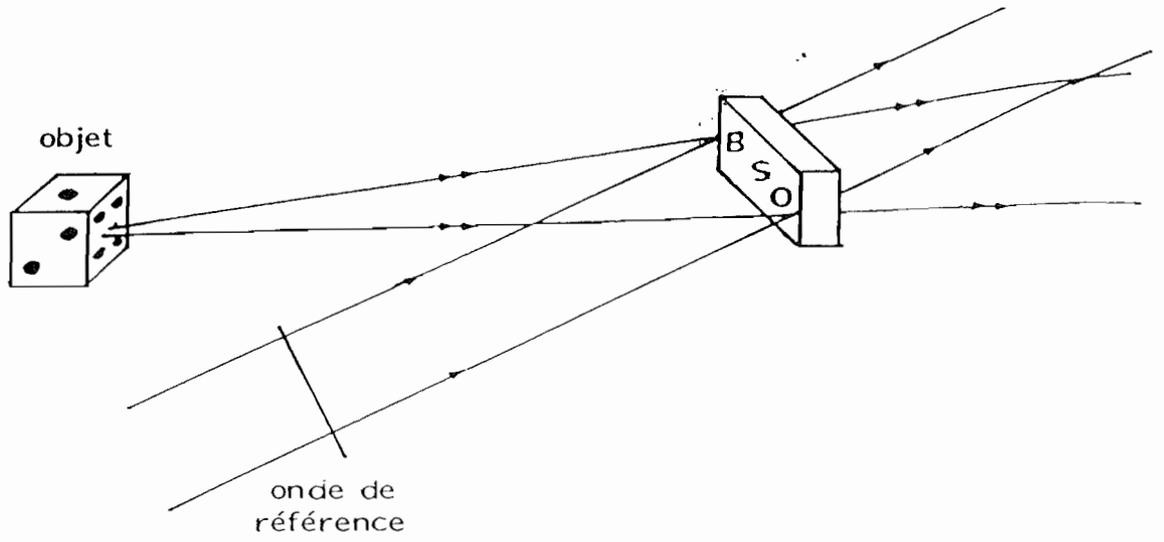
En fait, la conductivité dans le noir notée σ_o , très faible mais non nulle, limite la durée du stockage. A titre indicatif le tableau n° 2 donne les valeurs numériques de σ_o et des temps de mémorisation τ_o pour le Niobate de lithium et le BSO.

cristal	Li Nb O ₃	BSO
σ_o ($\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$)	10^{-19}	10^{-15}
τ_o	100 h + qq. mois	30 h.

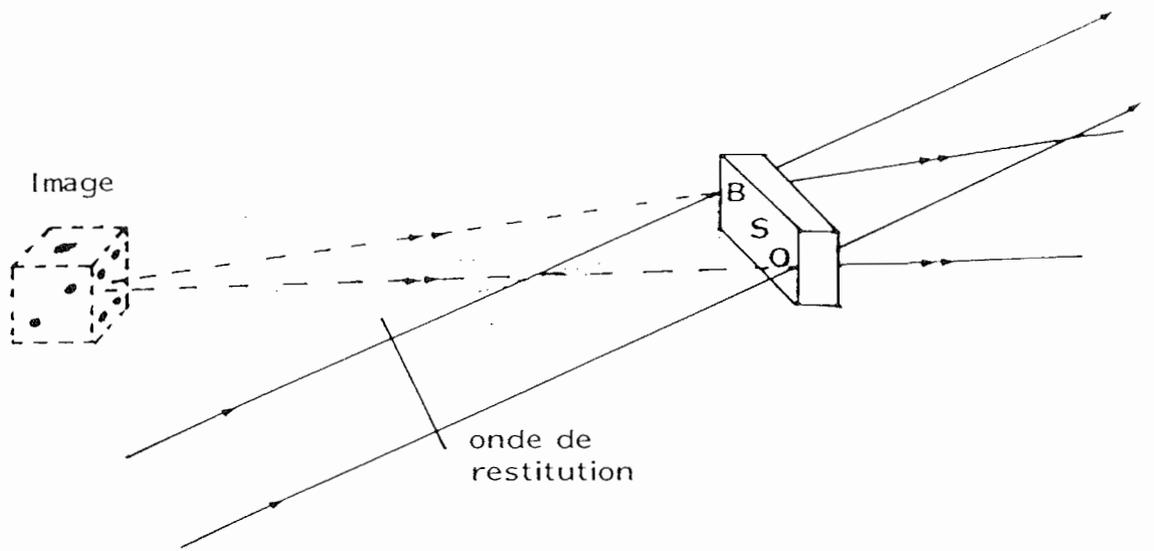
Tableau n° 1

iii - restitution de l'information

La restitution s'effectue en éclairant le cristal par la porteuse ou de préférence à l'aide d'une onde ne perturbant pas la répartition d'indice donc faiblement absorbée par le matériau. On choisit en général une onde de restitution issue d'un laser He Ne à $\lambda = 633 \text{ nm}$ ou d'une diode laser à $\lambda = 840 \text{ nm}$. Cette onde appelée onde de lecture est diffractée par le réseau d'indice et restitue l'image de l'objet enregistré. Un schéma de montage expérimental classique d'enregistrement et de restitution est montré figure 1.



(a)



(b)

Figure 1 : Configuration pour l'enregistrement holographique (a) et (b).

a) enregistrement

b) restitution

Un des intérêts majeurs des cristaux photoréfractifs réside dans le fait que tous les processus sont réversibles. En effet, si on éclaire uniformément le cristal, on réuniformise la répartition spatiale de charges et on efface donc l'information. On peut donc, sans effet de fatigue apparent, enregistrer et effacer autant d'informations qu'on le souhaite.

b) Interconnexions optiques dans l'ordinateur [11-12]

L'intérêt d'introduire des fonctions optiques dans l'ordinateur réside dans le fait que l'on peut optiquement traiter un grand nombre d'informations en parallèle. On peut simplifier et schématiser le mode de fonctionnement d'une opération par l'interconnection de quatre blocs distincts :

- une matrice d'entrée des données ;
- un opérateur (élément non linéaire) ;
- une matrice de sortie ;
- un élément de contre réaction.

Ces quatre éléments sont représentés Fig. n° 2.

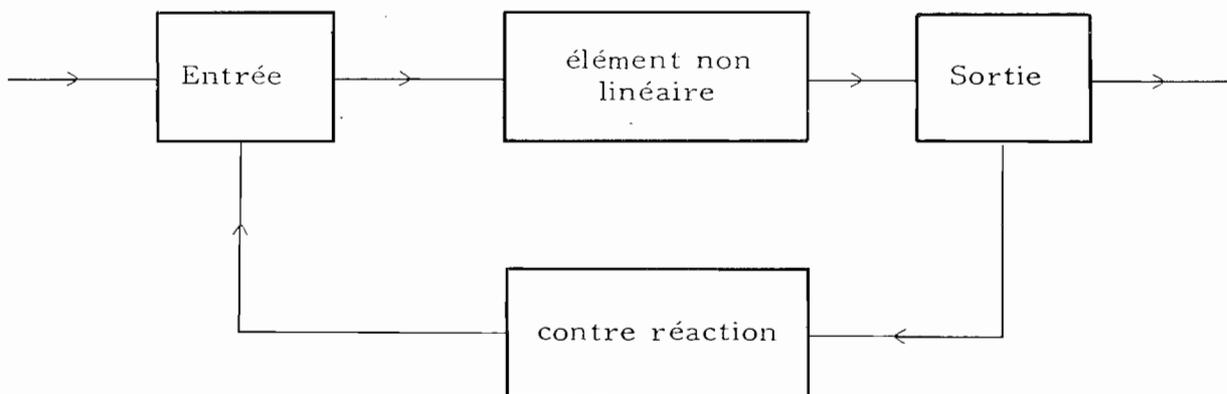


Figure n° 2

Un élément essentiel de ce schéma est le module de contre-réaction. Il est en effet indispensable de pouvoir réaliser des opérations itératives nécessitant le transfert en parallèle des sorties S_{ij} vers les entrées E_{kl} . Cet adressage peut être réalisé en utilisant un hologramme calculé numériquement qui connecte la sortie S_{ij} à l'entrée E_{kl} souhaitée.

On voit donc tout de suite se dégager l'intérêt d'un support holographique de type photoréfractif. En effet, on peut sur un seul cristal reconfigurer à volonté l'hologramme d'interconnexion, et ainsi changer d'opération à tout instant. Les temps de réponse a priori assez lents des cristaux photoréfractifs ne sont pas ici un handicap car les changements d'opérations donc de configuration holographique n'ont pas besoin d'être réalisés rapidement.

c) Adresseur opto-optique pour matrices de fibres optiques

La mise en oeuvre de réseaux de télécommunications optiques nécessite de disposer de systèmes de commutation spatiale permettant de relier chaque point d'une matrice de fibres optiques émettrices à un point quelconque d'une matrice réceptrice.

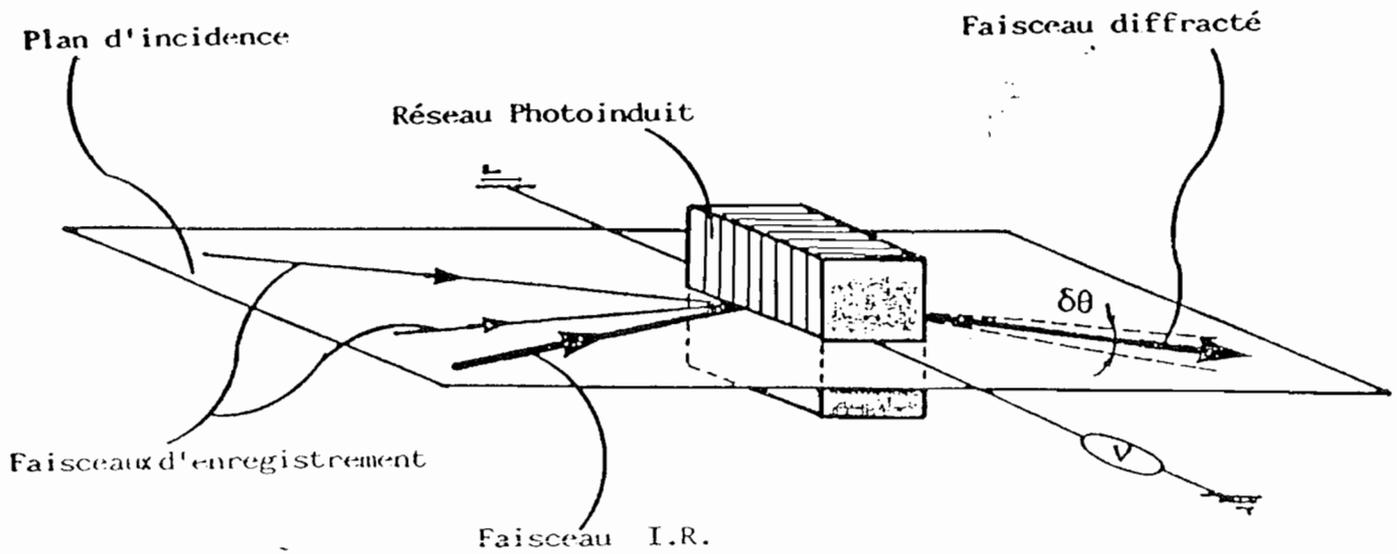
La technique mise en oeuvre est basée sur la déflexion d'un pinceau lumineux par un élément optique passif : un réseau de phase épais. Cette technique présente le gros avantage de ne pas nécessiter la présence d'éléments optiques encombrants en limitant le nombre des connexions possibles. On peut donc a priori donner au faisceau de lecture n'importe quelle direction. Le schéma de principe du commutateur est donné Figure n° 3, son fonctionnement est le suivant : on inscrit un réseau de pas et d'orientation donnée dans un cristal photoréfractif à l'aide d'un laser à colorant. Ce réseau est vu par une onde optique provenant d'un émetteur et qui est diffractée dans une direction déterminée par le pas de franges du réseau photoinduit. Une fois la communication établie, on peut couper les faisceaux d'écriture la connexion est toujours assurée grâce à l'effet mémoire. Il est alors possible pendant le même temps de mettre en rapport deux autres abonnés. Si l'on veut changer d'interlocuteur on modifie la longueur d'onde du laser à colorant donc le pas du réseau photoinduit et la direction du faisceau diffracté. Un tel système a été réalisé au laboratoire par G. Pauliat et G. Roosen [7]. Il permet de connecter deux matrices de 1000 abonnés. Un réseau inscrit permet de converser pendant 2 heures sans nécessiter de réinscription.

2-2 - Couplages d'ondes [13, 14, 15]

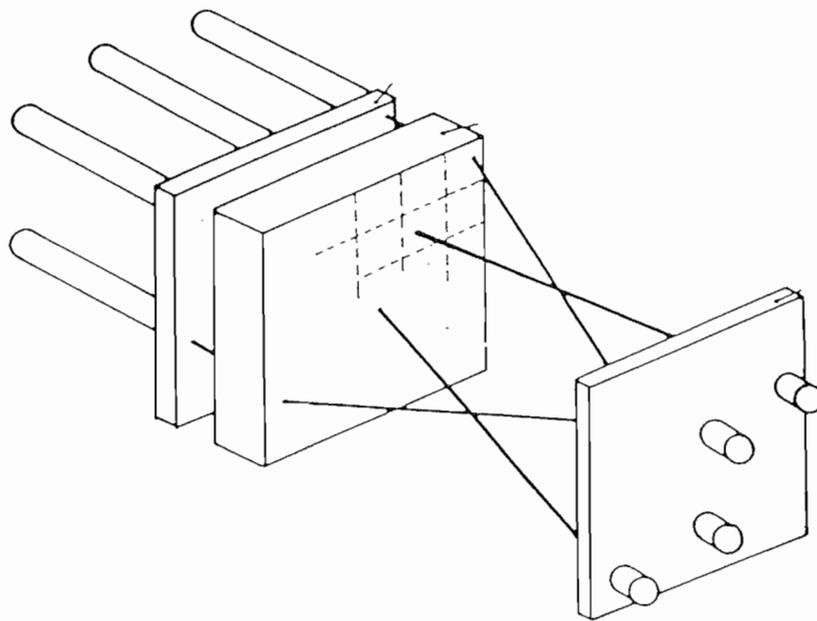
Les matériaux photoréfractifs présentent une réponse non locale à l'excitation lumineuse. Cela signifie par exemple, dans le cas

..!..

..!..



a)



b)

Figure n° 3 : Schéma de principe de l'adresseur opto-optique :

a) Déflexion élémentaire

b) Adressage de deux matrices de fibres

de l'enregistrement d'un hologramme élémentaire que le réseau photo-induit est déphasé par rapport au réseau d'illumination qui l'a créé. Nous montrerons plus loin qu'une telle propriété permet de réaliser un transfert d'énergie entre les deux faisceaux d'écriture. Ainsi, si l'on prend une onde de forte intensité appelée onde pompe et une onde dite signal de faible intensité, on peut amplifier cette dernière en lui transférant une fraction de l'intensité de la pompe. Les applications de ce phénomène sont nombreuses, nous en décrivons ici deux.

a) Fonction logique optique

La réalisation de fonctions logiques optiques NAND, NOR présente un intérêt considérable puisque ces opérateurs élémentaires permettent de réaliser toute autre opération. Nous présentons Fig. n° 4 le schéma de principe d'une porte NOR.

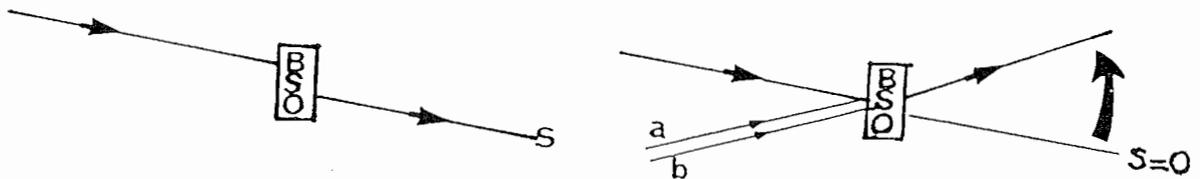


Figure 4 : Schéma de principe d'une porte NOR tout optique

rappelons la table de vérité de l'opérateur NOR, opérateur complet au sens de l'algèbre Booleenne.

a	b	S
0	0	1
0	1	0
1	0	0
1	1	0

le principe de fonctionnement est très simple : la présence du faisceau a (ou b) crée un transfert d'énergie de la pompe P vers a' (ou b'). On peut ainsi éteindre le faisceau pompe et faire passer la sortie S de l'état 1 à l'état 0.

b) Cavités auto-oscillantes [16, 17, 18]

Les phénomènes de couplage d'ondes permettent dans le titanate de Barium d'obtenir des gains de l'ordre de 10^3 à 10^4 . Il devient alors possible d'utiliser des cristaux photoréfractifs comme milieu amplificateur d'un laser. Le schéma de principe est donné Fig. n° 5. Le cristal est pompé par un laser argon. La lumière diffusée dans la direction de l'axe des miroirs de la cavité est amplifiée par effet de couplage dans le cristal. Si le gain obtenu est supérieur aux pertes on obtient un effet laser.

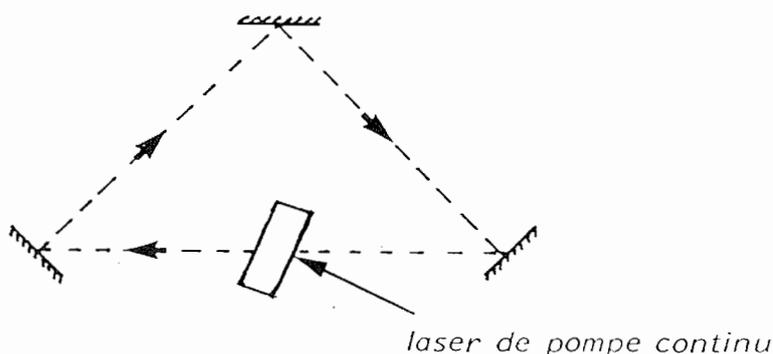


Figure 5 : Cavité autooscillante

2-3 - Génération d'ondes conjuguées [19, 20, 21]

Les cristaux photoréfractifs sont souvent utilisés pour la réalisation de miroirs à conjugaison de phase. Le montage classique utilisé est décrit Figure n° 6. L'onde objet Σ_0 interfère avec l'onde de référence Σ_1 pour former dans le cristal photoréfractif un hologramme. L'onde de lecture est obtenue par réflexion de l'onde de référence sur un miroir placé en autocollimation. On montre alors que l'onde diffractée obtenue est l'onde conjuguée de phase Σ_0^+ de l'onde objet Σ_0 . Le comportement d'un tel miroir en comparaison à celui d'un miroir classique, est illustré Figure n° 7. Les champs d'application sont très vastes.

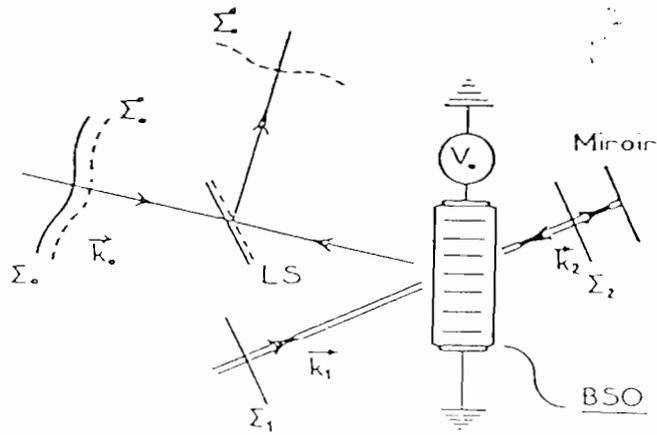


Figure 6 : Montage utilisé en conjugaison de phase.

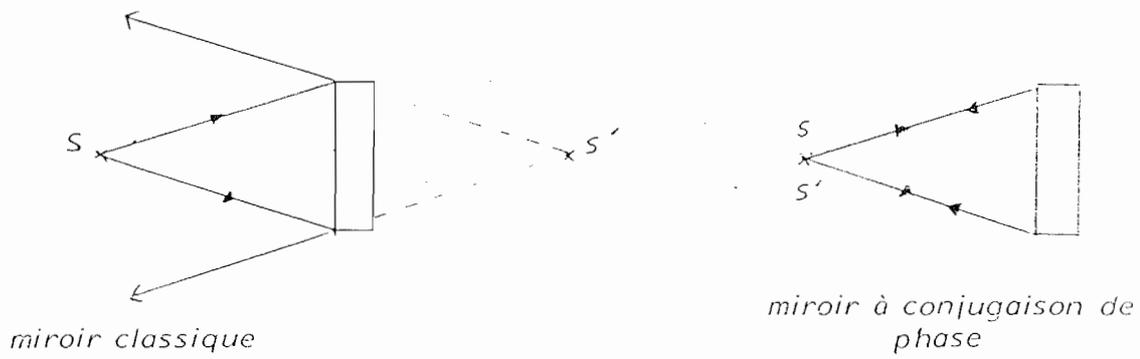


Figure 7 : Fonctionnement d'un miroir à conjugaison de phase.

On peut noter en particulier les méthodes d'observation d'images en présence de milieux perturbateurs ou la réalisation de cavités laser fermées sur des miroirs à conjugaison de phase puisque la réflectivité de tels miroirs peut être supérieure à 1.

3 - ANALYSE THÉORIQUE DE L'EFFET PHOTORÉFRACTIF

Nous venons de décrire qualitativement un certain nombre d'applications de l'effet photoréfractif. Nous allons maintenant rappeler le modèle théorique développé par Kukhtarev qui permet d'expliquer les résultats expérimentaux obtenus en régime d'excitation continu et d'estimer quantitativement les performances de ces cristaux.

3-1 - Mécanismes de transport de charges dans les cristaux photoconducteurs

Dans les matériaux photoconducteurs la migration d'un porteur de charge peut se produire sous l'action de trois effets différents.

a) diffusion

Si la répartition spatiale des porteurs induite n'est pas uniforme ceux-ci se déplacent de manière à retrouver un état d'équilibre c'est-à-dire, une densité spatialement uniforme. Ce phénomène génère une densité de courant donnée par :

$$\vec{j}_1 = \underbrace{e D_n \vec{\text{grad}} n}_{\text{contribution des électrons}} - \underbrace{e D_p \vec{\text{grad}} P}_{\text{contribution des trous}}$$

où $e = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$.

D_n (D_p) est la constante de diffusion des électrons (trous)

$n(P)$ est la concentration en électrons (trous) photoexcités.

Si τ_n est la durée de vie d'un électron dans la bande de conduction son libre parcours moyen vaut alors avant repiégeage :

$$\left\{ \begin{array}{l} L_n = \sqrt{D_n \tau_n} \quad \text{pour un électron} \\ L_p = \sqrt{D_p \tau_p} \quad \text{pour un trou} \end{array} \right.$$

b) Entrainement sous champ

Si le cristal est soumis à un champ électrique \vec{E}_0 la loi d'Ohm permet de calculer la densité de courant induite :

$$\vec{j}_2 = e(n \mu_n + p \mu_p) \vec{E}_0$$

où μ_n est la mobilité des électrons et μ_p celle des trous. La longueur parcourue avant repiégeage vaut alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} L_n = \mu_n \tau_n E_0 \\ L_p = \mu_p \tau_p E_0 \end{array} \right.$$

c) Diffusion anisotrope par action d'un champ photovoltaïque

Dans les matériaux polaires possédant une polarisation rémanente, l'entrainement peut avoir sous l'effet d'un champ photovoltaïque la densité de courant vaut alors pour des électrons :

$$j_3 = e n (p_+ \ell_+ - p_- \ell_-) + e n \Delta \ell_i$$

où p_+ (p_-) et ℓ_+ (ℓ_-) sont les probabilités d'excitation et le libre parcours moyen pour des électrons émis dans des directions opposées ; $\Delta \ell_1$ est le déplacement des ions du réseau ainsi créés.

La longueur moyenne du déplacement dans la direction de l'axe polaire vaut alors :

$$L = p_+ \ell_+ - p_- \ell_- + \Delta \ell_1$$

La migration des porteurs est la combinaison des trois effets décrits ci-dessus. En fait, selon le cristal étudié l'un des trois effets prédomine :

- pour le BSO c'est l'entraînement sous champ ;
- pour le BaTiO₃ c'est la diffusion ;
- pour le Li Nb O₃ c'est l'effet photovoltaïque.

A titre indicatif le tableau n° 2 donne les valeurs numériques des longueurs de migration avec et sans champ appliqué pour ces trois cristaux, ainsi que la durée de vie des porteurs, ce sont les valeurs couramment admises à ce jour.

Distance parcourue			Temps de Vie
cristal	sans champ externe	$E_o = 6 \text{ kV/cm}$	$\tau(S)$
Li Nb O ₃	$5 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$	-	$0,3 \cdot 10^{-9}$ [26]
Ba Ti O ₃	30 nm [25]	$2 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$	$\leq 10^{-9}$ [22]
BSO	4 μm [23]	200 μm	$5 \cdot 10^{-6}$ [24]

Tableau n° 2

3-2 - Le modèle de Kukhtarev [27-22]

Ce modèle est la transposition mathématique du mécanisme physique donné au paragraphe 1 et schématisé figure 8. Il décrit l'excitation d'un électron à partir d'un *centre donneur*, sa *migration* dans la bande de conduction du cristal, et sa capture par un *centre accepteur*. Il permet de prévoir l'évolution temporelle et l'amplitude finale du champ de charge d'espace photoinduit E_{ce} , lors de l'enregistrement d'un hologramme élémentaire de vecteur d'onde \vec{k} . Il ne prend en compte la présence que d'une seule catégorie de centre donneur, les accepteurs étant les donneurs ayant perdu un électron.

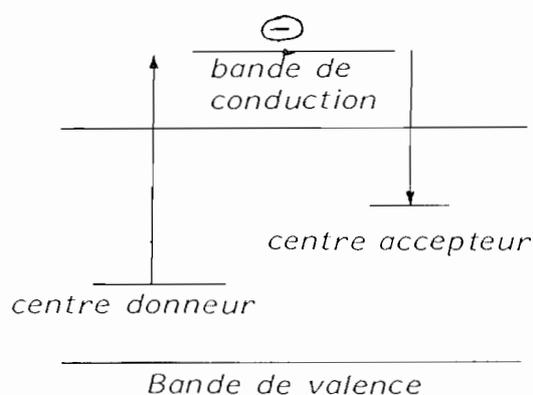


Figure 8 : Schématisation du processus de transport de charge décrit par le modèle de Kukhtarev.

Nous allons développer ce modèle dans le cas d'un cristal où la conduction s'effectue sans effet photovoltaïque, et ne met en jeu qu'un seul type de porteur, par exemple des électrons. Les équations de départ sont les suivantes

$$(1) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{dn}{dt} = SI(N_D - N_D^i) - \gamma_R n N_D^i \quad (1-1) \\ \vec{j} = \mu n e \vec{E} + D_e \text{grad } n \quad (1-2 \text{ loi d'Ohm}) \\ \text{div } \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon \epsilon_0} \quad (1-3 \text{ équation de Poisson}) \\ \text{div } \vec{j} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (1-4 \text{ conservation de la charge}) \end{array} \right.$$

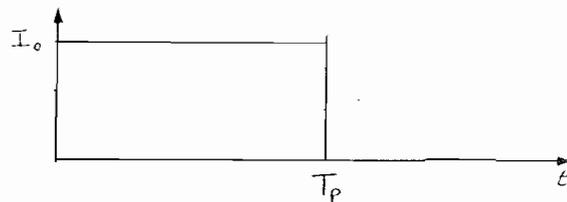
.../...

où :

- n est la densité d'électrons excités ;
- N_D est la densité de donneurs ;
- N_D^i est la densité de donneurs ionisés ;
- S la section quantique de photoionisation ;
- I l'intensité lumineuse absorbée ;
- γ_R la vitesse de recombinaison ;
- μ la mobilité de l'électron ;
- e la charge élémentaire (valeur absolue) ;
- D la constante de diffusion des électrons ;
- ρ la densité de charges ;
- $\epsilon \epsilon_0$ la permittivité du cristal..

a) Cas de l'illumination uniforme

Dans ce cas, I est spatialement constant mais varie temporellement de la façon suivante :



le système (1) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn}{dt} = SI(N_D - N_D^i) - \gamma_R n N_D^i \\ \vec{j} = \mu n e \vec{E} \\ \text{div } \vec{E} = 0 = -N_D^i + N_A + n \\ \text{div } \vec{j} = \frac{d\rho}{dt} = 0 \end{array} \right.$$

.../...

où N_A représente la densité de charge négative qui compense la densité de donneurs ionisés dans le noir :

$$N_A = N_D^i \quad (I = 0)$$

On en déduit l'équation donnant l'évolution temporelle de la densité de charges photoinduites

$$\frac{dn}{dt} = SI (N_D - n - N_A) - \gamma_R n(n + N_A)$$

Le modèle de Kukhtarev est développé dans le cas des faibles éclaircissements incidents, de sorte qu'à tout instant n est très petit devant $N_D^i (I = 0) = N_A$, dans ce cas l'équation devient :

$$\frac{dn}{dt} = SI (N_D - N_A) - \gamma_R N_A n$$

on posant $\tau_r = \frac{1}{\gamma_R N_A}$ (le temps de vie des porteurs) il vient :

$$n(t) = \frac{SI}{\gamma_R N_A} (N_D - N_A) (1 - e^{-\frac{t}{\tau_r}}) \quad \text{pour } t \leq T_p$$

$$n(t) = \frac{SI}{\gamma_R N_A} (N_D - N_A) (1 - e^{-\frac{T_p}{\tau_r}}) e^{-t/\tau_r} \quad \text{pour } t > T_p$$

b) cas de l'illumination non uniforme

C'est le cas de l'enregistrement d'un hologramme élémentaire. L'éclaircissement sur le cristal est donné par :

$$I = I_0 (1 + m \exp ikz) = I_0 + \delta I$$

où I_0 est l'éclairement moyen, sur le taux de modulation du système de franges et k le vecteur d'onde du réseau.

Le système ne peut alors être résolu que moyennant les approximations suivantes :

i - Cas des faibles illuminations : la densité de porteurs excités est toujours faible devant la concentration en accepteurs et en donneurs ;

ii - Approximation quasi continue : on suppose que le temps d'établissement du champ de charge d'espace est très long devant celui d'établissement de la population de porteurs excités. On peut considérer alors n comme une constante :

$$n = \frac{SI(N_D - N_A)}{\gamma_R N_A}$$

iii - Développement au 1er ordre : on se place dans le cas des faibles modulations $m \ll 1$ et on recherche des solutions de la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} n = n_0 + \delta n(z, t) \\ j = j_0 + \delta j(z, t) \\ N_D^i = N_{D0}^i + \delta N_D^i(z, t) \\ E = E_0 + \delta E(z, t) \end{array} \right.$$

où n_0 , j_0 , N_{D0}^i , E_0 sont les solutions du système dans le cas de l'éclairement uniforme, on a donc :

$$n_0 = \frac{S I_0 (N_D - N_A)}{\gamma_R N_A}$$

.../...

Le système (1) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} i k \delta j = e \left(\frac{\partial \delta n}{\partial t} - \frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} \right) \\ \delta j = \mu n e \delta E + i k \mu k_B T \delta n + \mu \delta n e E_0 \\ i k \delta E = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (\delta N_D^i - \delta n) \\ \frac{\partial \delta n}{\partial t} = - S I_0 \delta N_D^i + S \delta I (N_D - N_D^i) - \gamma_R \delta n N_D^i - \gamma_R n \delta N_D^i \end{array} \right.$$

où k_B est la constante de Boltzman et T la température. On a utilisé la relation d'Einstein : $D_e = k_B T \mu$. L'équation d'établissement de la partie modulée du champ $\delta E(z, t)$ est déduite de ce système et s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2} + \frac{\partial \delta E}{\partial t} \left(\frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_I} + \frac{1}{\tau_D} - \frac{i}{\tau_E} \right) + \delta E \left(\frac{1}{\tau_{di} \tau_r} + \frac{1}{\tau_{di} \tau_I} + \frac{1}{\tau_D \tau_I} - \frac{i}{\tau_E \tau_I} \right) = - \frac{\mu e S \delta I}{\epsilon \epsilon_0} (N_D - N_A) (E_0 + i E_D)$$

où E_0 est le champ appliqué, et en posant :

$$E_D = \frac{k_B T k}{e} \quad (\text{champ de diffusion})$$

$$\tau_{di} = \frac{\epsilon \epsilon_0}{e \mu n_0} \quad (\text{temps de relaxation diélectrique})$$

$$\tau_E = \frac{1}{k \mu E_0} \quad (\text{temps d'entraînement sous champ})$$

$$\tau_D = \frac{e}{\mu k_B T k^2} \quad (\text{temps de diffusion})$$

$$\tau_r = \frac{1}{\gamma_R N_A} \quad (\text{temps de recombinaison})$$

$$\tau_I = \frac{1}{S I_0 + \gamma_R n_0}$$

$k = 2\pi/\lambda$ ou λ est le pas du réseau inscrit.

.../...

Cette équation peut se résoudre en toute généralité, mais on trouve plus simplement une solution approchée qui décrit parfaitement les phénomènes observés en la résolvant après avoir négligé le terme $\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2}$. En effet, comme nous le verrons, la solution trouvée est de la forme $\delta E = \delta E_0 e^{-t/\tau} + \text{cste}$ où τ est sensiblement voisin de τ_{di} . On a alors :

$$\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2} \approx \frac{1}{\tau_{di}} \frac{\partial \delta E}{\partial t}$$

Pour les éclaircissements employés $\tau_{di} \gg \tau_r, \tau_D$, on a donc :

$$\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2} \ll \frac{\partial \delta E}{\partial t} \left(\frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_I} + \frac{1}{\tau_D} - \frac{i}{\tau_E} \right) \approx \frac{\partial \delta E}{\partial t} \left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_I} + \frac{1}{\tau_D} - \frac{i}{\tau_E} \right)$$

La solution s'écrit dans ce cas et pour l'inscription du réseau ($\delta E(z, t) = 0$ à $t = 0$)

$$\delta E(z, t) = - \frac{m E_q}{E_0^2 + (E_D + E_q)^2} \left[E_q E_0 + i [E_D (E_q + E_D) + E_0^2] \right] e^{ikz} (1 - e^{-\Gamma t})$$

avec :

$$E_q = \frac{N_A e}{\epsilon \epsilon_0 k} \frac{N_D - N_A}{N_D}$$

$$\Gamma = \Gamma' + i \Gamma''$$

et :

$$\Gamma' = \frac{1}{\tau_{di}} \frac{[1 + (\tau_r \tau_{di} / \tau_D \tau_I)] (1 + \tau_r / \tau_D) + [(\tau_r / \tau_E)^2 (\tau_{di} / \tau_I)]}{(1 + \frac{\tau_r}{\tau_D})^2 + (\frac{\tau_r}{\tau_E})^2}$$

.../...

$$\Gamma'' = \frac{1}{\tau_{di}} \frac{(\tau_r / \tau_E)(\tau_{di} / \tau_I - 1)}{\left(1 + \frac{\tau_r}{\tau_D}\right)^2 + \left(\frac{\tau_r}{\tau_E}\right)^2}$$

c) Remarques

* Amplitude maximale du champ de charge d'espace

L'amplitude maximale de la modulation δE du champ de charge d'espace que l'on peut induire est donnée par :

$$E_{ce \text{ Max}} = E_q \left[\frac{E_o^2 + E_D^2}{E_o^2 + (E_D + E_q)^2} \right]^{1/2}$$

On peut noter que cette amplitude ne dépend que du pas du réseau inscrit et du champ externe appliqué pour ce qui concerne les paramètres expérimentaux, et du rapport $\frac{N_A (N_D - N_A)}{\epsilon \epsilon_o N_D}$ pour ce qui concerne les grandeurs caractéristiques du cristal. En particulier $E_{ce \text{ Max}}$ ne dépend pas de l'éclairement incident I_o .

De plus, sans champ appliqué, $E_{ce \text{ Max}}$ est maximum pour $E_D = E_q$ c'est à dire $k^2 = k_o^2 = \frac{e^2}{\epsilon \epsilon_o k_B T} (N_D - N_A) \cdot \frac{N_A}{N_D}$.

pour $k \gg k_o$ (petit pas) $E_{ce \text{ max}} \cong E_q$

pour $k \ll k_o$ (grand pas) $E_{ce \text{ max}} \cong E_D$

L'étude de la variation du champ induit en fonction du pas du réseau permet la mesure d'un paramètre cristallin important pour l'étude du phénomène photoréfractif : N_A la concentration en centres accepteurs. En effet, en général $N_D - N_A \cong N_D$; d'où :

$$k_o^2 = \frac{e^2}{\epsilon \epsilon_o k_B T} N_A \quad \text{et} \quad N_A = k_o^2 \frac{\epsilon \epsilon_o k_B T}{e^2}$$

* Temps de montée

Sans champ externe appliqué :

si l'on prend $E_0 = 0$ alors :

$$\Gamma'' = 0$$

$$\Gamma' = \frac{1}{\tau_{di}} \left(1 + \frac{\tau_r}{\tau_D} \frac{\tau_{di}}{\tau_l} \right) \frac{1}{1 + \frac{\tau_r}{\tau_D}}$$

Γ est alors réelle. Il faut noter que $\frac{\tau_{di}}{\tau_l}$ est indépendant de l'éclairement incident.

Γ' peut alors s'écrire :

$$\Gamma' = \frac{1}{\tau_{di}} \times f(N_A, \epsilon, \Gamma, k) = \frac{S I_0 (N_D - N_A) e \Gamma}{\epsilon \epsilon_0 \gamma_R N_A} f(N_A, \epsilon, \Gamma, k)$$

Γ' est donc une fonction croissante de l'éclairement incident sur le cristal.

avec champ appliqué :

Dès lors qu'on applique un champ externe E_0 , la constante de temps $1/\Gamma$ n'est plus réelle. On fait donc apparaître un terme d'oscillation à la fréquence Γ'' amorti avec une constante de temps $\frac{1}{\Gamma'}$. Ceci permet d'obtenir des champs de charges d'espace photoinduits transitoires dont l'amplitude est supérieure à celle obtenue à l'état stationnaire. Un tel comportement est montré Figure 9 dans le cas du BGO avec un pas de $10 \mu\text{m}$ et un champ externe appliqué E_0 [28]

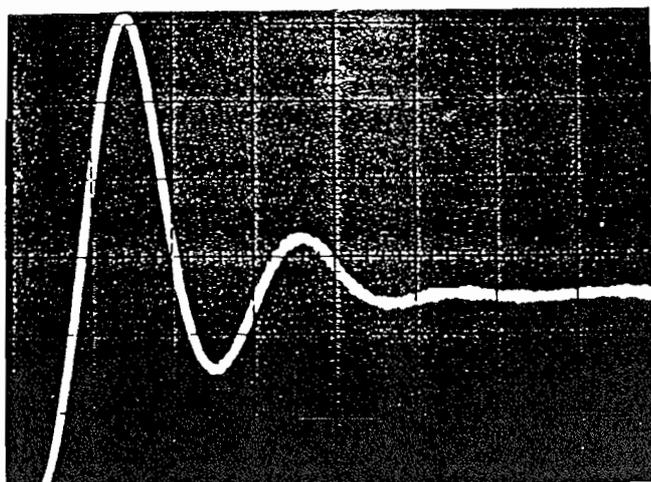


Figure 9

* Déphasage

En général le champ de charge d'espace photoinduit n'est pas en phase avec le réseau d'illumination qui l'a créé. Sans champ externe appliqué les deux réseaux sont en quadrature. Dès qu'on applique un champ le déphasage ψ est donné par :

$$\operatorname{tg} \psi = \frac{E_D}{E_0} \left(1 + \frac{E_D}{E_q} + \frac{E_0^2}{E_D E_q} \right)$$

* En résumé

Le mécanisme peut être schématisé comme le montre la figure n° 10.

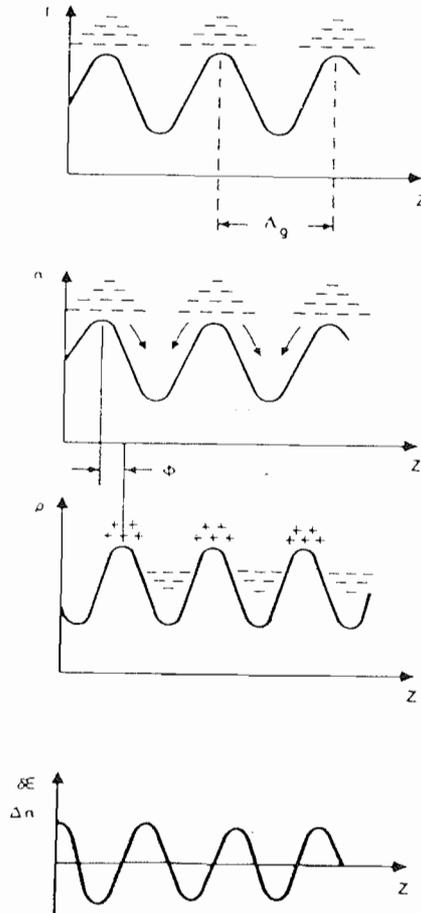


Figure 10 : Schématisation du mécanisme conduisant à la création du champ de charge d'espace.

Les figures n° 11 a et b montrent l'évolution de l'état stationnaire de la modulation d'indice photoinduite en fonction du pas du réseau, pour différents champs appliqués pour deux cristaux pour lesquels le modèle développé s'applique : le BSO et le BaTiO₃ [29].

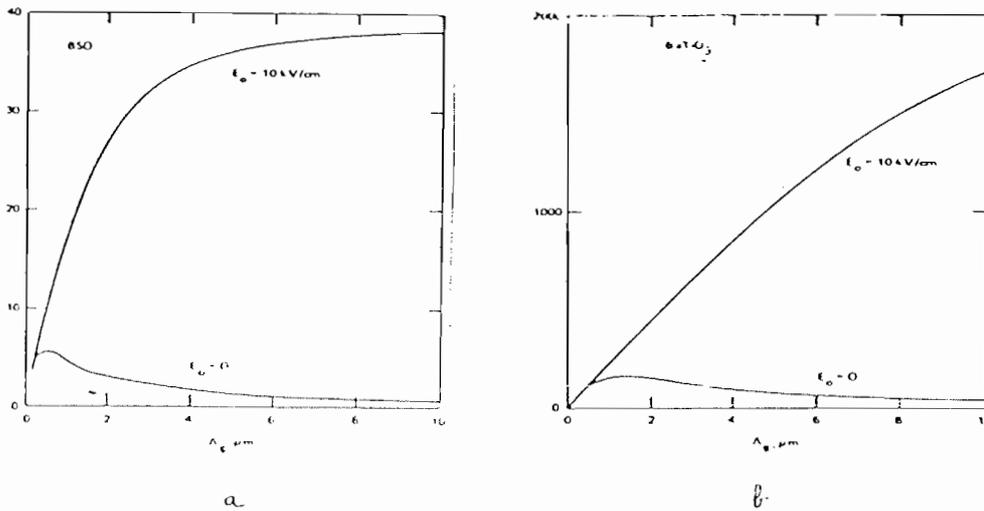


Figure 11 : Evolution du champ de charge d'espace en fonction du pas du réseau de franges [29]
a) BSO b) BaTiO₃

de même, les figures 12 a et b montrent l'évolution des temps de réponse en fonction du pas du réseau pour ces deux mêmes cristaux pour un champ appliqué de 10 kV/cm et sans champ externe.

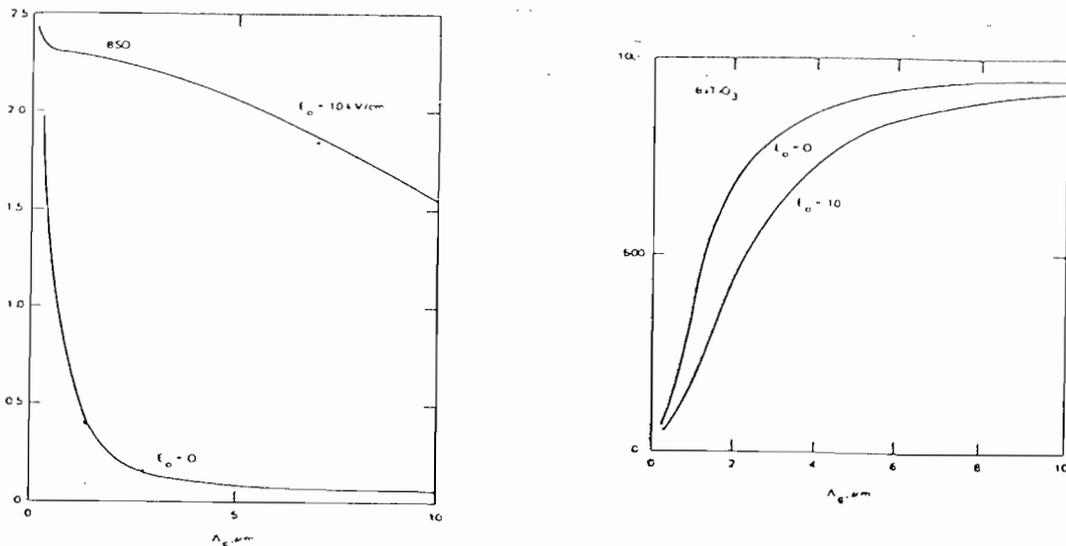


Figure 12 : Variation du temps de réponse [29]

4 - L'INTÉRÊT D'UNE ÉTUDE EN RÉGIME D'EXCITATION NANO-SECONDE

4-1 - Du point de vue des applications

Une impulsion lumineuse nanoseconde possède deux caractéristiques intéressantes :

- une durée courte ;
- une puissance crête importante.

C'est cette dernière propriété qui est intéressante pour les applications. Comme nous l'avons montré au paragraphe précédent, le champ maximal que l'on peut induire dans un cristal à l'état stationnaire ne dépend pas de l'éclairement, on ne peut donc pas espérer accroître ainsi l'amplitude du champ de charge d'espace photoinduit. Par contre, le temps de montée dépend linéairement de l'inverse de l'éclairement I_o . On peut donc espérer en augmentant I_o diminuer énormément le temps de réponse. Rappelons que la constante de temps τ_m vaut sans champ appliqué :

$$\tau_{di} = \frac{1 + \frac{\tau_r}{\tau_D}}{1 + \frac{\tau_r}{\tau_D} \frac{\epsilon \epsilon_o}{\mu e} \gamma_R \frac{N_D}{N_D - N_A}}$$

pour le BSO, avec un pas de $1 \mu\text{m}$, une intensité de 1 W/cm^2 (laser continu), et si l'on prend une mobilité de $3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{vs}$ et un temps de recombinaison $\tau_r = 5 \cdot 10^{-6} \text{ s}$, une application numérique donne $\tau_m = 0,3 \text{ ms}$.

Si maintenant, on utilise une impulsion lumineuse de durée une nanoseconde et d'énergie 1 mJ/cm^2 sa puissance crête vaut (en supposant un profil temporel rectangulaire).

$$I'_o = 10^6 \text{ W/cm}^2$$

τ_m vaut alors :

$$\tau_m = 0,3 \text{ ns}$$

Cette extrapolation rapide nous permet de supposer que la réponse de l'effet photoréfractif à une impulsion brève peut être du même ordre de grandeur que la durée de cette impulsion. Il faut cependant être très prudent car, *dans le cas des forts éclaircissements*, le modèle de Kukhtarev ne peut plus s'appliquer. Néanmoins, cette perspective d'un effet photoréfractif rapide semble a priori très attrayante pour un certain nombre d'applications. Par exemple, l'adresseur décrit au paragraphe 2-1 pourrait commuter en quelques ns voir moins. Il paraît aussi alors possible d'envisager la faisabilité d'opérations logiques tout optiques avec ces matériaux réputés jusqu'alors lents. Enfin, l'holographie avec des sources pulsées présente l'avantage de pouvoir être effectuée dans des milieux a priori hostiles à ce genre d'expériences: les environnements industriels. En effet, l'utilisation de telles sources permet de s'affranchir de tous les problèmes de vibrations et de stabilité mécanique, rendant d'habitude ces expériences impossibles, ou du moins très difficiles à réaliser.

4-2 - Du point de vue de la caractérisation

Définissons d'abord ce que l'on entend par caractérisation. Il s'agit de mesurer par des méthodes optiques les paramètres essentiels qui régissent l'établissement du réseau d'indice. A partir de ces mesures, et en relation avec un laboratoire de cristallogénèse, il s'agit ensuite de comprendre les mécanismes, et de modifier les paramètres de croissance cristalline pour optimiser la sensibilité ou le temps de réponse des matériaux. De telles expériences sont menées dans notre équipe en régime d'excitation quasi-continu et sont interprétées à l'aide du modèle de Kukhtarev. L'étude des variations de la constante de temps d'effacement du réseau sous illumination uniforme en fonction du champ externe appliqué, permet de mesurer la concentration en centres accepteurs N_A et la longueur de diffusion d'un porteur de charge excité. On mesure en fait, la valeur du produit $\mu \tau_r$ de la mobilité μ des porteurs de charge par le temps de vie τ_r défini précédemment. Il n'est malheureusement pas possible par ces méthodes de discriminer et de séparer ces deux variables.

.../...

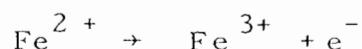
Les expériences de caractérisation menées en régime d'excitation pulsé nanoseconde sont non seulement complémentaires mais indispensables. En effet, elles permettent d'observer des phénomènes transitoires durant quelques nanosecondes non accessibles lors d'expériences menées en régime d'excitation quasi-continu. De plus, on peut prévoir que le modèle de Kukhtarev ne s'appliquera plus. En effet, on ne peut plus considérer a priori que la population de porteurs excités est constante pendant la durée de l'inscription du réseau. Il sera donc nécessaire, et c'est là l'essentiel de notre travail, de développer un nouveau modèle théorique. Nous espérons de ce fait pouvoir appréhender de nouveaux paramètres et en particulier pouvoir mesurer séparément la mobilité des porteurs et leur temps de vie.

4-3 - Les études déjà réalisées en nanoseconde

Les études déjà réalisées dans ce domaine sont en fait assez peu nombreuses. Nous citons ici celles dont nous avons eu connaissance en résumant les principaux résultats qu'elles apportent.

* Etude du Niobate de Lithium

Les principales expériences ont été menées par Che-Tsung Chen Dae Kim and D. Von Der Linde [30, 31]. Ils constatent qu'il est possible d'inscrire un hologramme dans ce cristal à l'aide d'impulsion de durée 25 ns issue d'un laser YAG doublé en fréquence. Ils ont observé un phénomène intéressant : le rapport de la variation d'indice photo-induite à l'énergie absorbée par unité de volume nécessaire pour l'induire (c'est la sensibilité photoréfractive) est environ dix fois plus grande que dans les expériences menées en régime d'excitation continue. De plus, ils constatent qu'à la longueur d'onde de lecture ($\lambda = 647$ nm) une absorption induite suit le passage de l'impulsion excitatrice nanoseconde. Ils interprètent leurs résultats en introduisant la présence d'un centre photoréfractif secondaire. Ils pensent que le modèle de Kukhtarev développé dans le cas d'un transfert de charge :



doit être développé pour Li Nb O_3 en tenant compte de la présence de ce centre photoréfractif secondaire.

* Etude du titanate de Barium $BaTiO_3$

Ces expériences ont été menées par L.K. Lam, Tallis Y. Chang, Jack Feinberg, and R.W. Hellwarth [32]. Elles montrent qu'il est possible d'inscrire ou d'effacer là aussi des hologrammes de même efficacité qu'en régime quasi continu, en utilisant des impulsions lumineuses de durée 20 ns. L'énergie requise est 7 à 10 fois supérieure à celle nécessaire en régime d'excitation micro ou milliseconde. Les auteurs interprètent ce fait par la mauvaise qualité de leur faisceau d'écriture. Enfin, leurs mesures permettent d'affirmer que le processus mis en jeu est un processus à un seul photon absorbé par électron ou trou excité. Le modèle à deux niveaux est a priori encore valable.

* Etude du BSO

Elle a été menée par J.P. Hermann, J.P. Herriau and J.P. Huignard [33]. Les impulsions utilisées durent 30 ns et sont également fournies par un laser YAG doublé en fréquence. Leur principale observation réside dans l'étude de l'efficacité de diffraction du réseau photo-induit en fonction de l'énergie des impulsions lumineuses incidentes. La courbe expérimentale obtenue est montrée Fig n° 13.

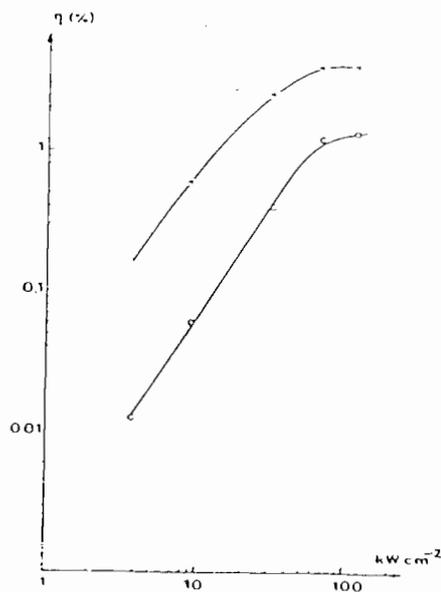


Figure 13 : Variation de l'efficacité de diffraction en fonction de l'énergie d'inscription.
0 sur un coup, + à saturation.

.../...

Leurs conclusions sont les suivantes :

- A la longueur d'onde $\lambda = 532$ nm avec des densités de puissances supérieures à 10 kW/cm^2 le temps de réponse du cristal peut être rapide (< 5 ns).
- Avant saturation l'efficacité est proportionnelle au carré de l'énergie incidente ;
- Le réseau induit peut être mémorisé pendant quelques minutes ou plus suivant l'intensité du faisceau de lecture ;
- l'énergie requise pour inscrire un réseau d'efficacité de 1 % est la même que pour les expériences quasicontinues ≈ 100 à $500 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$.

* Conclusion

Il faut noter qu'excepté pour Li Nb O_3 aucune corrélation entre un modèle théorique et des résultats expérimentaux n'a été faite dans le domaine de la nanoseconde. Il nous paraît donc intéressant de mener cette étude.

5 - CHOIX DU MATÉRIAU UTILISÉ

5-1 - Comparaison Ba Ti O₃, BSO

Le Niobate de Lithium a été étudié comme nous venons de le voir en régime d'excitation nanoseconde tant d'un point de vue théorique qu'expérimental. Par contre la faisabilité de l'expérience a été montrée pour le titanate de Barium et le BSO mais dans ces deux cas, aucune étude systématique de caractérisation n'a été menée en régime impulsif. Il nous paraît donc intéressant de choisir l'un de ces deux matériaux. Nous allons discuter maintenant des avantages et inconvénients de chacun des deux.

..!..

L'avantage majeur du titanate de Barium est qu'il présente un coefficient électrooptique (pour certaines configurations) 360 fois plus grand que le BSO. Par contre, il est beaucoup moins sensible à la longueur d'onde 532 nm ce qui entraîne un temps de montée (en régime quasi continu) environ 500 fois plus long. En fait, les deux paramètres intéressants du point de vue expérimental et du point de vue des applications sont :

- ξ : l'énergie par unité de surface nécessaire pour inscrire un réseau qui a une efficacité de diffraction de 1 %.

- S : la sensibilité photoréfractive qui est le rapport de l'efficacité de diffraction à l'énergie qu'il a fallu fournir par unité de surface.

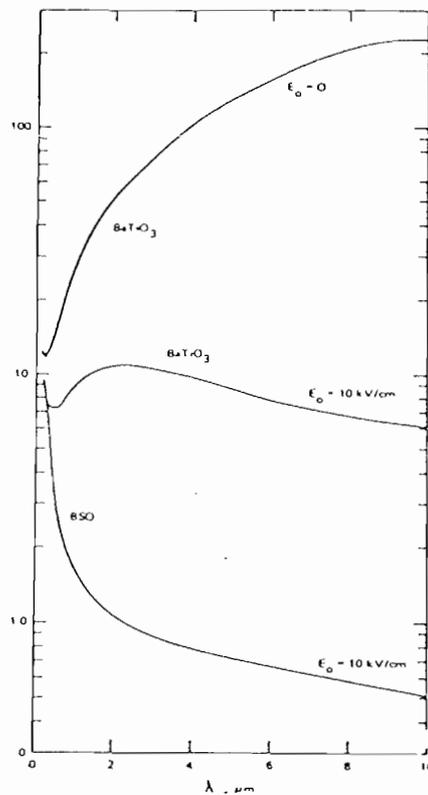


Figure 14 : Variation du paramètre ξ en fonction du pas du réseau [29].

BSO - Ba Ti O₃

On voit sur la Figure n° 14 qu'en ce qui concerne le paramètre ξ , le BSO est beaucoup plus intéressant car l'énergie nécessaire est environ 100 fois plus faible que pour Ba Ti O₃. Ceci est très important

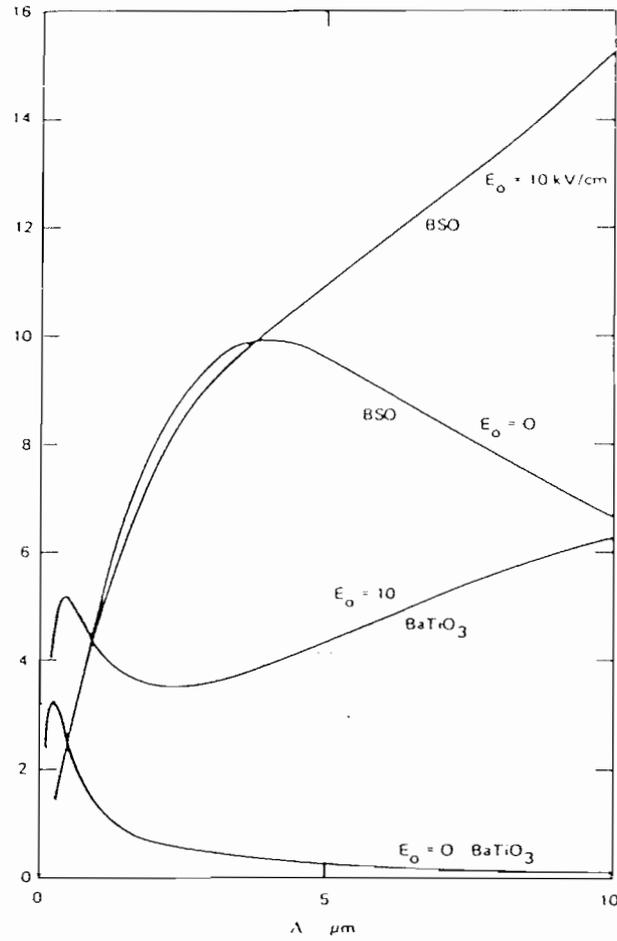


Figure 15 : Variation de la sensibilité photoréfractive en fonction du pas du réseau : BSO - BaTiO₃. [29].

Du point de vue expérimental car l'énergie de nos impulsions sera limitée et il faut pouvoir détecter un signal.

Du point de vue des applications le paramètre essentiel est S. On voit figure 15 qu'excepté pour les faibles pas de réseau le BSO est beaucoup plus sensible que le titanate avec et sans champ appliqué.

5-2 - Avantages du BSO-BGO

Ces cristaux présentent l'énorme avantage d'être fabriqués au laboratoire de chimie du Solide du CNRS à l'Université de Bordeaux I, nous permettant donc d'obtenir des renseignements relatifs aux conditions de leur croissance cristalline. Une comparaison de leur comportement permettrait d'influer sur la cristallogénèse en vue de leur optimisation. Ce cristal présente en outre d'autres avantages très importants :

- il existe sous forme monocristalline ;
- la méthode de cristallogénèse utilisée permet d'obtenir de gros monocristaux (plusieurs cm³) donc facilement orientables ;
- la chimie des sillénites montre que les substitutions au sein du composé BGO sont possibles, et donc les dopages réalisables ;
- enfin, il est possible de polir ces cristaux à l'Institut d'Optique.

Tous ces avantages nous ont conduit à entreprendre l'étude des monocristaux de BGO et BSO massifs en régime d'excitation impulsif nanoseconde.

Nous testerons des cristaux ayant trois origines différentes :

- Française - Bordeaux
- Américaine - Crystal Technology
- Japonaise - Sumitomo

Chapitre 2

Après avoir rappelé les valeurs numériques des grandeurs optiques caractéristiques (indice de réfraction, coefficient d'absorption, pouvoir rotatoire, efficacité quantique), nous étudions la biréfringence induite sous champ externe appliqué dans deux configurations appelées couramment : holographique et couplage et qui correspondent à nos conditions expérimentales.

Enfin, nous décrivons rapidement la méthode de cristallogénèse ainsi que l'influence des caractéristiques de croissance sur la qualité des cristaux obtenus que nous avons étudié.

Notre travail porte donc sur des cristaux de type $\text{Bi}_{12} \text{Si O}_{20}$ (BSO) et $\text{Bi}_{12} \text{Ge O}_{20}$ (BGO). Précisons dès maintenant que pour les expériences que nous allons décrire ces deux cristaux sont indiscernables. Nous parlerons donc indistinctement des propriétés de l'un ou de l'autre en précisant cependant, quand tel sera le cas, les valeurs numériques de certaines grandeurs physiques qui peuvent varier d'un type de cristal à l'autre. Dans toute la suite, les échantillons seront répertoriés comme suit :

Nature du cristal	Origine	N _o
BSO	crystal technology (USA)	1
BSO	Sumitomo	1
BSO	Sumitomo (JAPON)	2
BGO	Bordeaux	5
BGO	Bordeaux	7
BGO	Bordeaux	8
BGO	Bordeaux	9
BGO	Bordeaux	14
BGO	Madrid	1

1 - MAILLE CRISTALLINE

Le système cristallin du BSO est cubique. Sa classe à l'intérieur de ce système est 23 . Ces éléments de symétrie en sont 3 axes binaires perpendiculaires aux faces du cube et quatre axes ternaires confondus avec les diagonales du cube. Ses axes sont représentés Fig. 1.

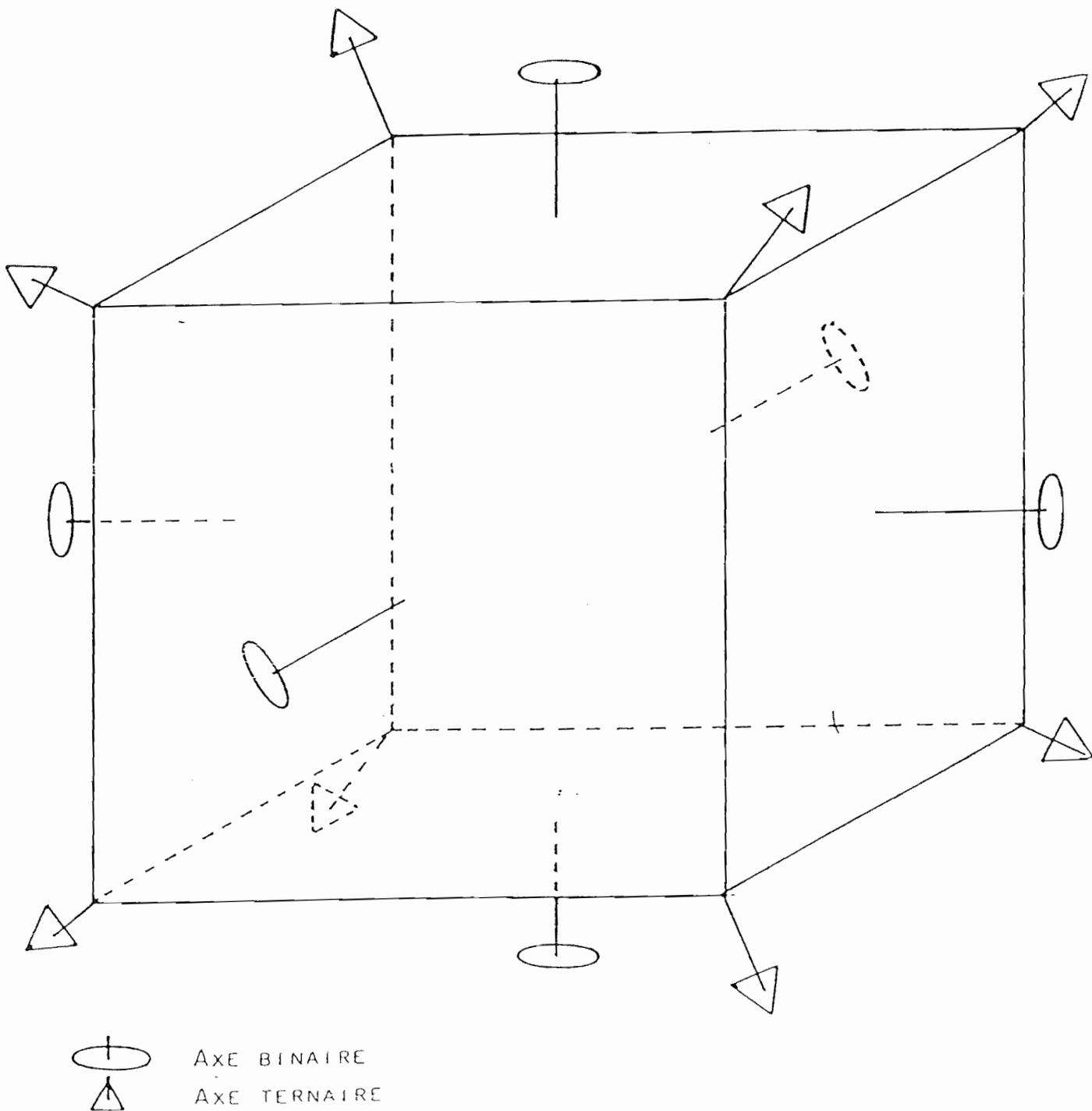


Figure 1 : Axes de symétries du BSO d'après M. Henry [34]

Une maille cristalline comporte deux motifs $\text{Bi}_{12} \text{Si O}_{20}$ ($\text{Bi}_{12} \text{Ge O}_{20}$). Le paramètre de maille varie de 10,1043 Å pour le BSO à 10,1454 Å pour le BGO. Une projection sur le plan $[0, 0, 1]$ de la structure du BGO est montrée Fig. 2. Notons de plus que le taux d'occupation des ions Si^{4+} (Ge^{4+}) est estimé à 0,995 ce qui donne une densité de lacunes voisine de 10^{25} m^{-3} . (Le taux d'occupation est défini comme le rapport du nombre de sites occupés par un atome de silicium au nombre total de sites occupables).

2 - PROPRIÉTÉS OPTIQUES

Les cristaux étudiés se présentent sous la forme de parallélépipèdes ayant en général des arêtes de longueur voisine de 5 mm. Nous connaissons les orientations des axes cristallographiques par rapport aux faces du cube. Les expériences réalisées nécessitent d'avoir des échantillons polis avec un état de surface de qualité optique de manière à minimiser les effets de la diffusion. Nous devons avoir de plus des faces planes pour éviter les problèmes de convergence des faisceaux lumineux lors de la traversée du cristal.

Le polissage a été réalisé aux ateliers du verre de l'Institut d'Optique. Nous avons pu ainsi déterminer les caractéristiques optiques intéressantes pour nos expériences.

2-1 - Indice de réfraction

L'indice de réfraction du BSO est assez élevé et varie de 2,86 pour les largeurs d'onde bleues ($\lambda = 400 \text{ nm}$) à 2,51 pour les longueurs d'onde rouge ($\lambda = 700 \text{ nm}$). La courbe de variation de l'indice en fonction de la longueur d'onde est montrée Figure n° 3. Cette courbe est celle déterminée par Aldich (1971) en utilisant la méthode du prisme [35].

Les fortes valeurs de l'indice sont telles que ces cristaux sont très réfléchissants dans tout le domaine visible. La relation de Fresnel

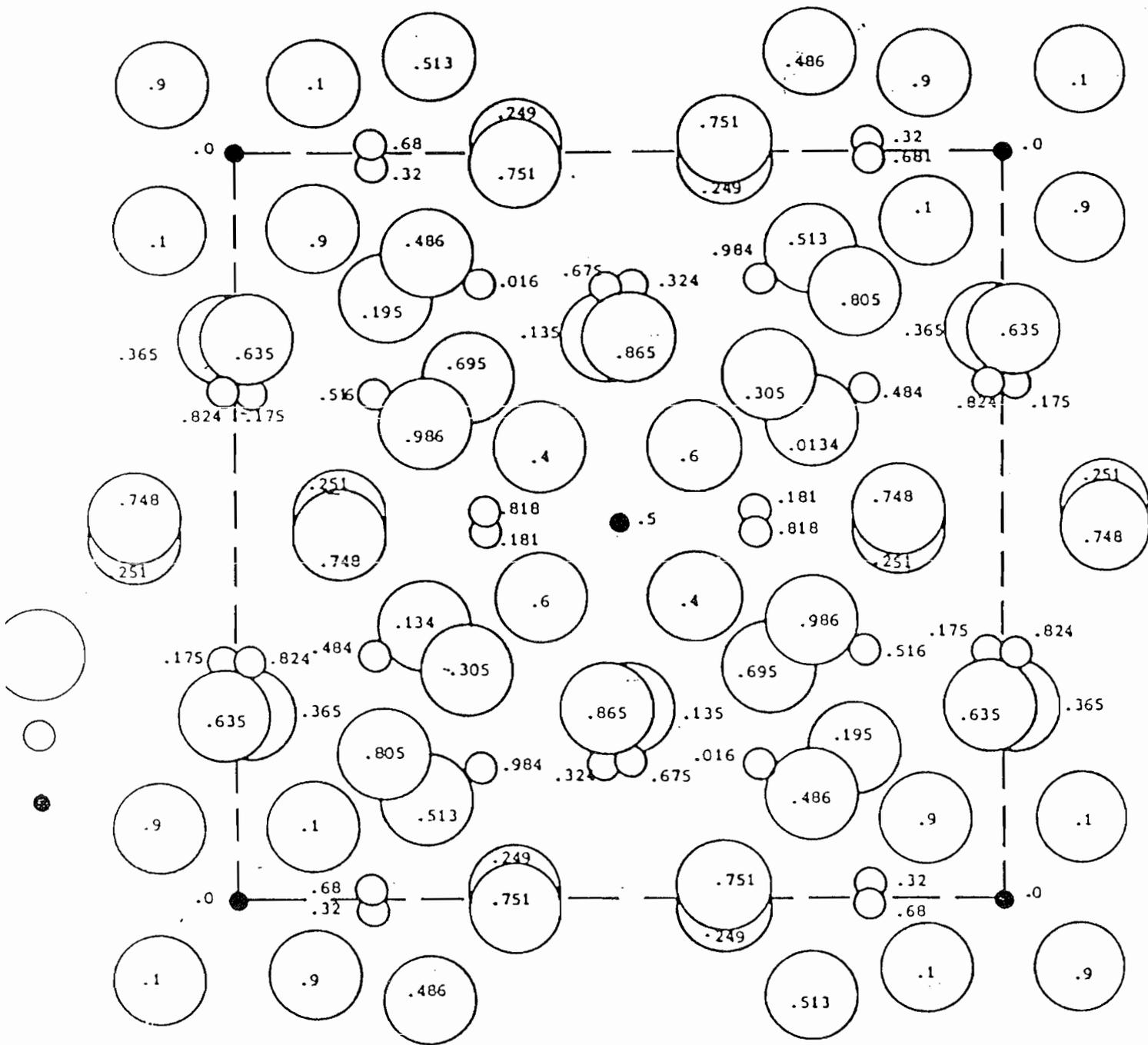


Figure 2 : Projection de la structure du BGO sur le plan (0 0 1)
d'après J.M. Bassat [36]

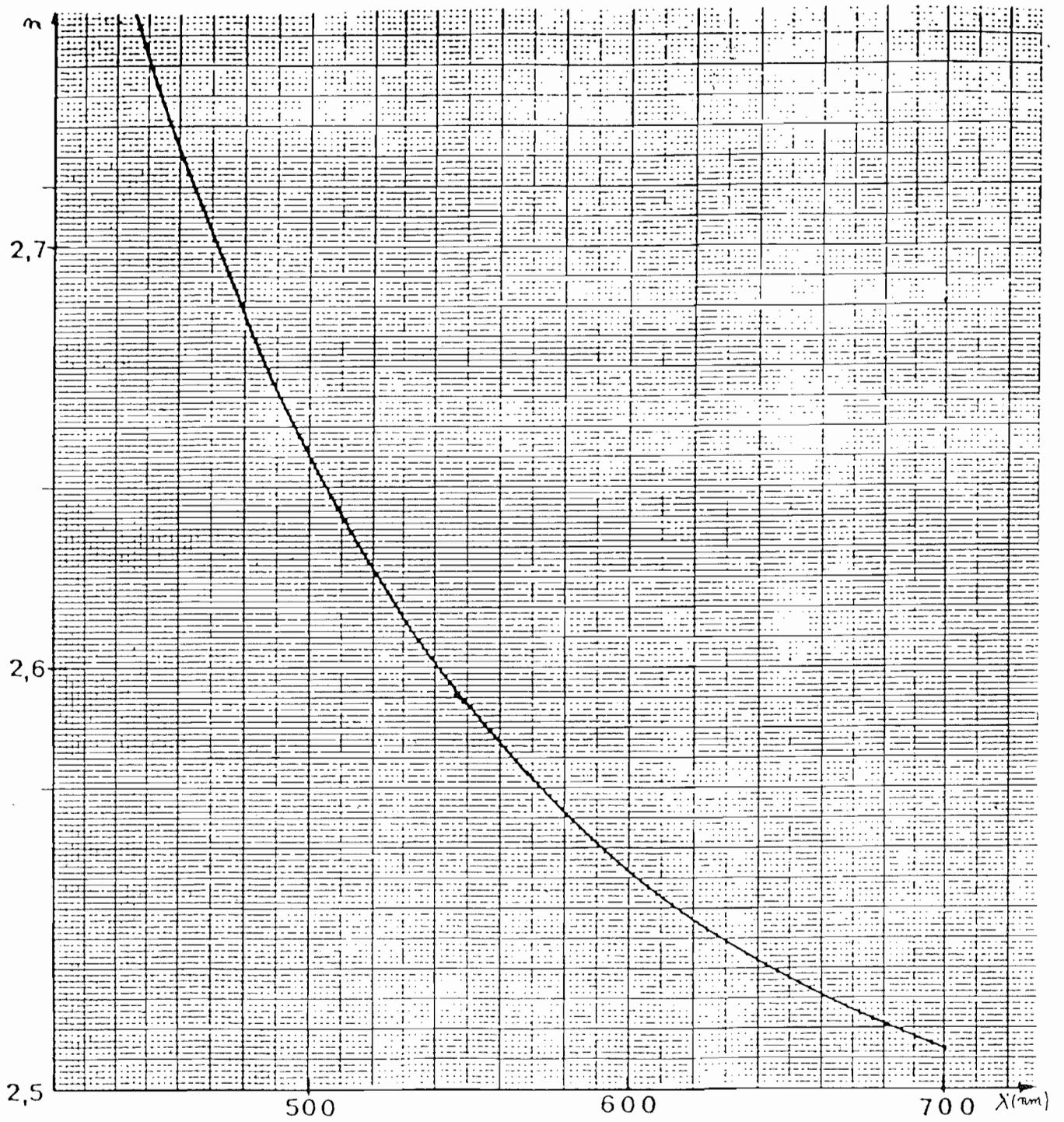


Figure 3 : Variation de l'indice de réfraction du BSO en fonction de la -longueur d'onde. D'après Henry [34].

utilisée dans le cas de l'incidence normale permet de relier le coefficient de réflexion R à l'indice par :

$$R = \left(\frac{n - 1}{n + 1} \right)^2$$

Le tableau I donne les valeurs numériques de R pour différentes longueurs d'onde.

λ (nm)	400	532	633	700
R (%)	23	19,9	18,8	18

Tableau 1

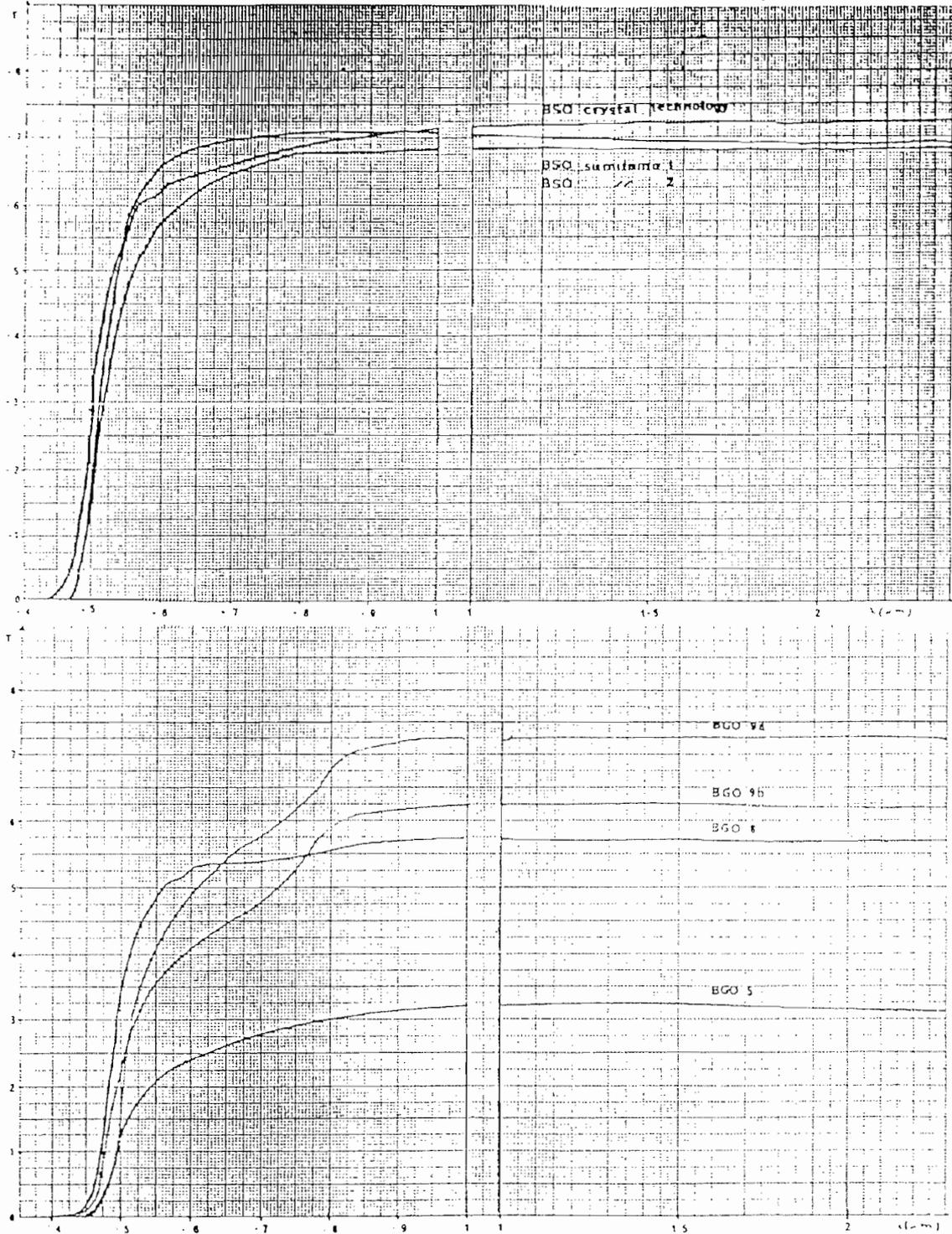
2-2 - Coefficient d'absorption

Les cristaux de BSO ont un aspect coloré jaune qui traduit une forte absorption dans les régions verte et bleue du spectre visible. Cependant, la gamme des longueurs d'onde visibles se trouve dans le pied de la courbe absorption. Les échantillons sont opaques dans les régions Ultraviolet du spectre, et transparents dans l'infrarouge.

Nous présentons figures n° 4a, 4b, les spectres de transmission obtenus à l'aide d'un cary 14 pour nos différents échantillons ; ils s'étendent du bleu ($\lambda = 400$ nm) à l'infrarouge ($2 \mu\text{m}$).

L'observation de ces courbes appelle plusieurs commentaires :
* Pour l'échantillon Crystal Technology, les deux échantillons Sumitomo, l'échantillon de Bordeaux 9(a) la valeur de la transmission T dans l'infrarouge est comprise entre 0,70 et 0,75. Si l'on calcule T en tenant compte des réflexions multiples on obtient :

$$T = \frac{I_t}{I_o} = \frac{(1 - R)^2}{1 - R^2} e^{-2\alpha d}$$



Figures 4 a et 4b : Spectre de Transmission des échantillons étudiés.

où α est le coefficient d'absorption et d l'épaisseur de cristal traversé.

Le coefficient d'absorption étant très faible dans cette région du spectre, on peut déduire :

$$T = \frac{1 - R}{1 + R}$$

La valeur de R tirée de la formule de Fresnel pour l'incidence normale donne $R \cong 18 \%$, ce qui conduit pour T à :

$$T = 70 \%$$

cette valeur est en bon accord avec les résultats obtenus.

* Pour les échantillons de Bordeaux n° 9(b), 8 et 5, la transmission dans l'infrarouge est anormalement faible. Cela est dû à la mauvaise qualité optique de ces cristaux : ils possèdent en effet, de nombreuses marbrures, zones sombres et défauts qui augmentent la diffusion et empêchent une mesure correcte du flux transmis. Ces cristaux seront en partie inutilisables pour nos expériences.

* La dernière remarque concerne le comportement des deux cristaux BGO n° 9. Ils présentent un fort épaulement dans la région rouge du spectre $600 \text{ nm} < \lambda < 800 \text{ nm}$ qui les rendent plus absorbant dans ce domaine de longueurs d'onde.

2-3 - Pouvoir rotatoire

Les cristaux de BSO et BGO possèdent une forte biréfringence circulaire. Les échantillons peuvent être soit levogyres soit dextrogyres.

Le pouvoir rotatoire ρ dépend fortement de la longueur d'onde. Ces variations mesurées pour l'échantillon Crystal Technology sont représentées Figure n° 5. A titre indicatif on a :

pour : $\lambda = 532 \text{ nm}$ $\rho = 35^\circ/\text{mm}$

pour : $\lambda = 633 \text{ nm}$ $\rho = 22^\circ/\text{mm}$

2-4 - Efficacité quantique

Nous définissons l'efficacité quantique notée ϕ comme étant le rapport du nombre d'électrons participant au processus de photoconduction au nombre de photons absorbés par l'échantillon. Ce paramètre a été mesuré par Henry [34]. Nous donnons Figure n° 6 les variations de ϕ avec la longueur d'onde.

3 - PROPRIÉTÉS ÉLECTROOPTIQUES

3-1 - Le tenseur électrooptique

Une des propriétés les plus intéressantes des cristaux de BSO et BGO réside dans le fait que l'on peut modifier leur indice de réfraction en appliquant un champ électrique \vec{E}_0 . Dans ce cas, le cristal devient biréfringent et les variations spatiales de l'indice de réfraction sont décrites par l'ellipsoïde des indices dont l'équation générale est :

$$\left(\frac{1}{n}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{n}\right)_3 z^2 + 2\left(\frac{1}{n}\right)_4 yz + 2\left(\frac{1}{n}\right)_5 yz + \left(\frac{1}{n}\right)_6 xy = 1$$

.../...

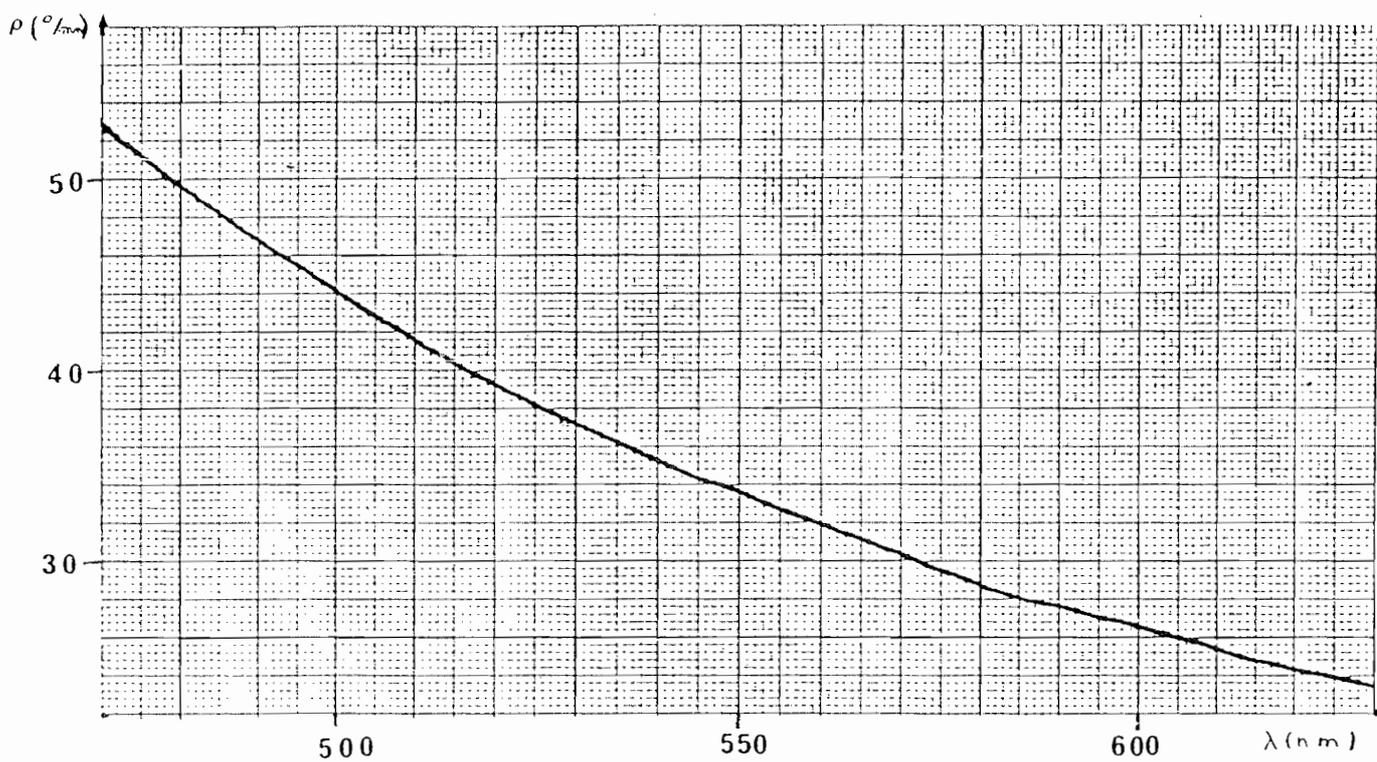


Figure 5 : Variation du pouvoir rotatoire avec la longueur d'onde pour l'échantillon Crystal Technology.

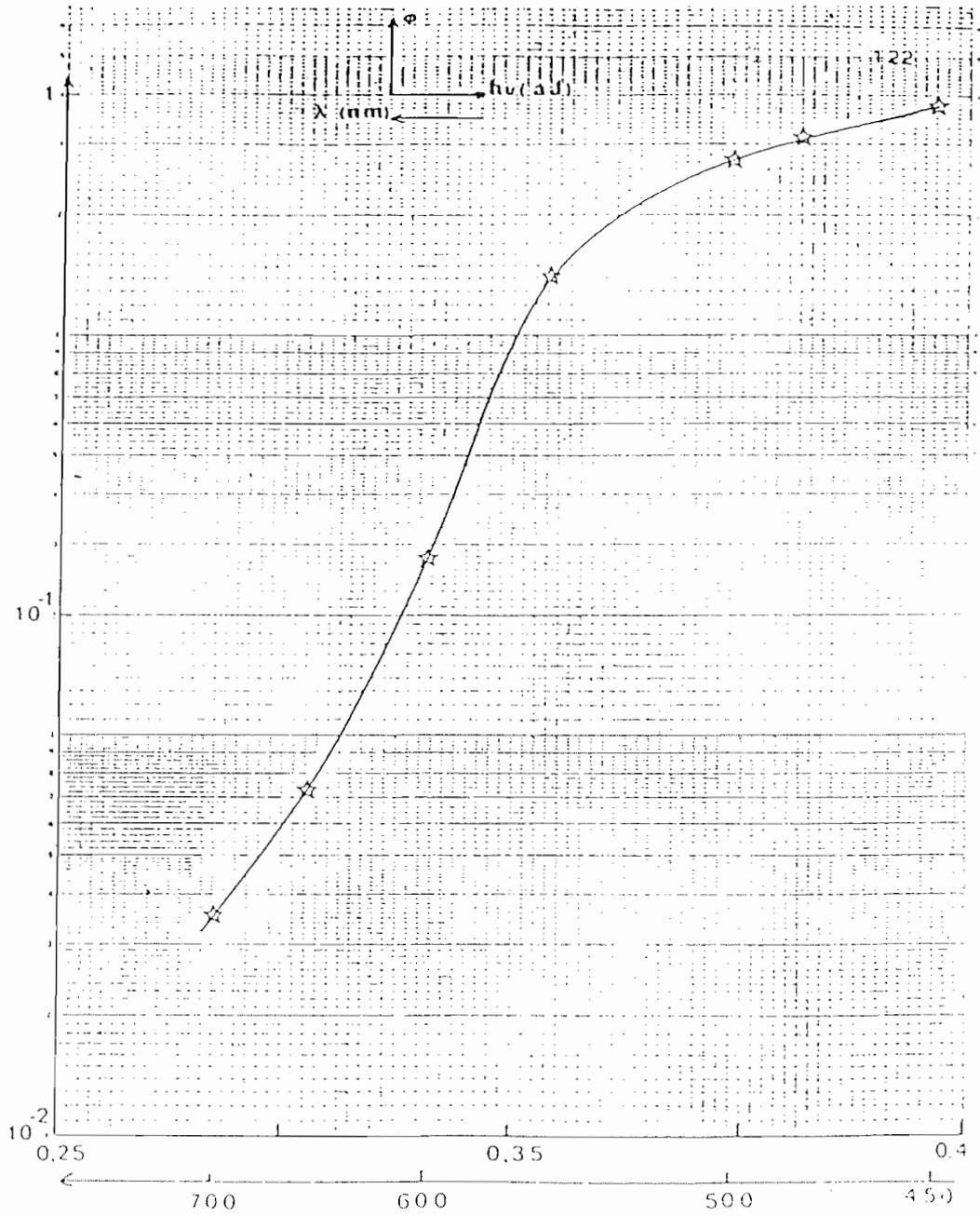


Figure 6 : Variation de l'efficacité quantique en fonction de la longueur d'onde d'après M. Henry [34]

Sans champ externe appliqué le BSO est isotrope et on a donc dans le repère des axes cristallographiques $\vec{a} [1, 0, 0]$, $\vec{b} [0, 1, 0]$, $\vec{c} [0, 0, 1]$

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} = 1$$

où n est l'indice de réfraction du cristal.

Pour des faibles perturbations (ce qui est le cas ici car les variations induites sont de l'ordre de 10^{-5}), on peut développer le terme $\frac{1}{n^2}$ au premier ordre.

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 = \frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 \quad \left(\frac{1}{n^2}\right)_4 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_4$$

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_2 = \frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2 \quad \left(\frac{1}{n^2}\right)_5 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_5$$

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_3 = \frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3 \quad \left(\frac{1}{n^2}\right)_6 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6$$

L'équation de l'ellipsoïde des indices s'écrit donc :

$$\left[\frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1\right] x^2 + \left[\frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2\right] y^2 + \left[\frac{1}{n^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3\right] z^2$$

$$+ 2 \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 yz + 2\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 zx + 2\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 xy = 1$$

Dans le cas du BSO (BGO) les modifications d'indice créées sont dues à un effet électrooptique linéaire (effet Pockels). Les perturbations d'indice sont reliées au champ appliqué \vec{E}_0 par le tenseur électro-

.../...

optique $[r_{ij}]$. Ce tenseur s'écrit :

$$[r_{ij}] = \begin{bmatrix} r_{11} & r_{12} & r_{13} \\ r_{21} & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ r_{61} & r_{62} & r_{63} \end{bmatrix}$$

et on a :

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_i = \sum_{j=1}^3 r_{ij} E_j$$

Les propriétés de symétrie du BSO (classe 2 3) permettent de simplifier considérablement l'écriture du tenseur $[r_{ij}]$. On obtient ainsi pour tous les cristaux cubiques de la classe 2 3 :

$$[r_{ij}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{bmatrix}$$

avec $r_{41} = 5 \cdot 10^{-12}$ m/V pour le BSO [37]

L'équation de l'ellipsoïde des indices sous champ s'écrit donc dans le repère des axes cristallographiques

$$(1) \quad \boxed{\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + 2 yz r_{41} E_1 + 2 xz r_{41} E_2 + 2 xy r_{41} E_3 = 1}$$

3-2 - Calcul de la biréfringence induite

Nous allons maintenant calculer les caractéristiques du cristal biréfringent dues à l'application d'un champ électrique \vec{E}_0 , c'est à dire déterminer ses axes principaux : (les axes le long desquels les vecteurs \vec{D} et \vec{E} d'une onde électromagnétique se propageant dans ce milieu sont parallèles) et les indices de réfraction vus par une onde lumineuse pour chacun de ces axes.

Dans ce repère des axes principaux $(O, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ l'équation de l'ellipsoïde des indices s'écrit :

(2)

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

Il suffit donc pour calculer $(O, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ et n_x, n_y, n_z d'exprimer l'équation (1) sous la forme (2).

a) Configuration holographique (Fig. n° 7)

La configuration holographique (aussi appelée configuration rendement) représente le cas où le champ électrique \vec{E}_0 est appliqué suivant la direction du vecteur $(1, 1, 0)$, l'ellipsoïde des indices s'écrit donc :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + \frac{2r_{41} E_0}{\sqrt{2}} yz + \frac{2r_{41} E_0}{\sqrt{2}} zx = 1$$

On obtient le système des axes principaux en faisant tout d'abord une rotation des axes autour de \vec{c} avec un angle de 45° , on se place ainsi dans un repère $(0, \vec{u}, \vec{v}, \vec{w})$ où l'ellipsoïde a pour équation :

$$\frac{x'^2 + y'^2 + z'^2}{n^2} + 2 r_{41} E_0 x' z' = 1$$

de là par une rotation de 45° autour de l'axe v on obtient le repère des axes principaux $(0, \vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ avec :

.../...

$$\vec{x} \begin{vmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \end{vmatrix} \quad \vec{y} \begin{vmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \quad \vec{z} \begin{vmatrix} -\frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \end{vmatrix}$$

Dans ce repère l'équation de l'ellipsoïde s'écrit :

$$\boxed{x^2 \left(\frac{1}{n^2} + r_{41} E_o \right) + \frac{y^2}{n^2} + z^2 \left(\frac{1}{n^2} - r_{41} E_o \right) = 1}$$

on déduit donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{n_x^2} = \frac{1}{n^2} + r_{41} E_o \\ \frac{1}{n_y^2} = \frac{1}{n^2} \\ \frac{1}{n_z^2} = \frac{1}{n^2} - r_{41} E_o \end{array} \right.$$

d'où après développement limité au premier ordre :

$$\boxed{\begin{array}{l} n_x = n + \frac{1}{2} r_{41} n^3 E_o \\ n_y = n \\ n_z = n - \frac{1}{2} r_{41} n^3 E_o \end{array}}$$

La figure n° 7 représente les orientations des axes par rapport aux axes cristallographiques. Pour une onde lumineuse qui se propage

suivant Oy la biréfringence induite vaut :

$$\Delta n = r_{41} n^3 E_0$$

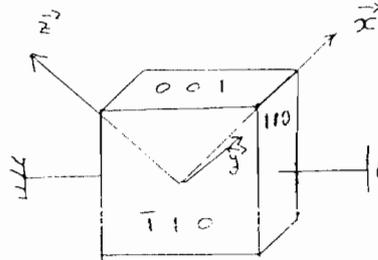


Figure 7 : Schéma de la configuration holographique

b) Configuration couplage

On applique le champ dans la direction (0, 0, 1)

$$\vec{E}_0 = E_0 \vec{c}$$

le seul terme perturbateur non nul s'écrit :

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 = r_{41} E_0$$

l'ellipsoïde des indices devient :

$$\frac{x^2}{n^2} + \frac{y^2}{n^2} + \frac{z^2}{n^2} + 2 r_{41} xy E_0 = 1$$

par rotation de 45° autour de \vec{c} on obtient directement les axes principaux (0, \vec{x} , \vec{y} , \vec{z}) avec :

.../...

$$\vec{x} = \begin{vmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \quad \vec{y} = \begin{vmatrix} -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{vmatrix} \quad \vec{z} = \begin{vmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{vmatrix}$$

L'équation de l'ellipsoïde devient dans ce repère :

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

d'où on tire :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{n_x^2} = \frac{1}{n^2} + r_{41} E_o \\ \frac{1}{n_y^2} = \frac{1}{n^2} - r_{41} E_o \\ \frac{1}{n_z^2} = \frac{1}{n^2} \end{array} \right.$$

Soit après développement limité :

$$\boxed{\begin{array}{l} n_x = n - \frac{n^3 r_{41} E_o}{2} \\ n_y = n + \frac{1}{2} n^3 r_{41} E_o \\ n_z = n \end{array}}$$

La figure n° 8 représente les orientations des axes par rapport aux axes cristallographiques. Pour une onde lumineuse se

propageant selon oy , la biréfringence induite vaut :

$$\Delta n = \frac{r_{41} E_o n^3}{2}$$

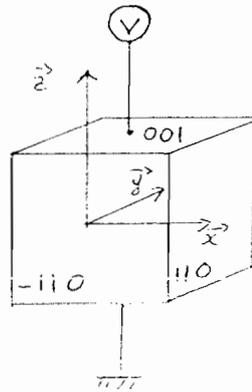


Figure 3-3 - Configuration couplage.

Les échantillons que nous avons utilisés ont été taillés de manière à pouvoir se placer dans l'une ou l'autre des configurations que nous venons de décrire.

3-3 - Matrice de transfert T

Comme nous venons de le voir, sous champ externe appliqué, le BSO possède à la fois du pouvoir rotatoire et de la biréfringence. Dans le repère des axes principaux le tenseur des permittivités peut s'écrire :

$$\epsilon' = \epsilon + i\epsilon_o [G]$$

où

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & \epsilon_{22} \end{pmatrix}$$

est la contribution de la biréfringence et :

$$[G] = \begin{pmatrix} 0 & -G \\ G & 0 \end{pmatrix}$$

celle du pouvoir rotatoire.

L'équation de propagation des ondes est donnée par :

$$(3) \quad \nabla \times (\nabla \times E) - \mu(\epsilon + i \epsilon_0 [G]) \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0$$

Nous cherchons des solutions de la forme :

$$E(z,t) = A_1(z) \vec{e}_1 e^{i(\omega t - k_1 z)} + A_2(z) \vec{e}_2 e^{i(\omega t - k_2 z)}$$

où z est la direction de propagation de l'onde lumineuse \vec{e}_1, \vec{e}_2 les axes principaux de biréfringence du cristal et \vec{k}_1 et \vec{k}_2 les vecteurs d'onde qui leurs sont associés.

En remplaçant $E(z,t)$ par son expression dans l'équation (3) et en supposant que $\frac{\partial A_j}{\partial z} \ll k_j A_j$, on obtient alors le système d'ondes couplées suivant :

$$(4) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{dA_1}{dz} = -A_2 \frac{k_0^2}{2k_1} G e^{-i(k_2 - k_1)z} \\ \frac{dA_2}{dz} = -A_1 \frac{k_0^2}{2k_2} G e^{-i(k_2 - k_1)z} \end{array} \right. \quad \text{avec } k_0 = \frac{\omega}{c}$$

On déduit l'expression générale de $A_{1,2}(z)$ par résolution du système (2). On obtient alors la solution suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} A_1(z) = e^{-i \frac{\Delta k}{2} z} \left[A_1(0) (\cos Sz + i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sz) - \frac{\omega}{c} \frac{G}{2n_1 S} A_2(0) \sin Sz \right] \\ A_2(z) = e^{i \frac{\Delta k}{2} z} \left[A_1(0) \frac{\omega G}{c 2n_2 S} \sin Sz + A_2(0) (\cos Sz - i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sz) \right] \end{array} \right.$$

.../...

où $A_1(0)$ et $A_2(0)$ sont les valeurs de A_1 et A_2 à l'entrée du cristal, n_2 et n_1 les indices associés aux axes principaux \vec{e}_1 et \vec{e}_2 c'est à dire que :

$$k_1 = \frac{n_1 \omega}{c} \quad k_2 = \frac{n_2 \omega}{c}$$

on a posé en outre :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta k = k_2 - k_1 \\ S^2 = \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \frac{G^2}{4 n_1 n_2} \end{array} \right.$$

On peut donc déduire l'expression générale du champ optique à la fréquence ω . Si on pose :

$$\vec{E}(z) = E_1(z) \vec{e}_1 + E_2(z) \vec{e}_2$$

on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} E_1(z) = e^{-i \frac{(k_1 + k_2)}{2} z} \left[A_1(0) \left(\cos Sz + i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sz \right) - \frac{k_o G}{2n_1 S} A_2(0) \sin Sz \right] \\ E_2(z) = e^{-i \frac{(k_1 + k_2)}{2} z} \left[A_1(0) \frac{k_o G}{2n_2 S} \sin Sz + A_2(0) \left(\cos Sz - i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sz \right) \right] \end{array} \right.$$

de plus $E_1(0) = A_1(0)$; $E_2(0) = A_2(0)$ on déduit donc l'expression de la matrice de transfert T définie par :

$$\vec{E}(d) = T \vec{E}(0)$$

où d est l'épaisseur de la lame cristalline.

$$T = e^{-i \frac{(k_1 + k_2)}{2} d} \begin{bmatrix} \cos Sd + i \frac{\Delta k}{2S} Sd & - \frac{k_o G}{2n_1 S} \sin Sd \\ \frac{k_o G}{2n_2 S} \sin Sd & \cos Sd - i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sd \end{bmatrix}$$

La connaissance de cette matrice de transfert T permet de connaître l'état de polarisation de l'onde transmise par la lame cristalline quelle que soit la polarisation incidente. En effet, rappelons que pour définir complètement l'état de polarisation, il suffit de connaître le nombre complexe χ défini par :

$$\chi = \frac{A_2 e^{-i k_2 d}}{A_1 e^{-i k_1 d}}$$

la connaissance de χ permet de trouver l'ellipticité e de l'onde et l'orientation des axes de l'ellipse ψ car :

$$\operatorname{tg} 2 \psi = \frac{2 \operatorname{Re} [\chi]}{1 - [\chi]^2}$$

$$\sin(2 \operatorname{Arctg} e) = - \frac{2 \operatorname{Im} [\chi]}{1 + [\chi]^2}$$

Dans le cas du BSO, si $\chi(0)$, représente l'état de polarisation de l'onde incidente, $\chi(d)$ est donné par :

$$\chi(d) = \frac{\chi(0) (\cos Sd - i \frac{\Delta k}{2S} \sin dS) + \frac{\omega}{c} \frac{G}{2n_2 S} \sin dS}{\cos Sd + i \frac{\Delta k}{2S} \sin Sd - \chi(0) \frac{\omega}{c} \frac{G}{2n_1 S} \sin dS}$$

5 - CRISTALLOGÉNÈSE [3]

5-1 - Méthode de croissance

Nous ne connaissons pas les conditions de fabrication des cristaux achetés à l'étranger (Sumitomo, Crystal Technology), par contre pour les échantillons fabriqués par le Laboratoire de Chimie du Solide du CNRS à Bordeaux, nous pouvons décrire le principe et les principales caractéristiques de la méthode de croissance cristalline utilisée.

A Bordeaux, les échantillons sont fabriqués selon la méthode de Czochralski [38] (méthode de tirage). De l'oxyde de Bismuth Bi_2O_3 et du dioxyde de germanium GeO_2 sont mélangés dans un creuset en platine et fondus par chauffage à induction. Le bain de liquide obtenu est maintenu à une température de l'ordre de 950°C .

La fabrication du cristal est amorcée à l'aide d'un germe mono-cristallin orienté (provenant d'un tirage antérieur) mis en contact avec le liquide, ensuite la croissance s'effectue par un déplacement vertical lent et continu du porte germe. De plus, pour assurer une bonne homogénéité de la température du liquide, l'axe de tirage tourne sur lui-même pendant toute la durée de la croissance.

Les échantillons ainsi préparés sont refroidis puis recuits. Le recuit a pour but de libérer le cristal des contraintes qu'il a subies au cours de la croissance. On porte les cristaux à environ 850°C sous atmosphère d'oxygène, pendant quelques dizaines d'heures avec une montée et une descente en température de l'ordre de 20°C par heure.

Enfin, les échantillons sont orientés taillés et polis optiquement.

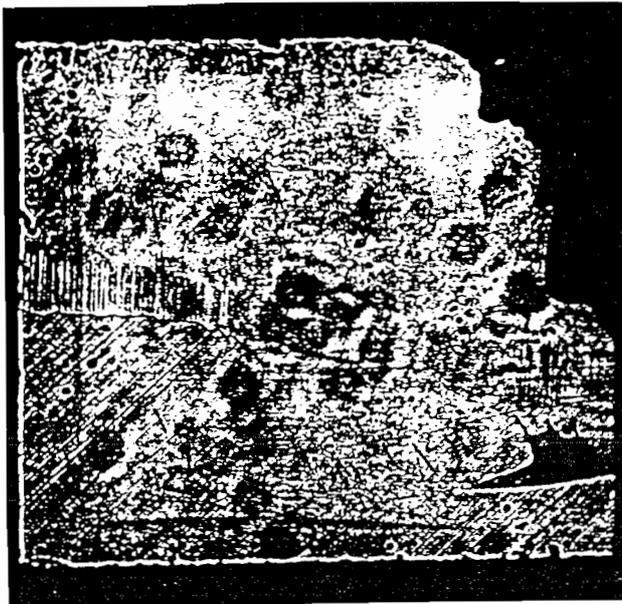
5-2 - Paramètres importants de la croissance

a) Vitesse de tirage

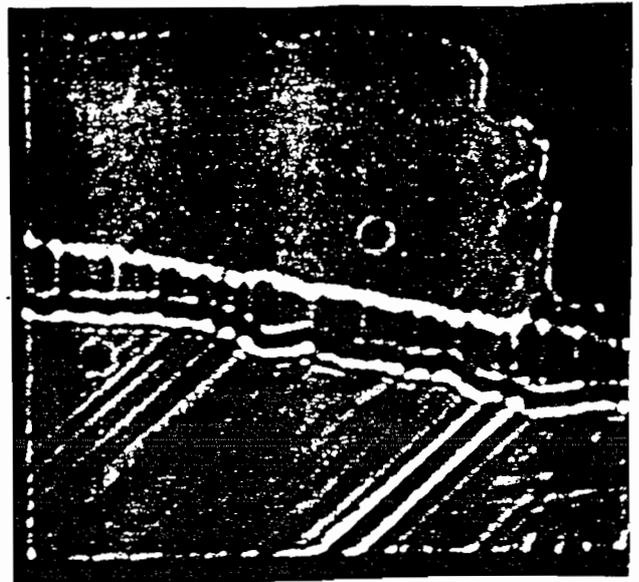
La vitesse de tirage utilisée pour la croissance des échantillons de BGO que nous avons étudiés se situe aux alentours de quelques mm par heure. Cette vitesse est choisie de façon à :

- permettre une bonne dissipation de la chaleur latente de solidification par le cristal ;
- éviter tout phénomène d'éclatement du monocristal engendré par les contraintes thermiques lors de la croissance ;
- éviter au maximum la formation d'inclusions et l'absorption d'impuretés à partir du liquide.

Les instabilités de la vitesse de tirage entraînent des variations locales de l'indice de réfraction, la formation de zones sombres ou de stries. La figure n° 9 montre la présence de tels défauts dans l'échantillon fabriqué à l'Université de Madrid, visualisés par striosco-



1



2

Figure 9 : Etude de l'homogénéité du cristal de BGO par strioscopie

1 - mise au point sur la face du cristal

2 - mise au point à l'intérieur du cristal

pie. Nous voyons la face d'entrée du cristal (à), l'intérieur du cristal (b), et hormis la présence d'une cassure on peut noter l'existence de stries et de plusieurs domaines cristallins, ce cristal ne sera pas étudié par la suite. Pour obtenir des cristaux de bonne qualité optique, il semble nécessaire d'avoir une vitesse de tirage très régulière.

b) Vitesse de rotation

La qualité des cristaux obtenus dépend également de la forme de l'interface cristal-liquide. La forme de cette interface dépend des mouvements convectifs présents dans le liquide. On distingue :

- les mouvements de convection naturelle dus à l'existence simultanée d'un gradient thermique axial et radial qui rendent l'interface convexe par rapport au liquide ;
- les mouvements de convection forcée qui sont dus à la rotation des cristaux dans le bain liquide et qui sont de sens opposé aux mouvements de convection naturelle.

On peut montrer ainsi qu'il existe une vitesse de rotation optimale ω_0 pour laquelle ces deux phénomènes s'équilibrent rendant ainsi l'interface la plus plane possible. Selon que la vitesse ω est plus petite ou plus grande que ω_0 , on obtient les phénomènes suivants :

- $\omega < \omega_0$: les impuretés ont tendance à rester au centre du bain et être absorbées par le cristal ;
- $\omega = \omega_0$: peu de défauts apparaissent ;
- $\omega > \omega_0$: il se forme une turbulence autour du cristal qui nuit au contrôle de la qualité du contact liquide-cristal et peut engendrer la formation des cassures.

La vitesse ω_0 utilisée à Bordeaux est de l'ordre de 20 tours par minute.

5-3 - Conclusion

Les conditions de cristallogénèse influent non seulement sur la qualité optique des cristaux, mais également sur leur composition chimique. En effet, les cristaux sont contaminés par des impuretés qui peuvent en fait, jouer le rôle primordial pour l'effet photoréfractif de

centres donneurs ou accepteurs, et dont la concentration dépend des méthodes de préparation des produits de base de la croissance, du creuset, et des vitesses de tirage et de rotation. Le tableau n°2 précise pour les cristaux BGO de Bordeaux les valeurs des vitesses de rotation et de tirage.

numéro de l'échantillon	5	7	8	9	14
vitesse de tirage mm/h	5	2	2	1,5	1,6
ω nombre de tours par mm	9	20	20	20	20
N° du tirage	1er	2 ^e	1er	1er	1er

Tableau 2

Il faut noter que toutes ces caractéristiques sont assez proches les unes des autres ce qui ne devrait pas entraîner de différences fondamentales du comportement de ces échantillons les uns par rapport aux autres.

Chapitre 3

INTRODUCTION

Depuis une dizaine d'années l'étude de la photoconduction des cristaux de BSO et BGO fait l'objet de nombreuses recherches et expériences. Il ressort de ces travaux une grande complexité des mécanismes mis en jeu. Il apparaît que les processus de conduction dépendent énormément des conditions dans lesquelles le cristal est utilisé (longueur d'onde d'excitation [39... 43], densité de puissance lumineuse incidente, tension appliquée [44... 48], température de l'échantillon) [49... 52]. Il est cependant acquis que, sous illumination les porteurs majoritaires sont des électrons et que l'on peut observer 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 située dans la bande interdite du cristal et la bande de conduction. La présence de ces niveaux est due à deux principales raisons : l'existence de lacunes ou de défauts de la maille cristalline, l'introduction volontaire ou involontaire d'impuretés lors de la cristallisation. Ces défauts et/ou impuretés jouent un rôle essentiel dans l'effet photoréfractif puisqu'ils se comportent comme centres donneurs ou accepteurs d'électrons.

Le but de ce chapitre n'est pas de présenter l'ensemble des résultats connus concernant la photoconduction mais de comprendre les mécanismes qui, dans une configuration expérimentale donnée, conduisent à la création de l'effet photoréfractif. En particulier, il paraît intéressant de voir si le modèle développé par Kukhtarev, comportant une catégorie de centres donneurs unique et une catégorie unique de centres accepteurs, peut encore être suffisant pour rendre compte de l'ensemble des phénomènes observés aussi bien en régime d'excitation quasi-continu que pulsé nanoseconde.

Après avoir rappelé la structure de bande énergétique du BSO (BGO) généralement admise à ce jour, nous décrivons les résultats prévus par le modèle à deux niveaux concernant l'évolution temporelle du photocourant. Nous présentons ensuite les résultats expérimentaux que nous avo

obtenus et les conclusions qu'ils entraînent. Un nouveau modèle à trois niveaux sera développé afin d'expliquer l'ensemble de nos observations.

1 - STRUCTURE DE BANDE DE CRISTAUX DE BSO ET BGO

Il n'existe pas de méthode expérimentale permettant de caractériser de façon globale l'ensemble des niveaux d'énergie présents dans la structure de bande du BSO. Nous citons ici quatre techniques complémentaires qui conduisent à une image assez précise de cette structure et donnent un certain nombre de paramètres importants comme par exemple :

- la largeur de la bande interdite ;
- la profondeur énergétique des pièges ;
- les concentrations en centres donneurs et accepteurs ;
- la nature des pièges.

1-1 - Etude des spectres d'absorption et de photoconductivité

La largeur de la bande interdite se situe aux alentours de 3,2 eV (ce qui correspond à l'énergie d'un photon de longueur d'onde $\lambda = 387$ nm). Cependant, l'analyse des variations du coefficient d'absorption avec la longueur d'onde montre la présence d'une zone d'absorption comprise dans le spectre visible et donc faisant intervenir des photons d'énergie inférieure à la bande interdite. Une analyse précise de cette zone a été faite par R. Oberschmid [53]. Il montre en particulier que la racine carrée du coefficient d'absorption varie linéairement avec l'énergie des photons incidents. Cette variation est montrée figure n° 1 pour des échantillons de BSO (1-a) et BGO (1-b) à la température $T = 300^\circ\text{K}$.

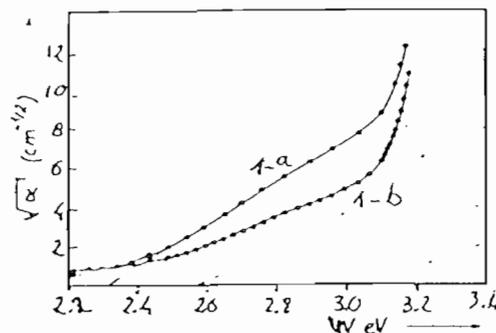


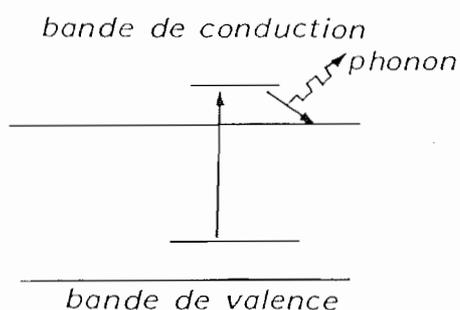
Figure n° 1

Cette propriété est caractéristique d'une transition optique indirecte (assistée dans le cas du BSO, par une émission de phonons). Le gap énergétique séparant les deux états de cette transition est donné par la valeur de l'intersection de la droite ($\sqrt{\alpha} = f(w)$) avec l'axe des énergies et vaut dans ce cas environ 2,2 eV.

Si de plus, nous observons le spectre de photoconductivité donné figure n° 2, nous constatons qu'à cette zone d'absorption dans le spectre visible correspond une forte conductivité à température ambiante. On peut donc conclure de ces observations que les centres responsables de l'absorption dans le domaine visible possèdent des états susceptibles de libérer un électron et dont le niveau d'énergie minimal se situe environ à 2,3 eV sous la bande de conduction, cette transition pouvant être induite par des photons d'énergie comprise entre 2,3 et 3,2 eV.

Les expériences complémentaires permettent de déterminer la nature de ces centres. Il pourrait s'agir d'un défaut de la maille cristalline formé par un atome de Bismuth triplement ionisé situé dans un tétraèdre d'oxygène et couplé avec un des atomes d'oxygène qui aurait perdu un électron. Ce type de centre jouerait le rôle de donneur et sa concentration serait voisine de $6 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ pour le BGO et $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ pour le BSO.

Cette transition peut être schématisé comme suit :



l'énergie du phonon optique crée variant 0,084 eV pour le BGO à 0,1 eV pour le BSO.

.../...

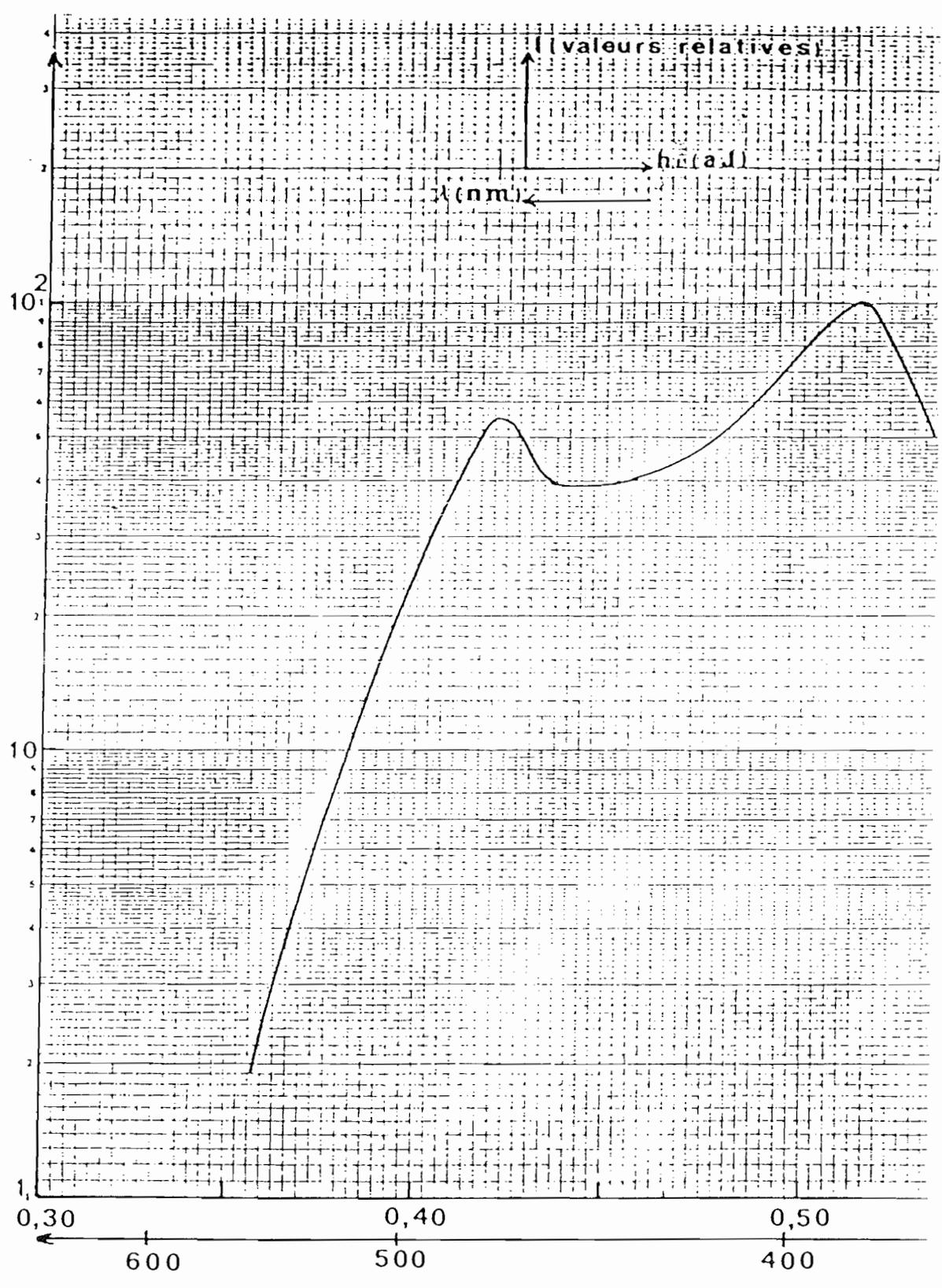


Figure 2 : Variation du courant de photoconduction en fonction de l'énergie des photons [54].

1-2 - Photoluminescence [55, 56, 57]

Il existe dans le BSO deux bandes d'émission de photoluminescence. La première est centrée autour de 640 nm et n'est excitée que par un rayonnement ultra-violet centré autour de 365 nm. Elle correspond à une transition directe entre la bande de valence et la bande de conduction. Les spectres d'excitation et d'émission sont représentés figure n° 3-a. Notons dès maintenant que puisque la longueur d'onde d'excitation que nous utilisons se situe dans le spectre visible cette transition n'interviendra pas dans le mécanisme mis en jeu.

La seconde bande centrée dans l'infrarouge proche autour de 950 nm est beaucoup plus faible que la précédente. Elle peut être excitée non seulement par du rayonnement ultra-violet mais aussi par des longueurs d'onde situées dans le spectre visible. Son spectre d'excitation est montré figure n° 3-b. L'étude de ce spectre permet de déterminer que les centres excitables se trouvent à environ 2,25 eV sous bande de conduction quand ils sont occupés par un électron et à 1,3 eV sous la bande de conduction quand ils sont occupés par un trou. C'est la recombinaison radiative d'un électron dans un de ces pièges qui génère un photon à la longueur d'onde $\lambda = 950$ nm. Il faut cependant noter que des expériences ont montré qu'au delà de la température $T_c = 320$ °K cette transition n'existe plus [54]. Ce phénomène impose qu'à température ambiante ($T = 300$ °K) ce processus de recombinaison radiative joue un rôle secondaire. Nous avons essayé sans succès de détecter la présence de cette émission dans nos conditions expérimentales.

1-3 - Courants stimulés thermiquement (TSC)

La méthode TSC a été appliquée pour la première fois au BSO en 1971 par R.B. Lauer [56]. Cette méthode consiste à porter l'échantillon à la température de 80°K et à l'éclairer pendant quelques minutes avec une radiation ultra-violette de façon à remplir tous les pièges à électrons présents dans la bande interdite. On réchauffe alors lentement l'échantillon et on détecte le courant qui le traverse. Un tracé typique des résultats obtenus est montré figure n° 4.

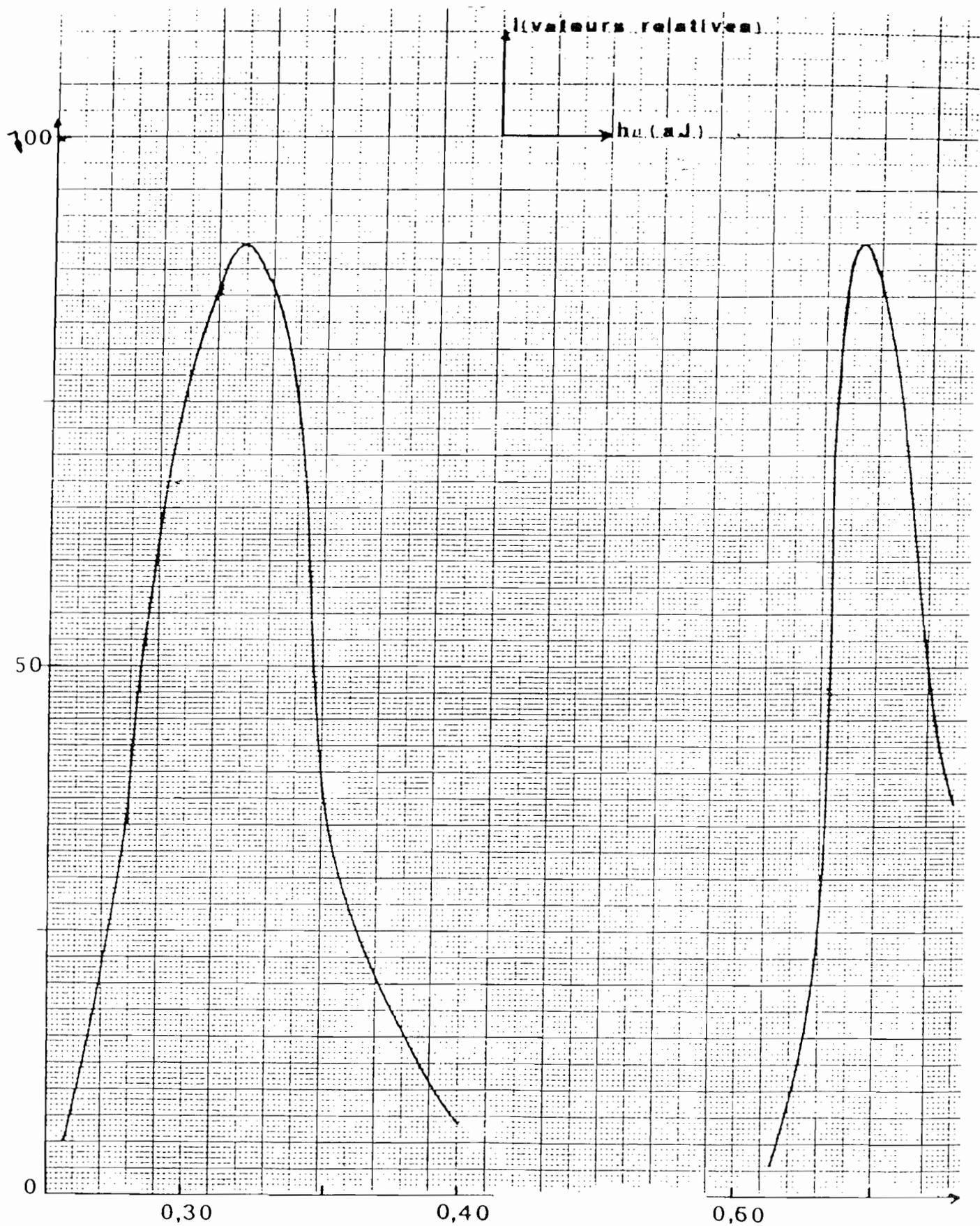


Figure 3-a : Spectre d'excitation (à gauche) et spectre d'émission (à droite) de la photoluminescence émettant autour de 630 nm [55].

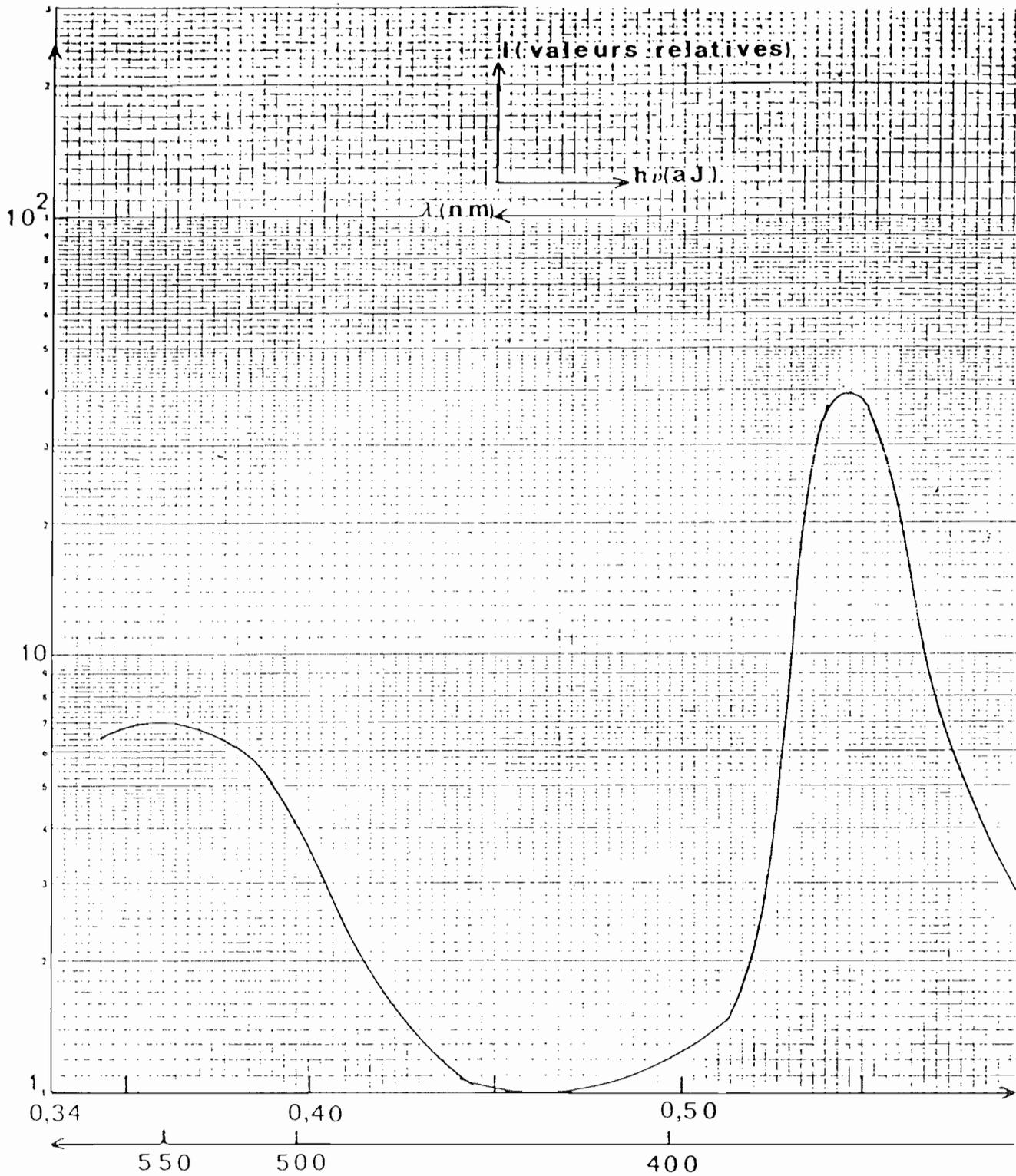


Figure 3-b : Spectre d'excitation de la photoluminescence émettant autour de 950 nm [56].

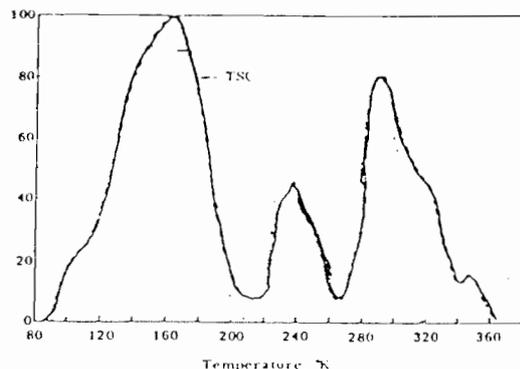


Figure 4 : *Signal TSC caractéristique*

On obtient une série de pics dont chacun est caractéristique d'un type de pièges. La figure 4 montre pour le BSO la présence de trois types de pièges principaux. On montre de plus que leur concentration est voisine de 10^{16} cm^{-3} et que leur profondeur sous la bande de conduction est comprise entre 0,3 et 0,6 eV.

Ces centres proches de la bande de conduction peuvent donc aisément piéger un électron. Celui-ci, même à la température ambiante peut s'en extraire facilement et participer de nouveau à la conduction. Ce piégeage transitoire a pour effet de réduire la conductivité du cristal. Nous verrons par la suite que ces pièges jouent un rôle important dans l'établissement de l'effet photoréfractif.

1-4 - Méthode de spectroscopie par transitoire de courants photo-induits (PICTS)

Cette méthode est développée par Zielinger [58, 59] pour l'étude des niveaux profonds des cristaux de BGO. Elle repose sur l'analyse des transitoires de dépiégeage thermique d'électrons. La technique expérimentale est la suivante : on éclaire l'échantillon pendant un certain temps de façon à saturer les pièges présents dans la bande interdite. Brusquement on coupe la lumière et on analyse la cinétique de décroissance du photocourant. L'analyse différentielle des constantes de temps de retour à l'équilibre en fonction de la température permet pour un balayage en température

assez grand de déterminer le nombre de pièges présents et pour chacun d'eux l'énergie thermique d'ionisation et la section efficace de capture.

Un spectre de PICTS caractéristique est montré figure n° 5. On obtient une série de pics dont chacun est caractéristique d'un type de pièges. On met ainsi en évidence pour le BGO la présence de six sortes de pièges dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau I.

n° du piège	1	2	3	4	5	6
énergie d'ionisation (eV)	0,17	0,25	0,4	0,6	0,9	0,85
section efficace de capture (cm ²)	$7 \cdot 10^{-16}$	$4 \cdot 10^{-14}$	$3 \cdot 10^{-15}$	10^{-12}	10^{-10}	$7 \cdot 10^{-4}$

Les conclusions de cette étude sont intéressantes. En effet, on peut regrouper semble-t-il ces six centres en deux catégories.

- les centres 1-2-3-4 jouent le rôle de pièges à électrons peu profonds. Leur gamme d'énergie d'ionisation (comprise entre 0,1 et 0,6 eV) permet de les identifier comme étant du même type que ceux détectés par la méthode TSC.

- par contre, les centres 5 et 6 ont une section efficace de capture beaucoup plus importante que les autres (surtout en ce qui concerne le pic n° 6). De plus, leur énergie d'activation thermique est plus importante ($\approx 0,9$ eV). Il se pourrait que ces centres jouent le rôle important de centre accepteur pour l'effet photoréfractif.

1-5 - Schéma de la bande

En résumé le schéma de bande que nous utiliserons est donné Figure n° 6. A la température ambiante, on néglige la luminescence.

2 - ETUDE DU COMPORTEMENT TEMPOREL DU PHOTOCOURANT INDUIT

L'étude des états transitoires du photocourant induit en réponse à différents types d'excitation lumineuse peut nous fournir des renseigne-

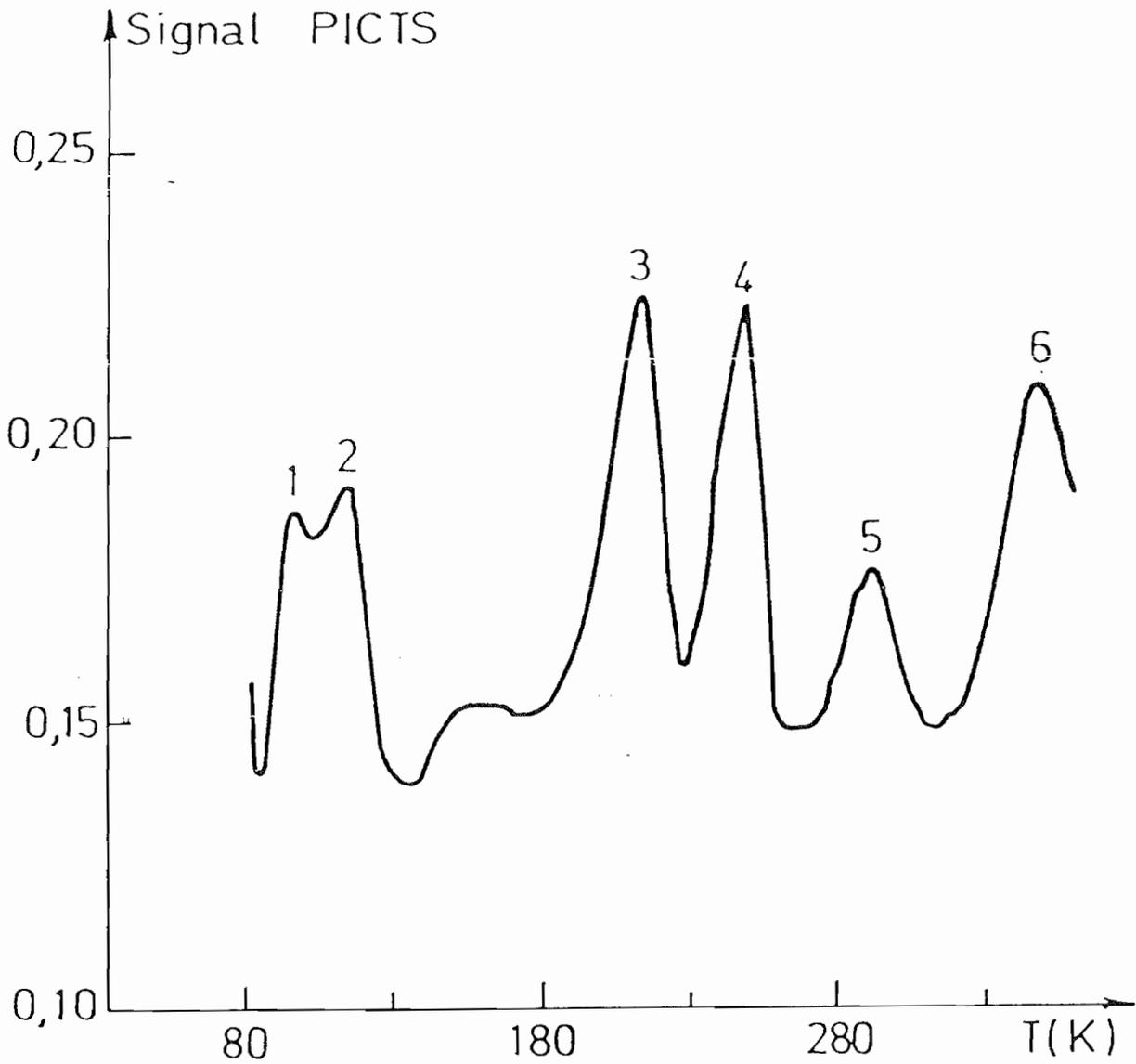


Figure 5 : Signal PICTS caractéristique obtenu pour un échantillon de BGO d'après Bassat [36].

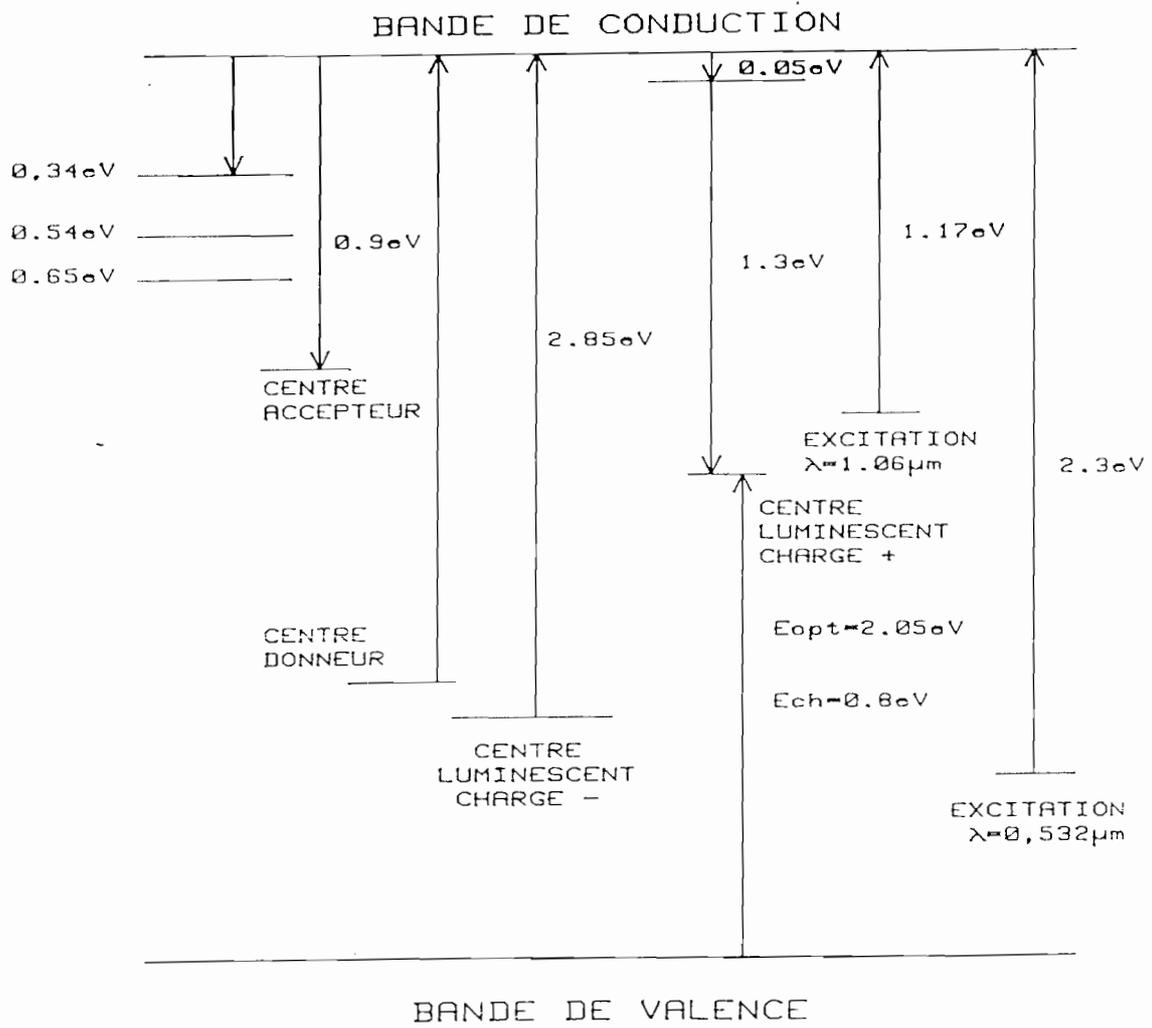


Figure 6 : Structure schématisée de la bande interdite du BSO.

ments intéressants sur la vie d'un porteur photoexcité.

Supposons, dans un premier temps, que le comportement des cristaux éclairés placés dans un champ électrique suit la loi d'Ohm (nous vérifierons plus tard que cette hypothèse est légitime dans nos conditions expérimentales). La densité de courant induite sous éclairage uniforme s'écrit :

$$\vec{j} = \sigma \vec{E}$$

où σ est la conductivité du matériau et \vec{E} le champ externe appliqué. La conductivité tient compte de la conductivité dans le noir notée σ_0 et de la conductivité sous éclairage $\sigma(I)$. En fait, nous pourrions en général, négliger σ_0 devant $\sigma(I)$ et écrire :

$$\vec{j} = \sigma(I) \vec{E}$$

avec :

$$\sigma(I) = \mu n(I) e$$

où μ est la mobilité d'un porteur de charge e la valeur absolue de sa charge et $n(I)$ la densité de porteurs induite par l'éclairage I . Remarquons que nous négligeons d'entrée la contribution des trous (porteurs minoritaires) au photocourant.

Si nous supposons que le champ électrique \vec{E} est établi depuis longtemps et ne varie pas pendant l'expérience, l'évolution temporelle de $\vec{j}(t)$ est donnée par la fonction $n(t)$. Le problème est donc maintenant de calculer $n(t)$ en fonction de la structure de la bande interdite. Cette structure étant complexe, les transitions électroniques possibles sont nombreuses et on ne peut pas tenir compte de toutes ces possibilités pour mener le calcul à son terme. Nous allons donc commencer par décrire les résultats prévus par un modèle très simple comportant un niveau de centre donneurs et un niveau de centres accepteurs et ce dans deux cas correspondant à nos configurations expérimentales :

- excitation quasi continue
- excitation pulsée nanoseconde

2-1 - Prévisions du modèle à deux niveaux

Les équations de base de ce modèle sont les mêmes que celles du modèle de Kukhtarev qui ont été données au chapitre I. Rappelons rapidement le mécanisme mis en jeu ; schématisé figure n° 7 :

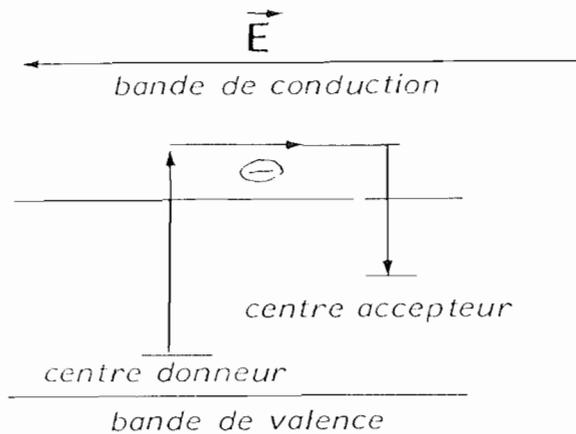


Figure 7 : Mécanisme du transport de charge.

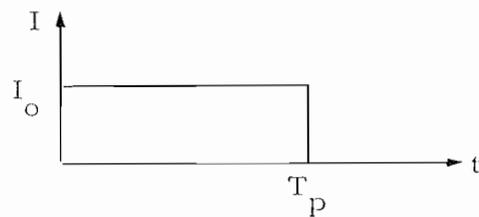
Nos longueurs d'onde se situant dans le spectre visible nous nous trouvons dans le cas de la conduction extrinsèque. Un photon est absorbé par un centre donneur (dont la concentration est N_D) qui libère un électron dans la bande de conduction. Le centre donneur ionisé devient alors un centre accepteur (dont la concentration est N_D^i) où l'électron photoexcité peut se recombiner après s'être déplacé sous l'action du champ \vec{E} . Notons que dans le noir, il existe déjà des centres donneurs ionisés (charge +) en concentration $N_D^i(I = 0)$. La conservation de la charge impose l'existence de centres chargés - en concentration égale à N_A . Ces centres sont supposés ne pas intervenir dans le mécanisme. On notera par la suite $N_A = N_D^i(I = 0)$.

L'évolution de la population de porteurs photoexcités est alors décrite par l'équation suivante :

$$\frac{dn}{dt} = SI (N_D - N_A - n) - \gamma_R (N_A + n) n$$

.../...

En choisissant une fonction $I(t)$ de la forme :



$$I = I_0 \text{ pour } t < T_p$$

$$I = 0 \text{ pour } t > T_p$$

la solution générale de l'équation s'écrit :

pour $0 \leq t \leq T_p$

$$n(t) = N_A \frac{n_+ n_- (1 - \exp(- (n_+ n_-) t / \tau_R))}{n_- - n_+ \exp(- (n_+ - n_-) t / \tau_R)}$$

avec :

$$n_{\pm} = \frac{1}{2} \left[- (1 + f) \pm \left((1 + f)^2 + 4 f(r - 1) \right)^{1/2} \right]$$

et :

$$r = \frac{N_D}{N_A} \quad f = \frac{SI}{\gamma_R N_A} \quad \tau_R = \frac{1}{\gamma_R N_A}$$

pour $t > T_p$

$$n(t) = \frac{n(T_p) \exp - (t - T_p) / \tau_R}{1 + \frac{n(T_p)}{N_A} \left(1 - \exp - \frac{t - T_p}{\tau_R} \right)}$$

Précisons dès maintenant les valeurs numériques employées à ce jour pour le BSO.

La section efficace de photoionisation S vaut $1,6 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$

$$N_D \cong 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

$$N_A \cong 10^{16} \text{ cm}^{-3}$$

$$\gamma_R \cong 2 \cdot 10^{-11} \text{ S}^{-1}$$

$$\tau_R \cong 5 \text{ } \mu\text{s}$$

a) Cas de l'excitation quasi-continue

C'est le cas classique où on éclaire le cristal par un laser argon continu de puissance égale à quelques dizaines de mW, à la longueur d'onde 514 nm typiquement I_0 vaut alors :

$$I_0 = 2,5 \cdot 10^{16} \text{ photons/cm}^2 \text{ s}$$

d'où $S I \cong 10^{-3}$ et $f \cong 5 \cdot 10^{-9} \text{ photons/cm}^2 \ll 1$, d'autre part $r \cong \frac{10^{19}}{10^{16}} \gg 1$ et $f r \ll 1$.

On conclut de cette série d'approximation et après développement limité que :

$$n_+ = f r$$

$$n_- = - 1$$

d'où il vient :

$$\text{pour } t < T_p \quad n(t) = \frac{S I N_D}{\gamma_R N_A} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_R}} \right)$$

$$\text{et } n(T_p) = \frac{S I N_D}{\gamma_R N_A} = n(\infty)$$

en général $n(T_p) \cong 10^{10} \text{ cm}^{-3} \ll N_A$

$$\text{pour } t > T_p \quad n(t) = \frac{S \cdot I N_D}{\gamma_R N_A} e^{-(t - T_p)/\tau_R}$$

Nous constatons que le modèle à deux niveaux prévoit une décroissance exponentielle du photocourant avec la constante de temps τ_R qui représente le temps de vie moyen d'un porteur photoexcité. La valeur à l'équilibre de $n(t)$ est donnée par :

$$n(T_p) = S I N_D \tau_R$$

la valeur à l'équilibre de la densité de photocourant est donnée par :

$$\vec{j} = S I N_D e \mu \tau_R \vec{E}$$

Notons que pour des valeurs de I comprises entre 0 et 100 mW/cm^2 nous avons vérifié expérimentalement que $|j|$ varie linéairement avec l'éclairement incident.

b) Cas de l'excitation pulsée

L'excitation pulsée est réalisée en éclairant l'échantillon avec des impulsions lumineuses de durée très brève (typiquement quelques nanosecondes dans notre cas). Rappelons que pour le BSO (BGO) la valeur généralement admise de τ_R est de quelques microsecondes. On peut donc faire l'approximation suivante :

$$\text{pour } t < T_p \quad : \quad t \ll \tau_R$$

il vient donc :

$$n(t) = N_A \frac{n_+ n_- (n_+ - n_-) t / \tau_R}{n_- - n_+ (1 - (n_+ - n_-) \frac{t}{\tau_R})}$$

on a $1 \gg (n_+ - n_-) \frac{t}{\tau_R}$, et donc $n(t) = N_A \text{ fr } \frac{t}{\tau_R}$ d'où :

$$n(t) = N_D S I t$$

pour $t > T_p$

$$n(t) = \frac{n(T_p) e^{-\frac{t}{\tau_R}}}{1 + \frac{N_D S I T_p}{N_A} (1 - e^{-\frac{t}{\tau_R}})}$$

Notons dès à présent que le maximum du photocourant est donné par :

$$\vec{j}_{\max} = \mu N_D S I T_p e \vec{E}$$

Pour $t > T_p$ et pour des intensités incidentes suffisamment faibles (telles que $n(T_p) \ll N_A$) $n(t)$ décroît exponentiellement avec la constante de temps τ_R . Cette condition est vérifiée si $S I N_D T_p \ll N_A$.

$I T_p$ représentant la densité d'énergie ξ_p absorbée par l'échantillon, cette condition impose :

$$\xi_p \ll \frac{N_A}{N_D S} = 10^{16} \text{ photons/cm}^2 \approx 4 \text{ mJ/cm}^2 \quad \text{pour } \lambda = 532 \text{ nm.}$$

Notons enfin que tant qu'on ne vide pas les centres donneurs (ce qui sera toujours vérifié car leur densité est relativement élevée 10^{19} cm^{-3}) le maximum de la densité de photocourant est proportionnel à la densité d'énergie lumineuse incidente.

Les allures théoriques de $n(t)$ dans ce cas sont montrées figure n° 8 pour une concentration de centres accepteurs N_A donnée et pour trois énergies d'excitation croissantes. Sur chacune de ces courbes nous avons reporté l'évolution temporelle de $n(t)$ pour une faible illumination : l'évolution de $n(t)$ est alors une simple décroissance exponentielle.

2-2 - Etude expérimentale du photocourant

a) Description du montage (Figure 9)

Après avoir poli optiquement l'échantillon, on peint à la laque d'argent des électrodes sur deux faces opposées. On pose ensuite le cristal dans une monture possédant deux électrodes de cuivre qui viennent en contact avec les faces argentées de l'échantillon. On porte une des électrodes au potentiel V et l'autre est reliée à une résistance R_c elle-même mise à la masse. L'échantillon est éclairé dans le cas de l'excitation quasi-continue par un faisceau laser issu d'un laser argon émettant à la longueur d'onde 514 nm. Ce faisceau est modulé en tout ou rien, son temps de montée est bien plus court que le temps d'apparition du photocourant. Dans le cas de l'excitation pulsée, l'impulsion est émise par un laser YAG doublé en fréquence. La longueur d'onde du rayonnement obtenu est de 532 nm, la durée de l'impulsion vaut 3 ns. Un profil temporel de l'impulsion détecté par une cellule rapide est montré figure n° 10. Notons d'ores et déjà que la cadence de tir du laser YAG peut être de un, cinq ou dix Hertz. On peut aussi choisir un mode de déclenchement manuel au coup par coup. Le signal détecté est la tension générée lors de la traversée par le photocourant de la résistance de charge placée en série avec le cristal. Cette résistance est de 1 k Ω dans le cas de l'excitation quasicontinue car les courants générés sont faibles et peu rapides, et de 50 Ω dans le cas pulsé car les courants induits sont plus élevés et on doit préserver une bonne bande passante du système de détection en évitant les problèmes de réflexions parasites sur les lignes de transmission. Le signal obtenu est

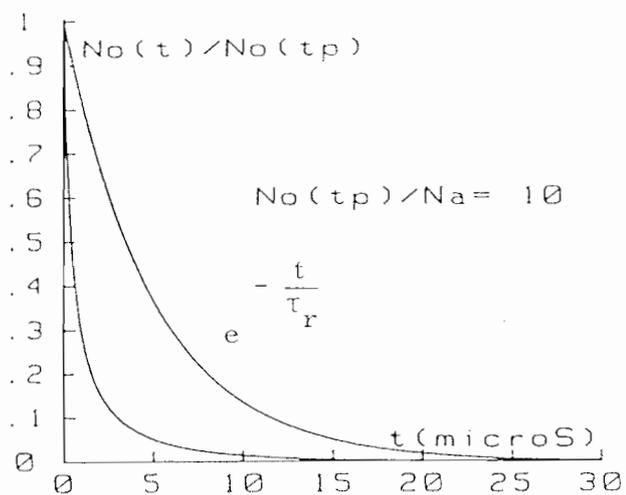
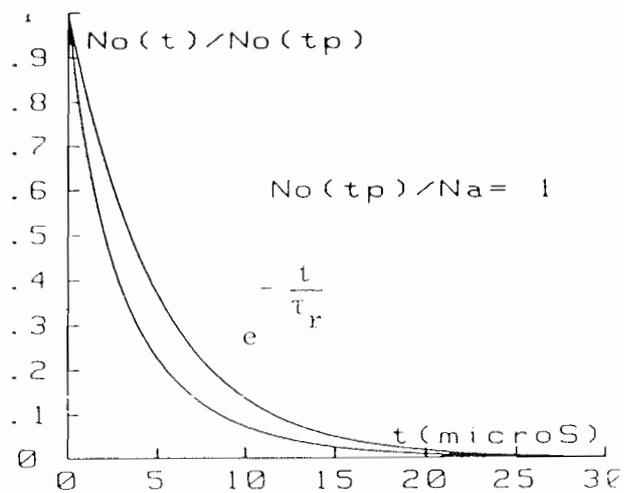
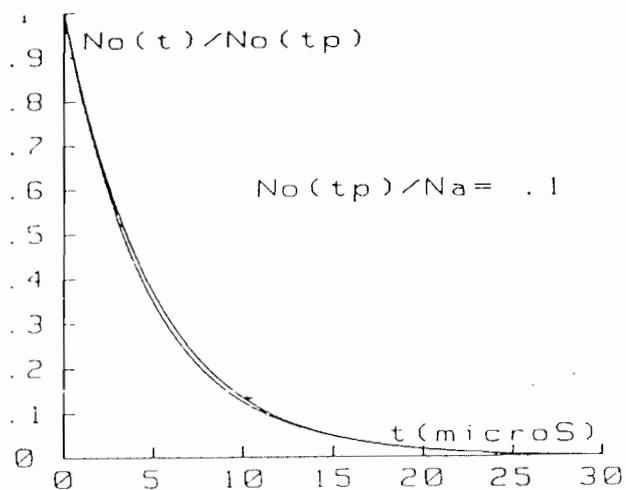


Figure 8 : Evolution temporelle du photocourant induit en régime pulsé :
Prévisions du modèle à deux niveaux en prenant $\tau_r = 5 \mu s$.

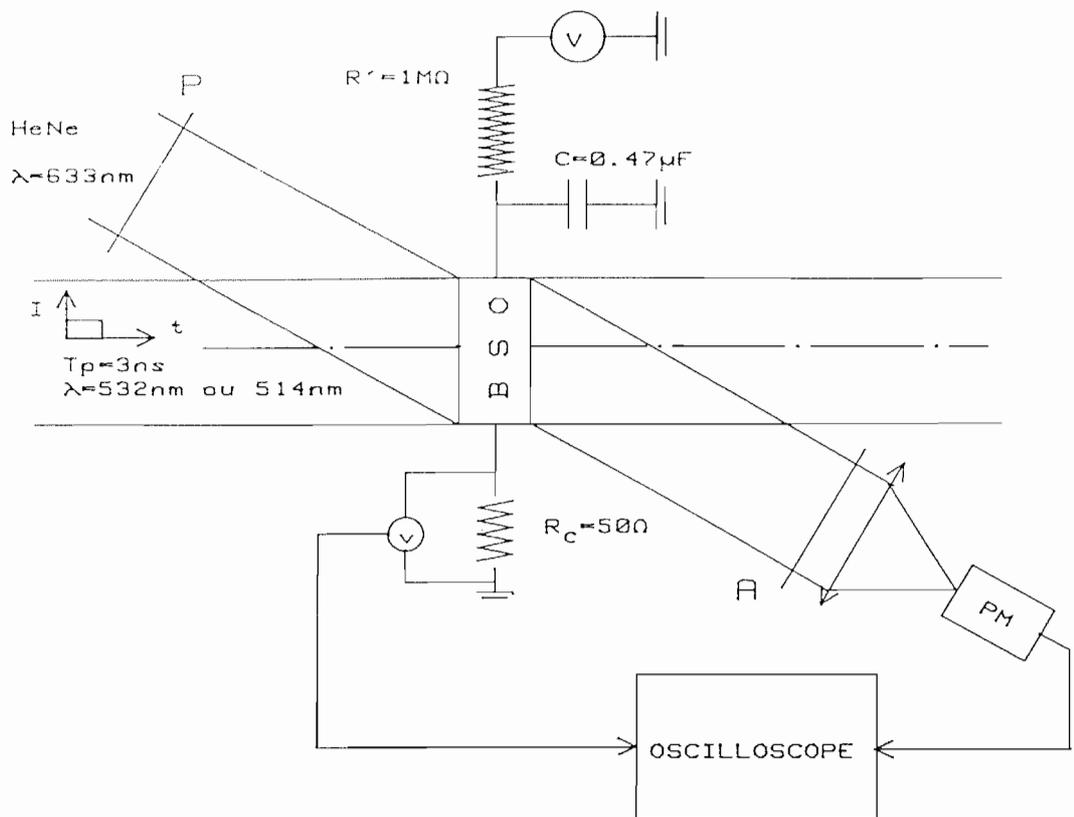
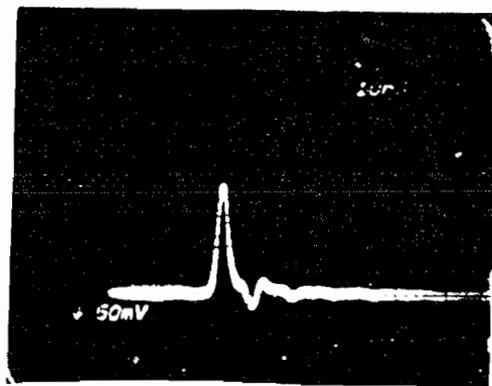


Figure 9 : Montage expérimental utilisé pour l'étude du photocourant.



*Figure 10 : Profil temporel de l'impulsion lumineuse utilisée :
échelle horizontale 10 ns par division.*

enregistré sur un oscilloscope Tektronix de type 7834 à mémoire.

Un des points importants de l'expérience tient dans le fait que le champ \vec{E} appliqué à l'échantillon doit être uniforme et rester constant pendant la durée du photocourant (la variation de tension mesurée aux bornes de la résistance de charge est au maximum 1 % de la tension appliquée au cristal). L'uniformité est obtenue en éclairant tout l'échantillon avec un faisceau lumineux largement étendu. Nous avons vérifié que \vec{E} restait constant dans le cristal en testant la transmission T de l'effet électro-optique du cristal placé entre polariseur P et analyseur A croisés, à l'aide d'un faisceau uniforme lui aussi largement étendu issu d'un laser Hélium Néon de longueur d'onde $\lambda_R = 633 \text{ nm}$. T étant proportionnel au carré du champ externe appliqué, si T est constant, c'est que E doit l'être aussi. Notons enfin que le BSO absorbe peu dans le rouge et que le courant généré par le laser He-Ne peut être négligé devant celui généré par les lasers Argon ou YAG.

b) Premiers résultats expérimentaux

Les premiers résultats obtenus concernent l'étude du comportement temporel du photocourant en régime d'excitation quasicontinu. Le résultat est montré Figure n° 11 pour l'échantillon Crystal Technology. Comme le prévoit le modèle théorique développé, on observe une croissance et décroissance du photocourant exponentielles. Dans ce cas la constante de temps vaut : $\tau = 110 \mu\text{s}$. On peut noter que l'ordre de grandeur trouvé pour τ correspond habituellement à celui connu pour le temps de recombinaison τ_R du BSO c'est à dire qu'il se situe dans l'échelle de la microseconde.

On peut alors prédire d'après le modèle à deux niveaux, que la réponse à l'excitation nanoseconde sera une montée "instantanée" du photocourant et une décroissance vers zéro avec la constante de temps $\tau = 110 \mu\text{s}$. Or, les résultats observés pour l'échantillon Crystal Technology sont très différents. La figure n° 12 montre l'allure temporelle du

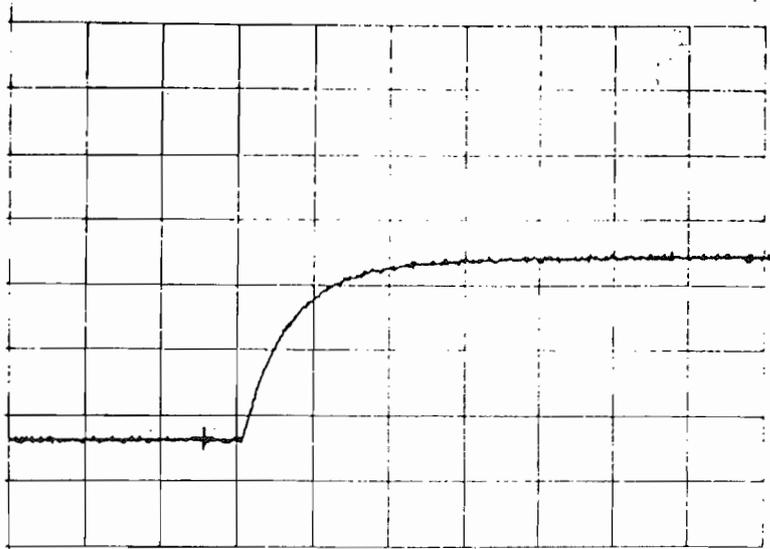


Figure 11 : -Allure temporelle du photocourant observé en régime d'excitation quasi-continu.

Echelle des temps 500 μ s.

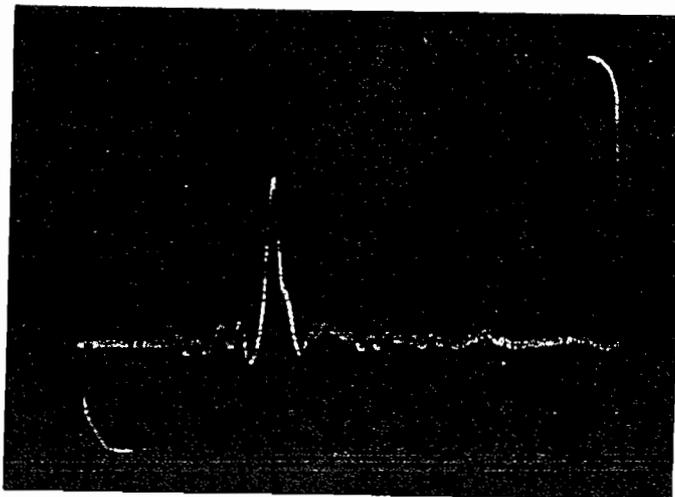


Figure 12 : Allure temporelle du photocourant observé en régime d'excitation pulsé.

Echelle des temps : \leftrightarrow 10 ns

photocourant obtenu. On observe une impulsion de photocourant qui reproduit le profil de l'impulsion lumineuse (son profil obtenu avec une cellule de détection rapide est montré Figure n° 10). Ceci indique la présence d'une constante de temps de recombinaison τ_1 plus courte que la durée $T_p = 3$ ns de l'impulsion excitatrice, donc très différente de celle observée en régime d'excitation quasi continu, et de celle prévue par le modèle.

Cependant, si l'on observe plus attentivement ce signal, c'est à dire sur une échelle de temps plus grande et avec une sensibilité de l'oscilloscope plus élevée, on note la présence comme le montre la figure n° 13 d'une seconde décroissance plus lente et d'amplitude plus faible. La constante de temps mesurée pour cette zone est $T_2 = 140$ μ s, valeur très voisine de celle mesurée en continu. Comme nous avons vérifié que le champ électrique était constant dans le cristal, nous pouvons attribuer la présence de deux zones dans l'évolution du photocourant (l'une rapide, l'autre lente) à l'existence de deux régimes de conductivité différents : une zone de fort photocourant caractérisée par une constante de temps T_1 , une zone de plus faible conductivité dont la constante de temps de décroissance T_2 est plus importante.

c) Interprétation

Ces dernières observations montrent que le modèle à deux niveaux ne permet pas de prévoir les résultats observés. Nous pensons qu'il est nécessaire de tenir compte à la fois du piégeage et de la recombinaison des porteurs. Nous définissons par piégeage la capture momentanée d'un électron de conduction par un accepteur peu profond (proche de la bande de conduction). L'électron peut s'en libérer soit par effet thermique soit par action de la lumière et participer de nouveau à la conduction jusqu'à sa recombinaison dans un centre accepteur profond d'où il ne peut plus s'échapper. La constante de temps courte T_1 (ns), représenterait le temps de vie moyen dans la bande de conduction, la constante de temps longue T_2 (μ s) représenterait la durée de vie de l'électron dans les pièges peu profonds.

Ce mécanisme schématisé Figure n° 14 a priori rend compte de nos premières observations expérimentales :

- en régime d'excitation nanoseconde on observe deux zones de conductivité ;

- en régime d'excitation quasicontinu on n'observe le photocourant que lorsque des pièges peu profonds ont atteints un état stationnaire au bout de quelques microsecondes. La conductivité et donc la mobilité des électrons sont alors grandement limitées par le piégeage.

d) Confirmation expérimentale

Nous avons été confortés dans cette hypothèse après avoir réalisé une expérience assez simple dont le principe est le suivant : on éclaire l'échantillon par l'impulsion laser délivrée par le laser YAG non doublé, donc à la longueur d'onde $\lambda_1 = 1,06 \mu\text{m}$. Le cristal n'absorbant pratiquement pas à cette fréquence, on n'observe pas de photocourant (ou du moins il est très faible). Par contre, si on éclaire l'échantillon d'abord par une impulsion de longueur d'onde $\lambda_2 = 532 \text{ nm}$ puis ensuite par une impulsion à $\lambda_1 = 1,06 \mu\text{m}$, on observe alors deux impulsions de courant décalées dans le temps de la même durée que les impulsions lumineuses excitatrices. Les courbes expérimentales sont données figure n° 15 a et b pour deux décalages temporels des impulsions 1 et 2.

On déduit de ces observations que les charges excitées passent transitoirement dans des pièges placés à moins de 1,2 eV sous la bande de conduction. Ces centres sont instables car, si on envoie une seconde impulsion infrarouge longtemps après la première ($\approx 100 \text{ ms}$) on n'observe plus de photocourant.

e) Etude d'autres échantillons

Nous avons testé par cette méthode tous les échantillons en notre possession : les échantillons achetés à l'étranger pour lesquels nous n'avons aucune information, les échantillons fabriqués à Bordeaux volontairement dopés ou non. Les résultats obtenus sont montrés planches n° 1 à 7, dans le cas de l'excitation nanoseconde et pour deux échelles de temps différentes (nano et microseconde). L'étude de ces résultats appelle plusieurs

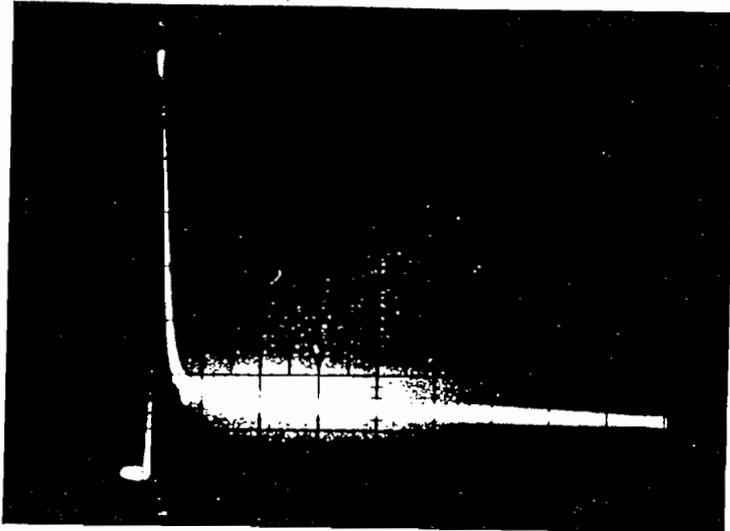


Figure 13 : Allure temporelle du photocourant en régime d'excitation nanoseconde. Echelle des temps : 500 ns

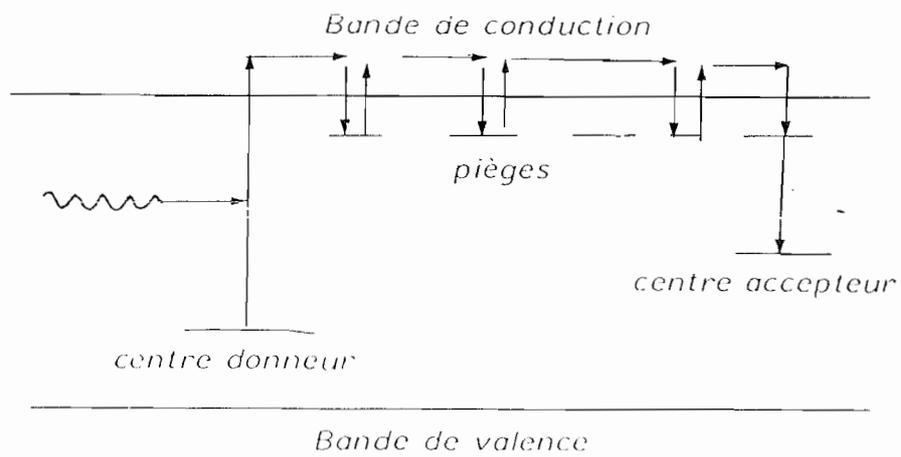
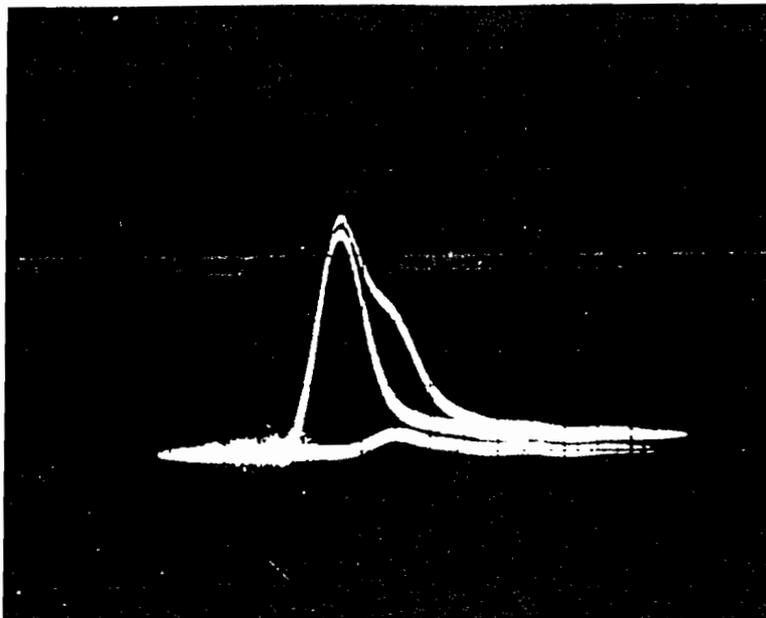
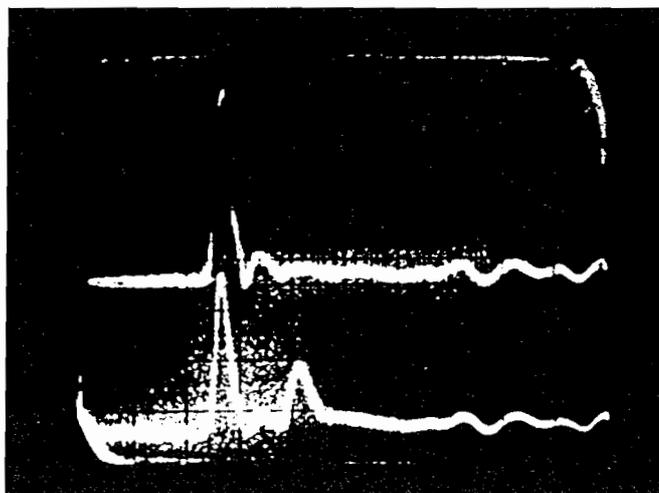


Figure 14 : Mécanisme de photoconduction proposé.

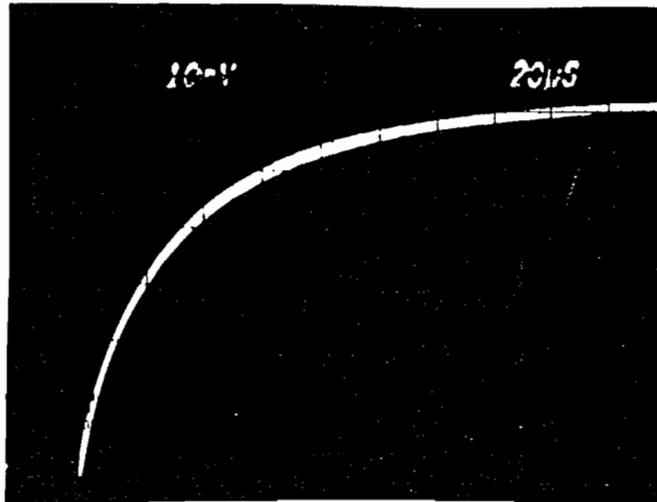


a) courbe supérieure : vert + infrarouge
courbe intermédiaire : vert seul
courbe inférieure : infrarouge seul
Les deux impulsions ne sont pas résolues temporellement.

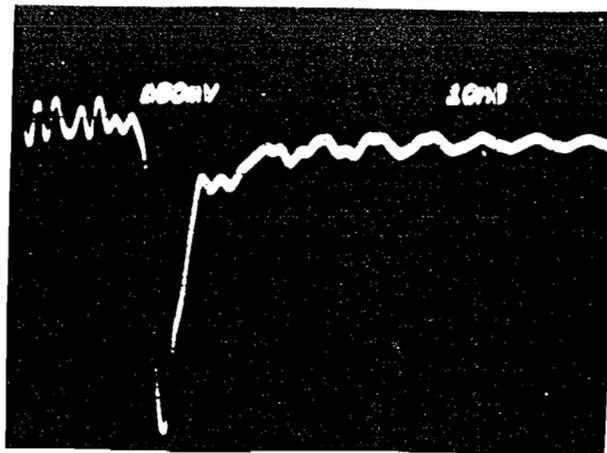


b) courbe supérieure : vert seul
courbe inférieure : vert + infrarouge
écart entre impulsions : $\Delta t = 15 \text{ ns}$

Figure 15 : Photocourant induit à la longueur d'onde $1,06 \mu\text{m}$

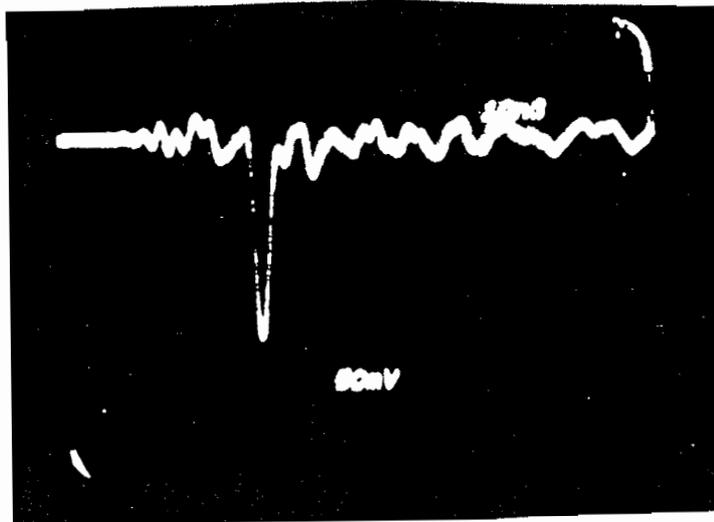


Echelle des temps
↔ 20 μ s

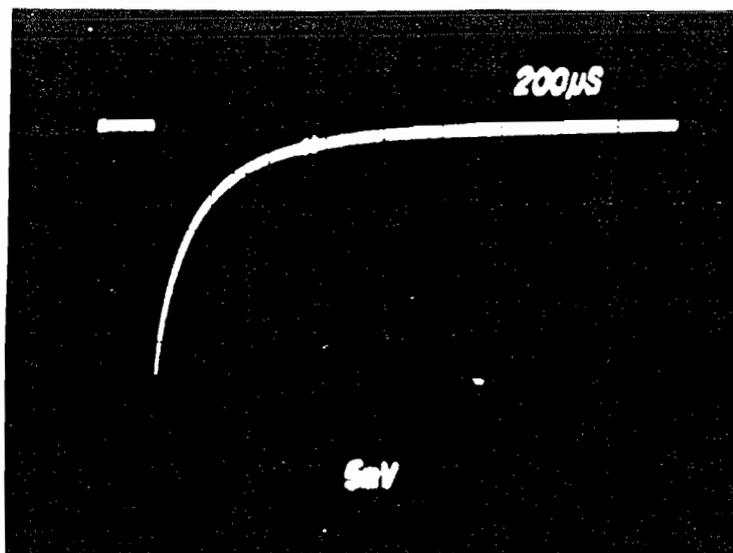


Echelle des temps
↔ 10 ns

Planche 1
Échantillon BGO 7

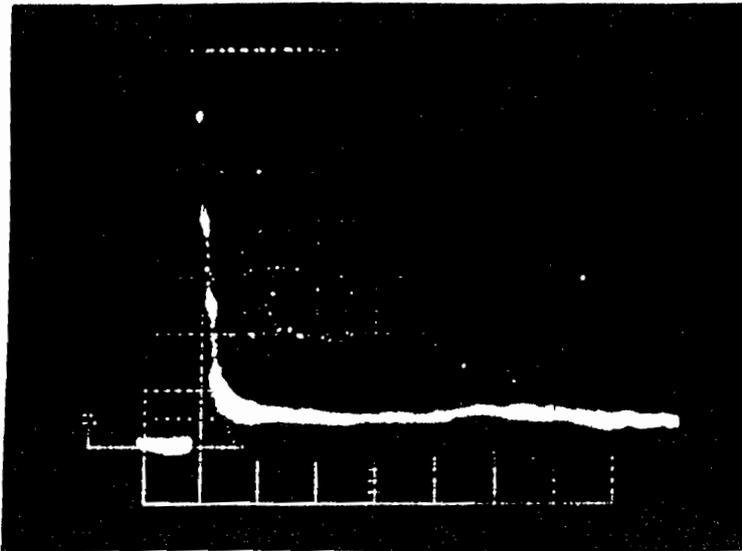


Echelle des temps
↔ 10 ns

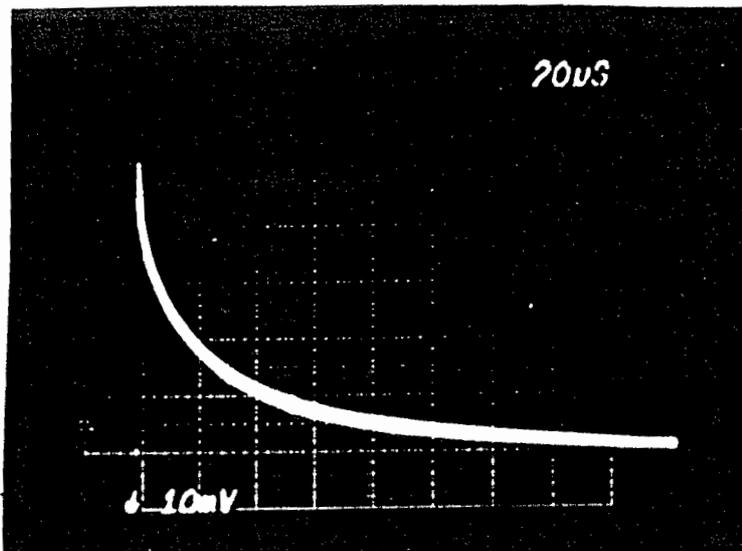


Echelle des temps
↔ 200 µs

Planche 2
Echantillon BGO 14

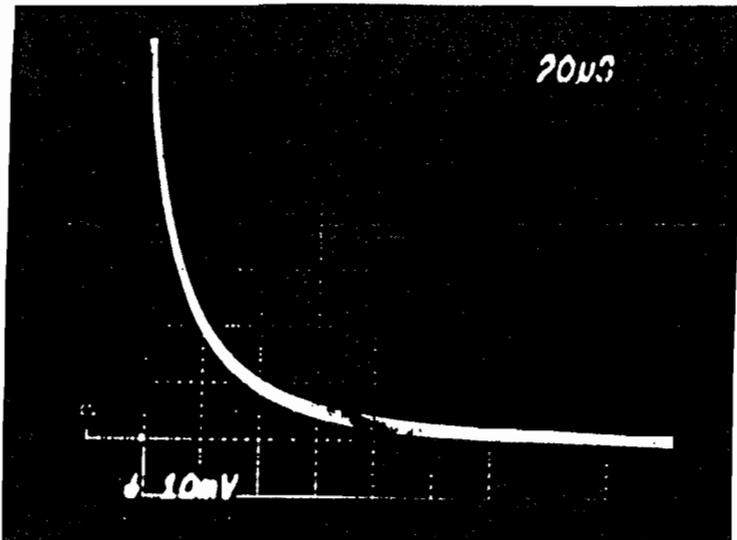


Echelle des temps
↔ 50 ns par carreau



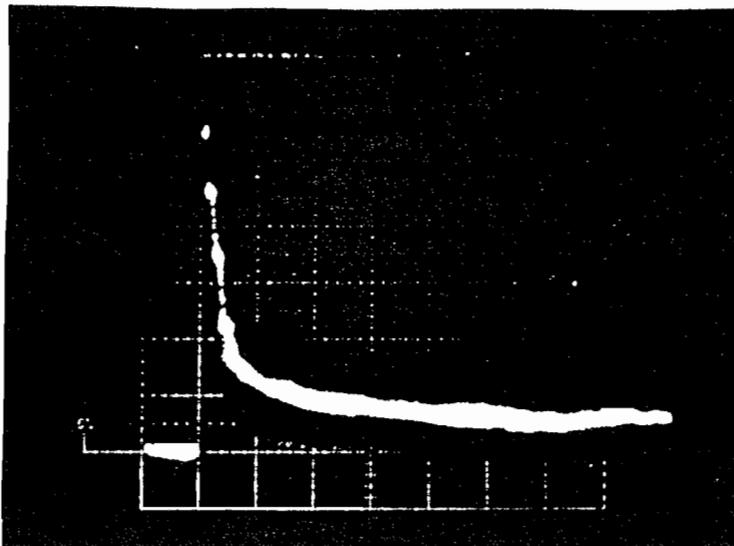
Echelle des temps
↔ 20 µs par carreau

Planche 3
Echantillon BGO 3



Echelle des temps

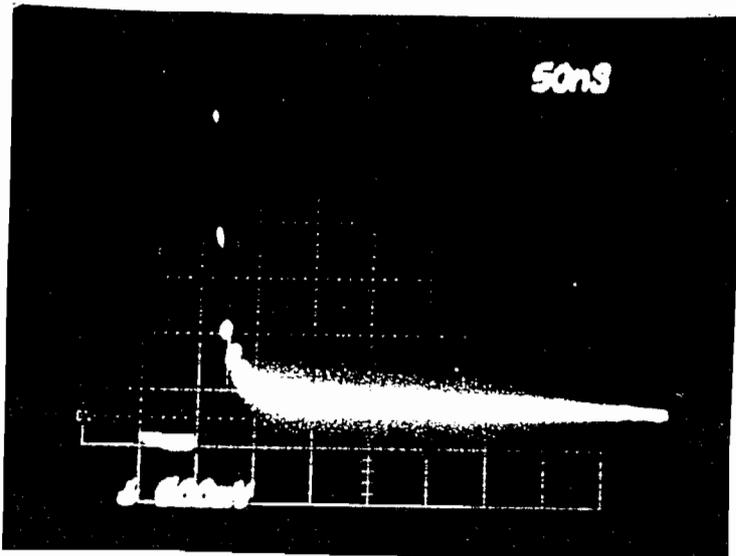
← 20 µs



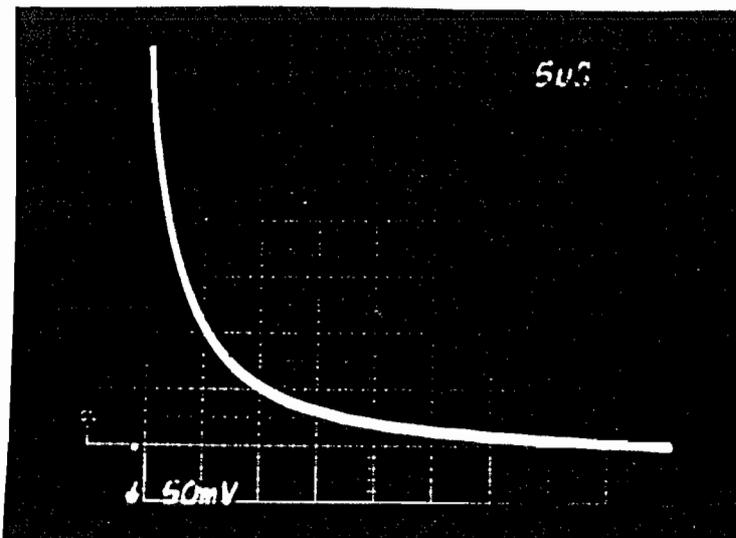
Echelle des temps

← 50 ns

Planche 4
Echantillon BGO 5



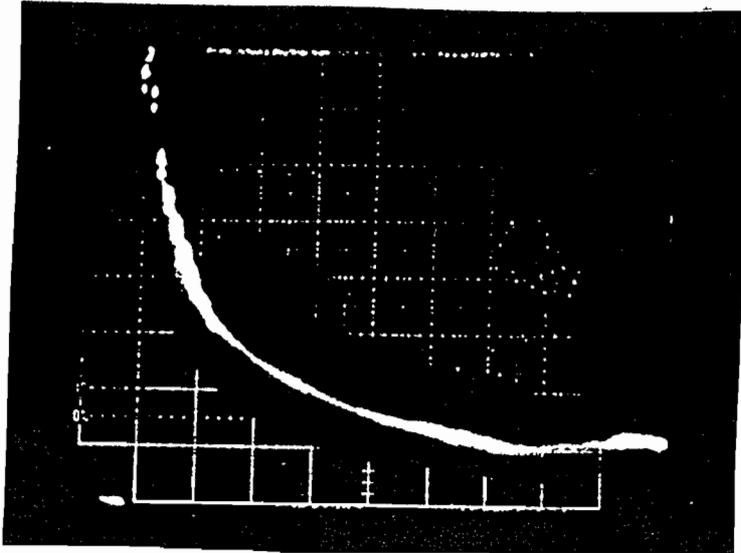
Echelle des temps
← 50 ns



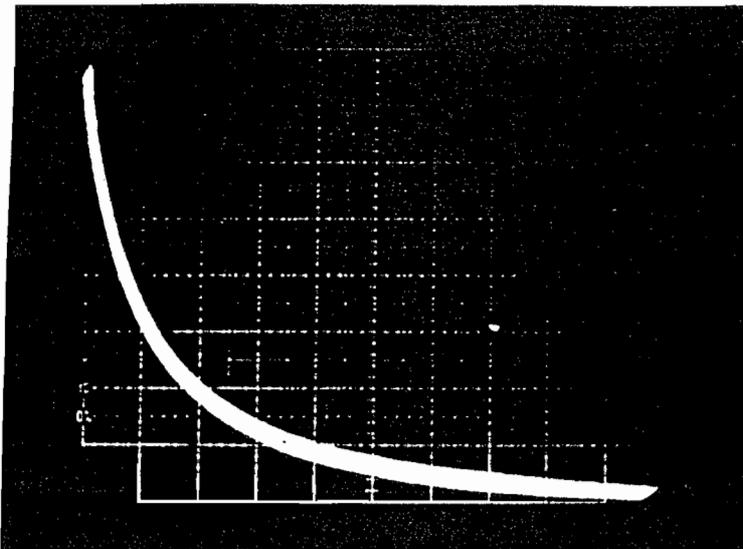
Echelle des temps
← 5 μs

Planche 5

Echantillon BGO 9

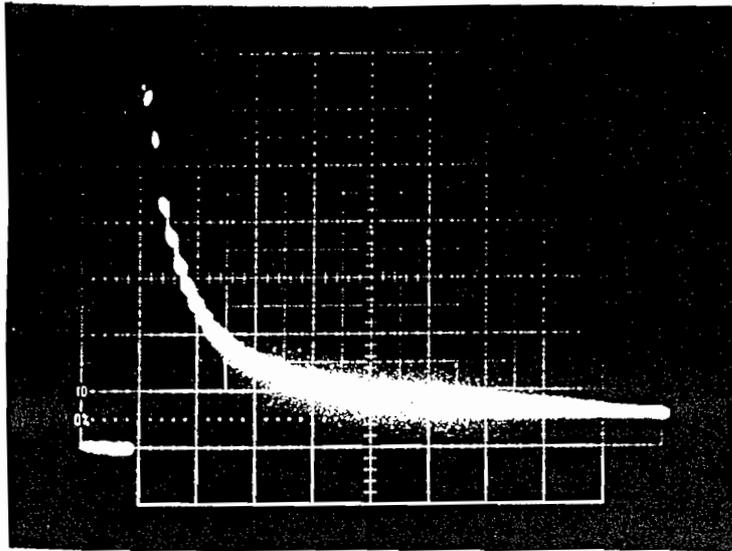


Echelle des temps
└── 50 ns



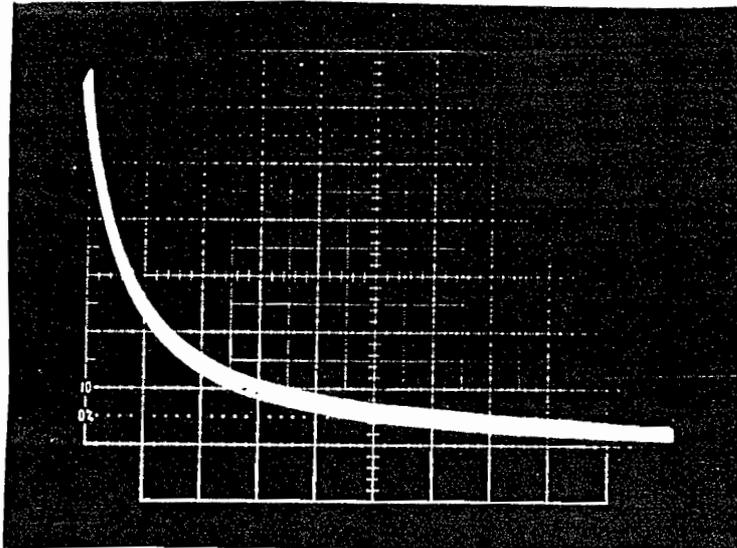
Echelle des temps
└── 2 μ s

Planche 6
Echantillon Sumitomo 1



Echelle des temps

┆┆┆ 50 ns



Echelle des temps

┆┆┆ 5 μs

Planche 7
Echantillon Sumitomo 2

commentaires.

- tout d'abord, on retrouve pour tous les échantillons la présence de deux zones de conductivité différentes (par exemple très nettement visible pour l'échantillon BGO 9) ;

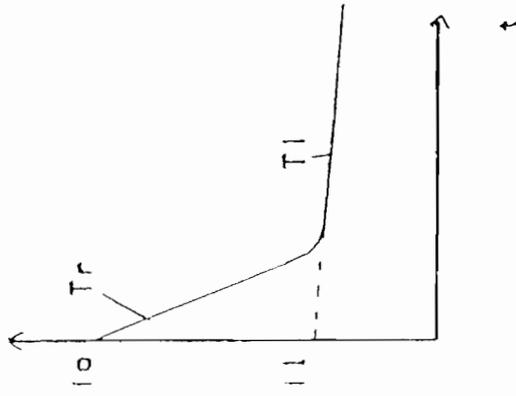
- les constantes de temps mesurées aussi bien la lente que la rapide peuvent être très différentes d'un échantillon à l'autre ;

- les constantes de temps lentes mesurées en pulsé sont du même ordre de grandeur que les constantes de temps mesurées en continu ce qui conforte notre interprétation. Les valeurs sont données tableau I, avec pour chaque échantillon les valeurs des constantes de temps rapide et la valeur du rapport $\frac{I_0}{I_1}$ des intensités des parties rapides et lentes, définies au tableau I.

Attachons nous maintenant au cas particulier du BGO 14 (planche 2) il s'agit d'un échantillon dopé au fer, il montre un comportement similaire à celui de Crystal Technology. On trouve une constante de décroissance rapide inférieure à la nanoseconde et une constante de recombinaison voisine de 160 μ s. En fait, cet échantillon est dopé au fer. On sait que le fer joue dans ce cas le rôle d'accepteur sous la forme de l'ion Fe^{3+} . De plus, son niveau énergétique dans la bande interdite est située à moins d'un électron volt de la bande de conduction. Cette observation nous conforte encore dans notre hypothèse : en effet, le fait d'augmenter la concentration en impuretés jouant le rôle de piège ne peut que diminuer le temps de vie effectif d'un électron photoexcité dans la bande de conduction.

Enfin, nous avons testé pour trois échantillons caractéristiques de leur catégorie (Sumitomo 2, Crystal Technology et BGO 9 dont le comportement est rappelé figure n° 16), les variations de l'amplitude maximale du photocourant en fonction de l'énergie incidente et du champ appliqué. Le résultat est montré figures 17 a et b. Dans les deux cas, la variation est linéaire, ce qui valide a posteriori l'approximation du comportement ohmique du cristal ($\vec{j} = \sigma \vec{E}$). Remarquons qu'en toute logique le cristal le plus photoconducteur est celui dont le temps de vie des porteurs de charge dans la bande de conduction avant piégeage est le plus grand (c'est le Sumitomo 2)

Toutes ces observations montrent le rôle important des pièges peu profonds et donc l'insuffisance du modèle à deux niveaux développé précédemment.



	T_r (ns)	T_1 (μ s)	T_{continu} (μ s)	i_0/i_1
cryst.tech	3	140	110	40
BGO 7	10	40	—	8
BGO 14	3	160	140	20
BGO 8	20	50	56	12
BGO 5	30	31	32	8
BGO 9	20	10	22	6
sumitomo 1	50	7	—	8
sumitomo 2	55	12	12	6

Tableau 1

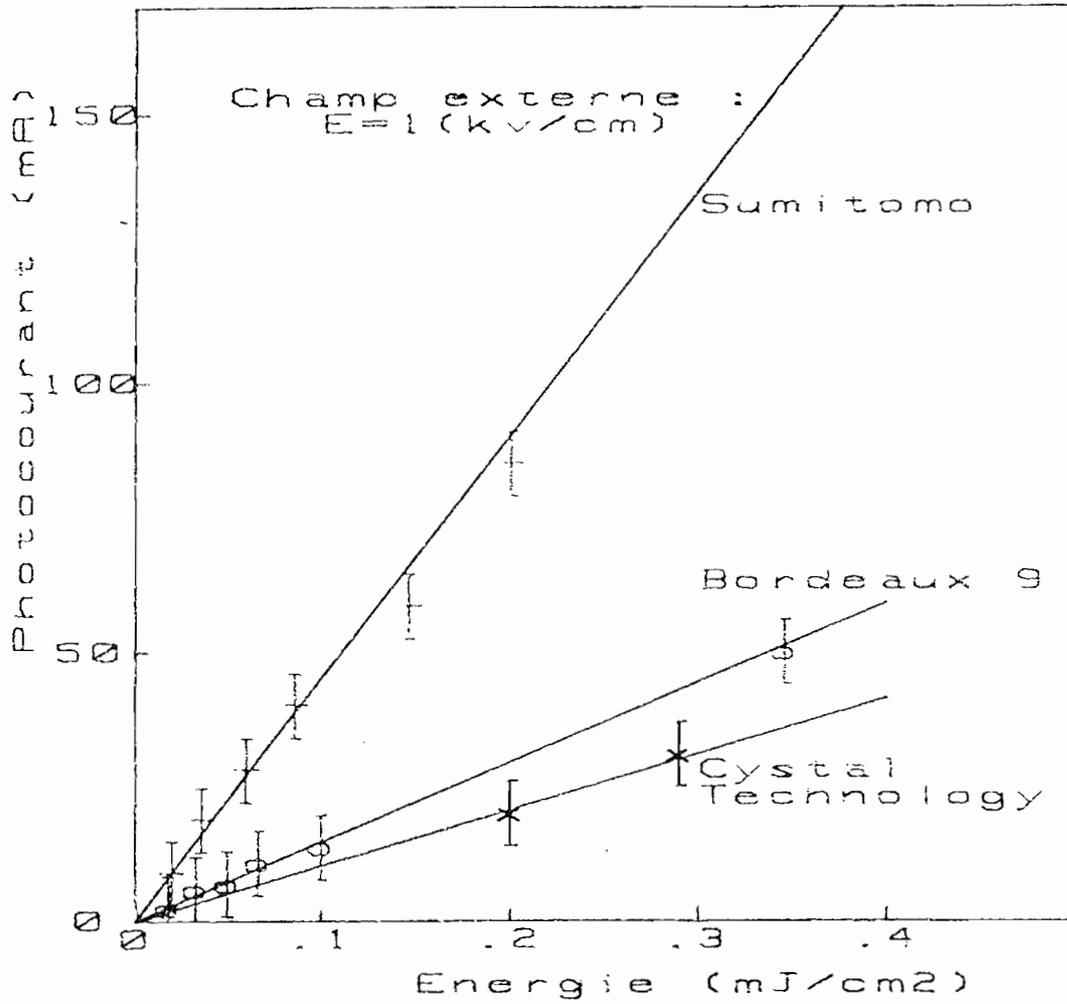


Figure 17-a : Variation de l'amplitude du photocourant en fonction de l'énergie incidente.

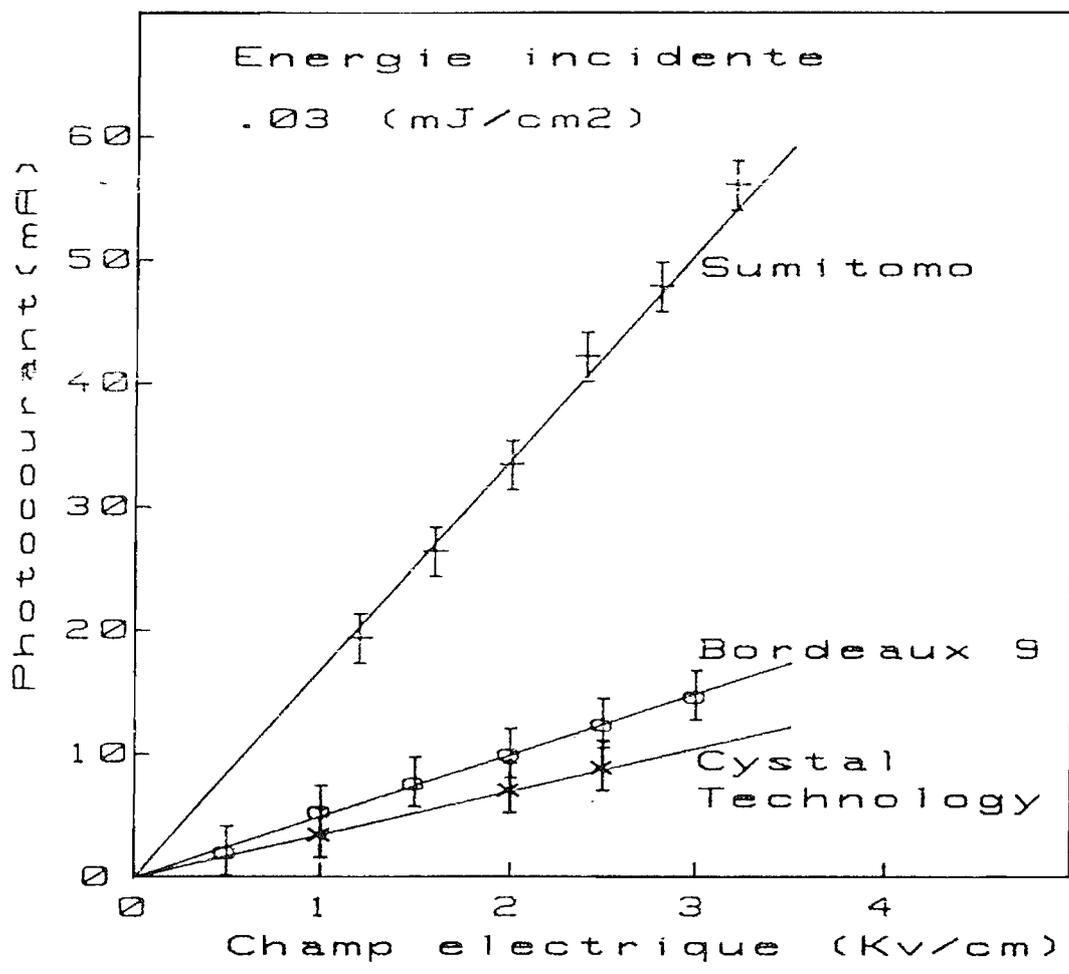


Figure 17-b : Variation du photocourant en fonction du champ externe appliqué.

3 - NOUVELLE APPROCHE THÉORIQUE

3-1 - Modèle à trois niveaux

Après l'étude expérimentale que nous venons de mener, il nous paraît nécessaire de développer un nouveau modèle théorique. Le mécanisme qu'il décrit est le suivant : un électron excité par la lumière passe dans la bande de conduction, là il peut être piégé par des centres en concentration N^+ (N lorsqu'ils ont capté un électron). Une fois dans ce centre, l'électron peut soit être à nouveau excité (thermiquement par exemple) et participer de nouveau à la conduction, soit se recombiner dans les centres accepteurs d'où il ne bouge plus. Le système d'équations régissant l'évolution temporelle des populations ioniques s'écrit :

$$\frac{dN^+}{dt} = \underbrace{-\gamma_n N^+}_{\text{piégeage}} + \underbrace{BN}_{\text{dépiégeage}} + \underbrace{\gamma'' N N_D^i}_{\text{recombinaison}}$$

$$\frac{dN_D^i}{dt} = \underbrace{SI(N_D - N_D^i)}_{\text{génération}} - \underbrace{\gamma'' N N_D^i - \gamma' N_D^i n}_{\text{recombinaison}}$$

L'équation de conservation de la charge permet d'écrire dans le cas de l'éclairement uniforme :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{dN_D^i}{dt} + \frac{dN^+}{dt}$$

d'où l'on tire :

$$(1) \quad \frac{dn}{dt} = \underbrace{SI(N_D - N_D^i)}_{\text{génération}} + \underbrace{BN}_{\text{dépiégeage}} - \underbrace{\gamma_n N^+}_{\text{piégeage}} - \underbrace{\gamma' N_D^i n}_{\text{recombinaison}}$$

.../...

Les énergies employées sont suffisamment faibles pour que l'on puisse considérer que :

$$N_D^i \cong N_D^i (I = 0)$$

$$N^+ = N^+ (I = 0)$$

et l'on posera :

$$\gamma N^+ = \gamma N^+ (I = 0) = \frac{1}{\tau_1}$$

$$\gamma'' N_D^i = \gamma'' N_D^i (I = 0) = \frac{1}{\tau_2}$$

et

$$\gamma' N_D^i = \gamma' N_D^i (I = 0) = \frac{1}{\tau_3}$$

Notre modèle suppose un piégeage rapide (ns), et une recombinaison beaucoup plus lente (μ s) ce qui permet de faire l'approximation :

$$\frac{1}{\tau_3} \ll \frac{1}{\tau_1} \quad \text{et} \quad \frac{1}{\tau_2} \ll \frac{1}{\tau_1}$$

L'équation d'évolution de la densité d'électrons dans la bande de conduction s'écrit alors :

$$\frac{d^2 n}{dt^2} + \frac{dn}{dt} \left(B + \frac{1}{\tau_1} \right) + n \left(\frac{1}{\tau_2 \tau_1} \right) = SI N_D \left(B + \frac{1}{\tau_2} \right)$$

a) Résolution de l'équation sans second membre

Les racines de l'équation caractéristique sont :

$$r_{\pm} = \frac{1}{2} \left[- \left(B + \frac{1}{\tau_1} \right) \pm \sqrt{\left(\frac{1}{\tau_1} + B \right)^2 - \frac{4}{\tau_1 \tau_2}} \right]$$

et la solution générale de l'équation sans second membre s'écrit :

$$n(t) = C_1 e^{r_+ t} + C_2 e^{r_- t}$$

On peut exprimer r_{\pm} plus simplement en développant leur expression au premier ordre, en effet, on a :

$$\frac{1}{\tau_2 \tau_1} \ll \left(\frac{1}{\tau_1} + B \right)^2$$

et il vient :

$$r_+ = - \frac{1}{\tau_2 \tau_1 \left(\frac{1}{\tau_1} + B \right)} = - \frac{1}{T_2}$$

$$r_- = - \left(B + \frac{1}{\tau_1} \right) = - \frac{1}{T_1}$$

d'où :

$$\boxed{\begin{aligned} T_1 &= \frac{\tau_1}{1 + B \tau_1} \\ T_2 &= \tau_2 (1 + B \tau_1) \end{aligned}}$$

T_1 et T_2 sont les deux constantes de temps régissant l'évolution temporelle de $n(t)$ donc du photocourant.

.../...

b) Solution générale de l'équation avec second membre

i) Pour $t \leq T_p$

L'éclairement est constant dans le temps ($I = I_o$) et on a alors :

$$n(t) = C_1 e^{-\frac{t}{T_1}} + C_2 e^{-\frac{t}{T_2}} + S I_o N_D T$$

avec :

$$T = \tau_1 (1 + B \tau_2)$$

Conditions initiales : à $t = 0$; $n = 0$ et $N = 0$

d'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_1 + C_2 = - T S I_o N_D \\ -\frac{C_1}{T_1} - \frac{C_2}{T_2} = S I_o N_D \end{array} \right.$$

et il vient après résolution :

$$C_1 = S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2} \left(1 - \frac{T}{T_2}\right)$$

$$C_2 = - S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2} \left(1 - \frac{T}{T_1}\right)$$

et :

$$n(t) = S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \left[- \left(1 - \frac{T}{T_2}\right) e^{-\frac{t}{T_1}} + \left(1 - \frac{T}{T_1}\right) e^{-\frac{t}{T_2}} + T \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right) \right]$$

(2)

ii) pour $t > T_p$

Dans ce cas $I_o = 0$ et donc $n(t) = C'_1 e^{-\frac{t}{T_1}} + C'_2 e^{-\frac{t}{T_2}}$

Conditions initiales : à $t = T_p$; $n = n(T_p)$ et $N = N(T_p)$

d'où

$$\left\{ \begin{array}{l} C'_1 e^{-\frac{T_p}{T_1}} + C'_2 e^{-\frac{T_p}{T_2}} = n(T_p) \\ -\frac{C'_1}{T_1} e^{-\frac{T_p}{T_1}} - \frac{C'_2}{T_2} e^{-\frac{T_p}{T_2}} = -\frac{n(T_p)}{\tau_1} + B N(T_p) \end{array} \right.$$

nous posons : $n(T_p) = n_o$ et $N(T_p) = N_o$

$$\left\{ \begin{array}{l} C'_1 = e^{\frac{T_p}{T_1}} \left[-\frac{T_2 T_1}{T_2 - T_1} (B N_o + B n_o) + n_o \right] \\ C'_2 = e^{\frac{T_p}{T_2}} \left(B N_o + B n_o \right) \frac{T_2 T_1}{T_2 - T_1} \end{array} \right.$$

Nous pouvons calculer n_o à partir de la relation (2), et N_o en remarquant que pour t inférieur à T_p , l'équation (1) devient :

$$\frac{dn}{dt} = S I_o N_D - \frac{n}{\tau_1} + BN$$

d'où :

$$B N_o = \left. \frac{dn}{dt} \right|_{t = T_p} - S I_o N_D + \frac{n_o}{\tau_1}$$

On trouve après calcul :

$$B N_o + B n_o = S I_o N_D \left(1 - \frac{T_p}{T_1} \right) \left(e^{-\frac{T_p}{T_2}} - 1 \right)$$

.../...

d'où l'on tire pour $t > T_p$

pour $t > T_p$

$$n(t) = n_o e^{-\frac{t-T_p}{T_1}} + \left\{ \frac{T_2 T_1}{T_2 - T_1} S I_o N_D \left(1 - \frac{T_p}{T_1}\right) \left(e^{-\frac{T_p}{T_2}} - 1 \right) \right. \\ \left. \left[e^{-\frac{t-T_p}{T_2}} - e^{-\frac{t-T_p}{T_1}} \right] \right\}$$

Nous allons maintenant tester ces prévisions en analysant les résultats expérimentaux obtenus, tout d'abord en régime d'excitation nanoseconde puis ensuite en régime d'excitation quasi continu, pour deux échantillons au comportement bien caractéristique :

Crystal Technology

Sumitomo n° 2

3-2 - Cas de l'excitation nanoseconde

Dans ce cas, l'allure du photocourant schématisée figure n° est toujours du même type : on observe d'abord la croissance pendant la durée de l'impulsion très brève $T_p = 3 \text{ ns}$ puis une décroissance exponentielle présentant deux constantes de temps bien distinctes. Nous appellerons i_o le courant maximal observé c'est-à-dire $i(T_p)$ et i_1 le courant observé après la première décroissance rapide.

L'analyse de la décroissance fournit les premiers renseignements. Rappelons en effet, que $T_1 = \frac{\tau_1}{1 + B \tau_1}$ et $T_2 = \tau_2 (1 + B \tau_1)$. Notre interprétation suppose que τ_1 est la constante de piégeage et est donc très rapide (ns) et que τ_2 est la constante de recombinaison donc plus lente (μs). Les expressions de T_1 et T_2 montrent que T_1 est inférieure à τ_1 et T_2 est supérieure à τ_2 , on peut donc attribuer la valeur de la constante de

.../...

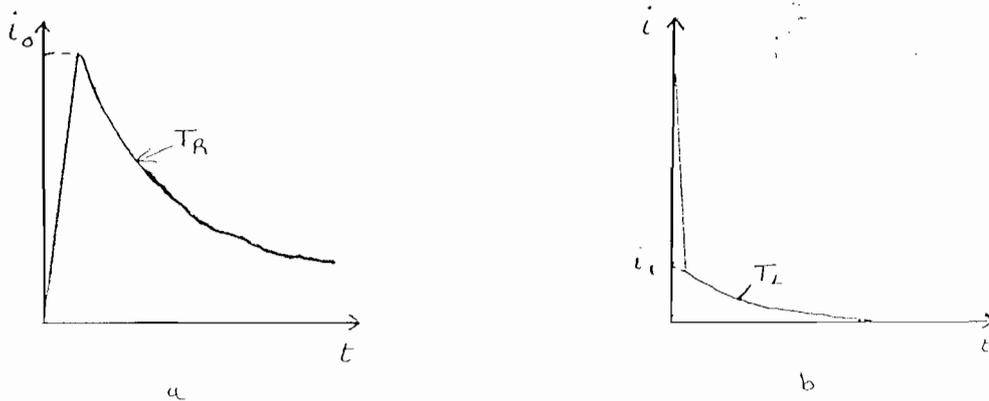


Figure 18 :

Allure du courant observé en nanoseconde représenté à l'échelle de la nanoseconde (a) et de la microseconde (b).

décroissance rapide T_R à T_1 et la décroissance lente T_L à T_2 . On peut alors exprimer i_1 à partir de l'équation () :

$$i_1 = \mu e E s \frac{T_2}{T_2 - T_1} \frac{T_1}{T_1} S I_o N_D \left(1 - \frac{T}{T_1}\right) \left(e^{-\frac{T_P}{T_2}} - 1\right)$$

où E est le champ externe appliqué et s la surface des électrodes. En supposant connue l'efficacité quantique du cristal mesuré par Henry et voisine de 1, on peut alors théoriquement caractériser complètement le processus : nous mesurons quatre grandeurs T_1 , T_2 , i_0 et i_1 , qui permettent de trouver les valeurs numériques des quatre inconnues.

$$\mu ; \tau_1 ; \tau_2 ; B$$

a) Cas de l'échantillon de Crystal Technology

Le photocourant obtenu est montré planche n° 12. On observe une impulsion de photocourant suivant l'impulsion lumineuse indiquant une

valeur de T_1 très courte non mesurable par cette méthode. Par contre, nous mesurons $T_2 = 100 \mu s$. Nous pouvons supposer que T_1 est très petit devant T_P lui-même très inférieur à T_2 , et on obtient alors :

pour $t \leq T_P$

$$n(t) = S I_o N_D T_1 \left[1 - \left(1 - \frac{T}{T_2} \right) e^{-\frac{t}{T_1}} \right]$$

et à $t = T_P$

$$n(T_P) = n_o = S I_o N_D T_1$$

d'où :

$$i_o = S I_o N_D e E_s \mu T_1$$

Le maximum de courant observé est proportionnel à la puissance crête I_o de l'impulsion lumineuse observée, et au produit μT_1 . L'impossibilité de la mesure de T_1 rend impossible la discrimination, par cette méthode, des valeurs de μ et T_1 .

On peut cependant calculer i_1 :

$$i_1 = \mu e E_s S I_o N_D T_1 \frac{T_P}{T_2} \left(\frac{T}{T_1} - 1 \right)$$

et nous pouvons exprimer le rapport $\frac{i_1}{i_o}$:

$$\frac{i_1}{i_o} = \frac{T_P}{T_2} \left(\frac{T}{T_1} - 1 \right) \quad \text{où } T = \tau_1 (1 + B \tau_2)$$

.../...

Nous mesurons pour cet échantillon $\frac{i_1}{i_0} = \frac{1}{40}$ qui conduit à :

$$\frac{T}{T_1} = 9 \cdot 10^2$$

Malheureusement, l'impossibilité de mesurer T_1 nous empêche de conclure. Néanmoins, si on suppose que $B \tau_1 \ll 1$ il vient : $T_1 = \tau_1$; $T_2 = \tau_2$ et $\frac{T}{T_1} = 1 + B \tau_2$.

D'où on tire :

$\tau_2 = 110 \mu s$ $B = 8,2 \cdot 10^6 s^{-1}$
--

remarquons que puisque τ_1 est de l'ordre de la nanoseconde $B \tau_1$ est bien inférieur à 1 ce qui justifie l'approximation.

En conclusion, nous pouvons dire que, bien que cette méthode ne soit pas bien adaptée pour cet échantillon elle permet quand même d'atteindre deux grandeurs importantes du processus : B la probabilité d'excitation à partir des niveaux de piège et τ_2 le temps de recombinaison des pièges dans les accepteurs profonds.

b) Cas de l'échantillon Sumitomo

Le comportement de cet échantillon est rappelé figure n° 16-c. Nous allons voir que cette méthode de caractérisation est beaucoup mieux adaptée à cette catégorie d'échantillons.

En effet, les deux constantes T_1 et T_2 sont mesurables. Il suffit pour trouver T_1 de tracer $\log\left(\frac{i - i_1}{i_0 - i_1}\right)$ en fonction du temps et pour T_2 de tracer $\log\left(\frac{i}{i_1}\right)$. Le résultat est montré figure 19 a et b. On obtient deux droites dont les pentes permettent de calculer T_1 et T_2 . On tire ainsi :

$T_1 = \frac{\tau_1}{1 + B \tau_1} = 50 \cdot 10^{-9} s$ $T_2 = \tau_2 (1 + B \tau_1) = 10^{-5} s$
--

On peut donc légitimement faire l'approximation $T_p \ll T_1, T_2$.
 alors pour $t < T_p$ on a :

$$n(t) = S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} - \left(1 - \frac{T}{T_2}\right) \left(1 - \frac{t}{T_1}\right) + \left(1 - \frac{T}{T_1}\right) \left(1 - \frac{t}{T_2}\right) + \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}$$

et

$$n(t) = S I_o N_D t$$

et

$$i(t) = \mu s e E S I_o N_D t$$

on tire :

$$i_o = S N_D I_o T_p \mu s e E$$

Cette relation se révèle être très intéressante. En effet $I_o T_p$ représente l'énergie lumineuse absorbée par l'échantillon. Connaissant l'efficacité quantique à la longueur d'onde 532 nm, le champ appliqué E la mesure de i_o permet d'atteindre la valeur de la mobilité des porteurs μ .

Dans le BSO (BGO) les densités de pièges et d'accepteurs sont de l'ordre de 10^{16} cm^{-3} . Nous nous sommes placés, pour effectuer la mesure de μ , à des énergies absorbées telles que la densité d'électrons excités soit inférieure ou égale à 10^{14} cm^{-3} . Ainsi l'hypothèse faite au début du développement et considérant que :

$$N^+ = N^+(0)$$

$$N_D^i = N_D^i(0)$$

est vérifiée.

Nous avons mesuré :

$$\mu = 2,8 \text{ cm}^2/\text{Vs}$$

Cette valeur est beaucoup plus élevée que celle habituellement trouvée dans la littérature $\mu' = 3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Nous expliquerons ce désaccord apparent après avoir analysé les prévisions de notre modèle dans le cas de l'excitation continue.

De même que pour l'échantillon Crystal Technology on a :

$$i_1 = \mu e E s \frac{T_1}{T_2} S I_o N_D \left(\frac{T}{T_1} - 1 \right) T_P$$

Par contre, maintenant le rapport $\frac{i_1}{i_o}$ vaut :

$$\frac{i_1}{i_o} = \frac{T_1}{T_2} \left(\frac{T}{T_1} - 1 \right)$$

Nous connaissons déjà T_1 et T_2 , la mesure de $\frac{i_1}{i_o}$ permet de trouver $T = \tau_1 (1 + B \tau_2)$: on mesure $\frac{i_1}{i_o} = 0,17$ et donc :

$$T = 1,7 \cdot 10^{-6} \text{ s}$$

Enfin, pour caractériser complètement le processus, il suffit de résoudre le système de trois équations à trois inconnues suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} T = \tau_1 (1 + B \tau_2) \\ T_1 = \frac{\tau_1}{1 + B \tau_1} \\ T_2 = \tau_2 (1 + B \tau_1) \end{array} \right.$$

.../...

La résolution de ce système conduit à :

$$\begin{aligned} \tau_1 &= 60 \cdot 10^{-9} \text{ s} \\ \tau_2 &= 8,6 \cdot 10^{-6} \text{ s} \\ B &= 3,3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

Nous voyons donc que cette méthode d'analyse des transitoires du photocourant induit par des impulsions lumineuses brèves permet pour les échantillons du type Sumitomo de caractériser totalement les processus de transport de charge et de mesurer :

- la mobilité des porteurs μ
- le temps de vie dans la bande de conduction τ_1
- le temps de vie dans les pièges τ_2
- la probabilité d'excitation à partir d'un piège B.

3-3 - Cas de l'excitation quasicontinue

Le comportement observé pour les deux échantillons étudiés est identique, seules les valeurs numériques changent. Le photocourant croît et décroît exponentiellement avec une constante de temps égale à 120 μs pour l'échantillon Crystal Technology et à 20 μs pour le Sumitomo. Notre modèle prévoit :

pour $t \leq T_p$:

$$n(t) = S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \left[\left(1 - \frac{T}{T_2}\right) e^{-\frac{t}{T_1}} + \left(1 - \frac{T}{T_1}\right) e^{-\frac{t}{T_2}} + T \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right) \right]$$

Puisque la constante de temps T_1 est au plus égale à 50 ns une telle expérience réalisée en continu ne peut être sensible à ce paramètre. Par contre, la croissance lente du photocourant donnant accès à T_2 peut être obtenue.

$$i(t) = \mu e s E S I_o N_D \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \left[T \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) + \left(1 - \frac{T}{T_1} \right) e^{-\frac{t}{T_2}} \right]$$

La constante de temps mesurée en continu est identique à la constante T_2 de décroissance lente en régime d'excitation pulsé : on mesure bien expérimentalement des valeurs voisines

$$120 \mu s \quad \text{pour} \quad 110 \mu s$$

$$20 \mu s \quad \text{pour} \quad 10 \mu s$$

Interprétons maintenant le fait que la mobilité des porteurs μ que nous avons mesurée est bien plus importante que celle mesurée par d'autres auteurs . Pour cela plaçons nous dans le cas précis de l'échantillon Sumitomo. Comme $T_2 = 10 \mu s$ et $T_1 = 50 ns$ on peut dire que $\frac{1}{T_2} \ll \frac{1}{T_1}$, d'autre part, $\frac{T}{T_1} = 34$ donc $\frac{T}{T_1} \gg 1$. On peut alors écrire $i(t)$ de la façon suivante :

$$i(t) = \mu e s E S I_o N_D T (1 - e^{-\frac{t}{T_2}})$$

et donc :

$$i(t) = \mu S I_o N_D T_2 \frac{B + \frac{1}{\tau_2}}{B + \frac{1}{\tau_1}} (1 - e^{-\frac{t}{T_2}}) eEs$$

En posant :

$$\mu' = \mu \frac{B + \frac{1}{\tau_2}}{B + \frac{1}{\tau_1}}$$

on trouve :

$$i(t) = \mu' S I_o N_D T_2 (1 - e^{-\frac{t}{T_2}}) eE$$

On peut alors faire une analogie avec un système à 2 niveaux où μ' représente la mobilité des porteurs et T_2 leur temps de recombinaison. Dans notre cas, le processus envisagé montre que μ' représente la mobilité qui tient compte du piégeage et doit donc être inférieure à μ la mobilité intrinsèque des électrons dans la bande de conduction. Comme τ_2 est grand devant τ_1 ,

$$\tau_2 \gg \tau_1 \frac{B + 1/\tau_2}{B + 1/\tau_1}$$

est inférieur à 1 et on vérifie que l'on a $\mu' < \mu$.

Les expériences de mesure de μ qui se font par des méthodes n'ayant pas une résolution temporelle suffisante ne peuvent permettre d'atteindre des valeurs de μ' et non de μ .

Nous pouvons utiliser cette analogie pour confirmer notre interprétation. En effet, en poursuivant cette analogie avec le modèle d'un système à 2 niveaux, on peut calculer une grandeur physique importante pour l'effet photoréfractif :

la longueur de diffusion $L_D = \sqrt{\frac{kT}{e} \mu' T_2}$

On trouve donc à partir des données microscopiques du processus l'expression de L_D :

$$L_D = \sqrt{\frac{kT}{e} \mu \left(\frac{B+1/\tau_2}{B+1/\tau_1} \right) T_2}$$

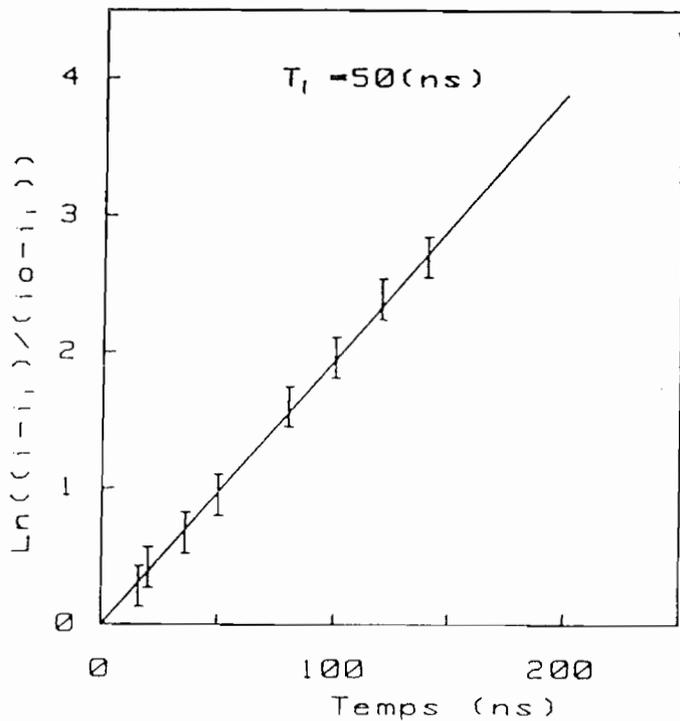
une application numérique faite dans le cas de l'échantillon Sumitomo donne :

$L_D = 3,5 \mu\text{m}$

On peut rapprocher cette valeur de celle mesurée par d'autres méthodes par exemple par R.W. Hellwarth [60] qui trouve $L_D = 3,8 \mu\text{m}$ ou par G. Pauliat [61] qui trouve $L_D = 3,9 \mu\text{m}$. Notre modèle ainsi que les

grandeurs numériques qui lui sont associées semblent tout à fait cohérents avec l'ensemble des résultats obtenus tant en régime pulsé nanoseconde qu'en régime quasi-continu.

a)



b)

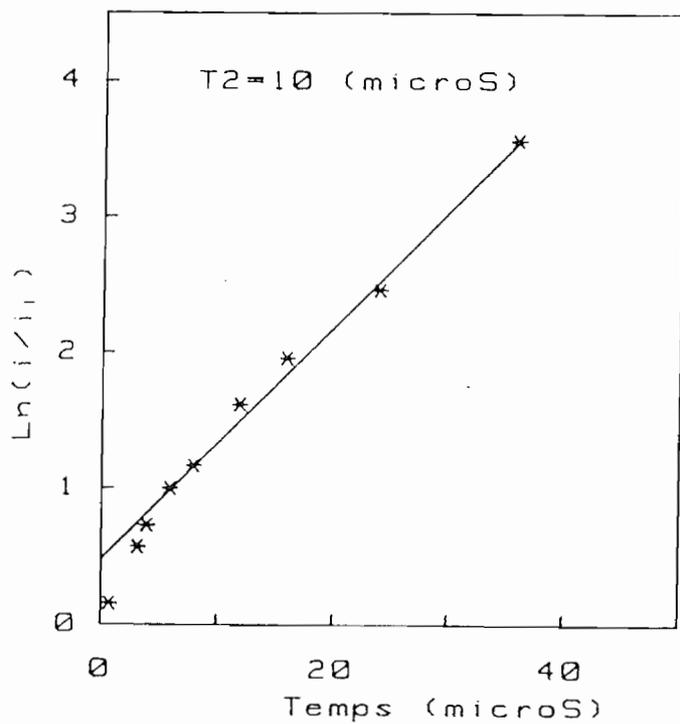


Figure 19 : Détermination des constantes de décroissance du photocourant.

a) Décroissance rapide

b) Décroissance lente.

4 - CONCLUSION

L'étude de la photoconduction en régime d'excitation pulsée nanoseconde nous a donc permis de mettre en évidence un état transitoire des porteurs photoexcités pour lequel la mobilité est supérieure à celle mesurée antérieurement par d'autres expériences. Selon les échantillons étudiés, la durée de vie moyenne des électrons dans la bande de conduction peut varier de moins de 3 ns à 60 ns et l'on observe ensuite que la conduction est limitée par le piégeage des porteurs, la mobilité chutant d'un facteur compris entre 6 et 40.

La prise en compte d'un nouveau type de centres, les pièges, a permis de bâtir un modèle expliquant à la fois le comportement observé tant en régime d'excitation nanoseconde qu'en régime quasicontinu. Nous pensons qu'en régime d'excitation continu la migration des porteurs se fait essentiellement par saut (Hopping) d'un piège à l'autre avant recombinaison.

La caractérisation complète menée pour l'échantillon Sumitomo a permis de calculer la longueur moyenne de migration d'un porteur photoexcité. La valeur trouvée $3,5 \mu\text{m}$ est en bon accord avec celle mesurée par d'autres méthodes confirmant ainsi notre interprétation.

Il faut noter que la mise en évidence de cet état transitoire, et la caractérisation complète des processus de transport de charges, n'a pu être obtenue que grâce à l'utilisation d'impulsions lumineuses excitatrices très brèves (plus courtes que les temps caractéristiques de piégeage et de recombinaison).

Nous allons maintenant étudier l'influence de ces divers paramètres sur la création du champ de charge d'espace induit lors d'expériences de mélange à deux ondes.

Chapitre 4

I - ETUDE THÉORIQUE

1-1 - Introduction

Nous avons réalisé des expériences de mélange à deux ondes, et comme nous l'avons rappelé au chapitre I c'est l'établissement du champ de charge d'espace dû au déplacement des porteurs qui gouverne l'effet photoréfractif.

La dynamique de déplacement des porteurs vient d'être analysée. nous allons donc maintenant calculer le champ de charge d'espace induit en régime d'excitation nanoseconde lors de l'enregistrement holographique.

Nous avons vu au chapitre précédent que le modèle à deux niveaux décrit par Kukhtarev était insuffisant pour décrire les résultats expérimentaux obtenus pour la photoconduction. Il est donc tout aussi insuffisant pour décrire la cinétique de l'enregistrement holographique. De plus, dans le cas de l'excitation nanoseconde, on ne peut plus considérer que la densité de porteurs excités n reste constante pendant la durée de l'écriture. Cette dépendance temporelle de n n'a jamais été prise en compte et rend le calcul du champ de charge d'espace plus complexe. Il est nécessaire de partir du système d'équations défini au chapitre III dans le cadre de notre modèle à trois niveaux et que nous rappelons :

$$\operatorname{div} \vec{j} = -e \left(\frac{\partial N_D^i}{\partial t} + \frac{\partial N^+}{\partial t} - \frac{\partial n}{\partial t} \right)$$

$$\operatorname{div} \vec{E} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (N^+ + N_D^i - (n + N_A))$$

$$\frac{\partial N^+}{\partial t} = -\frac{n}{\tau_1} + (B + \frac{1}{\tau_2}) N \quad \text{avec} \quad N^+(I=0) = N^+ + N$$

$$\frac{\partial N_D^i}{\partial t} = SI (N_D - N_D^i) - \frac{N}{\tau_2}$$

$$\vec{j} = \mu n e \vec{E} + k_B T \mu \operatorname{grad} n$$

Nous nous plaçons dans le cas d'une excitation spatialement sinusoïdale : $I = I_0 (1 + m e^{ikz})$.

Nous effectuerons le calcul pour des faibles taux de modulation m , et chercherons des solutions de la forme :

$$n(z, t) = n_0(t) + \delta n(z, t)$$

$$N(z, t) = N_0(t) + \delta N(z, t)$$

$$N_D^i(z, t) = N_{D0}^i(t) + \delta N_D^i(z, t)$$

$$\vec{j}(z, t) = \vec{j}_0(t) + \delta \vec{j}(z, t)$$

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_0(t) + \delta \vec{E}(z, t)$$

où n_0 , N_0 , N_{D0}^i , \vec{j}_0 , \vec{E}_0 sont les solutions du système dans le cas de l'éclairement spatialement uniforme. Après développement au premier ordre le système à résoudre s'écrit alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{div} \delta \vec{j} = -e \left(\frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} + \frac{\partial \delta N^+}{\partial t} - \frac{\partial \delta n}{\partial t} \right) \\ \operatorname{div} \delta \vec{E} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (\delta N_D^i + \delta N^+ - \delta n) \\ \delta \vec{j} = \mu n_0(t) e \delta \vec{E} + \mu e \vec{E}_0 \delta n + k_B T \mu \operatorname{grad} \delta n \\ \frac{d \delta N^+}{dt} = -\frac{\delta n}{\tau_1} - \left(B + \frac{1}{\tau_2} \right) \delta N^+ \\ \frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} = -S I_0 \delta N_D^i + S \delta I N_D + \frac{\delta N^+}{\tau_2} \end{array} \right.$$

Enfin, en supposant des solutions sinusoïdales de vecteur d'onde \vec{k} , il vient :

$$(1) \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \delta N^+}{\partial t} = - \frac{\delta n}{\tau_1} - (B + \frac{1}{\tau_2}) \delta N^+ \\ \frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} = - S I_0 \delta N_D^i + S \delta I N_D + \frac{\delta N^+}{\tau_2} \\ \vec{\delta j} = \mu n_0 e \vec{\delta E} + \delta n \mu e (\vec{E}_0 + i \vec{E}_D) \\ i k \delta j = - e \left(\frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} + \frac{\partial \delta N^+}{\partial t} - \frac{\partial \delta n}{\partial t} \right) \\ i k \delta E = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (\delta N^+ + \delta N_D^i - \delta n) \end{array} \right.$$

Il nous parait illusoire de chercher une solution analytique du problème dans le cas général. Aussi effectuerons nous les calculs dans les deux cas limites correspondants aux deux échantillons Sumitomo (n° 2) et Crystal Technology.

Sumitomo : la durée de l'impulsion T_p est courte devant les temps de piégeage et de recombinaison.

Crystal Technology : la durée de l'impulsion T_p est longue devant le temps de piégeage et courte devant le temps de recombinaison.

1-2 - Résolution dans le cas de l'échantillon Sumitomo

a) Amplitude du champ de charge d'espace à la fin de l'impulsion lumineuse

Comme nous venons de le rappeler la durée de l'impulsion $T_p = 3 \text{ ns}$ est courte devant le temps de piégeage $\tau_1 = 60 \text{ ns}$ et le temps de recombinaison $\tau_2 = 10 \text{ } \mu\text{s}$. Aussi négligeons nous le piégeage et la recombinaison pendant la durée de l'impulsion lumineuse. Le système (1) s'écrit

alors :

$$(2) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \delta N^+}{\partial t} = 0 \\ \frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} = - S I_o \delta N_D^i + S \delta I N_D \\ \delta j = \mu n_o e \delta E + \delta n \mu e (E_o + i E_D) \\ ik \delta j = - e \left(\frac{\partial \delta N_D^i}{\partial t} - \frac{\partial \delta n}{\partial t} \right) \\ ik \delta E = \frac{e}{\epsilon \epsilon_o} (\delta N_D^i - \delta n) \end{array} \right.$$

Nous pouvons directement calculer :

$$\delta N_D^i = m N_D (1 - e^{-S I_o t})$$

Les ordres de grandeur des puissances incidentes utilisées permettent d'écrire que pendant la durée de l'impulsion :

$$\delta N_D^i = m N_D S I_o t$$

Rappelons de plus que le développement fait au chapitre trois nous a permis de calculer :

$$n_o(t) = N_D S I_o t$$

Ainsi, le système (2) permet d'aboutir à l'équation d'évolution temporelle du champ de charge d'espace photoinduit.

$$\frac{\partial \delta E}{\partial t} + \partial E \left(\frac{S I_o N_D e \mu t}{\epsilon \epsilon_o} + \frac{k^2 k_B T \mu}{e} - ik \mu E_o \right) = - m \frac{\mu e S I_o N_D}{\epsilon \epsilon_o} t (E_o + i E_D)$$

.../...

soit en posant :

$$\tau_{di} = \frac{\epsilon \epsilon_0}{S I_0 N_D e \mu T_p} \quad \text{le temps de relaxation diélectrique}$$

$$\tau_d = \frac{e}{k^2 k_B T \mu} \quad \text{le temps de diffusion}$$

$$\tau_E = \frac{l}{k \mu E_0} \quad \text{le temps d'entrainement sous champ}$$

(3)

$$\frac{\partial \delta E}{\partial t} + \delta E \left(\frac{t}{T_p \tau_{di}} + \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right) = -m \frac{(E_0 + i E_D)}{\tau_{di}} \frac{t}{T_p}$$

L'équation (3) permet de connaître $\delta E(T_p)$ pour l'échantillon Sumitomo. Elle diffère de l'équation obtenue en régime d'excitation quasi-continue notamment par le fait qu'elle n'est plus à coefficients constants. Nous pouvons remarquer que cette équation d'évolution reste valable quelle que soit l'énergie excitatrice incidente pourvu que le nombre de porteurs excités soit petit devant le nombre de donneurs. Pour le BSO on a $N_D \approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, nous n'utiliserons pas d'énergies incidentes supérieures à 20 mJ/cm^2 ce qui représente au maximum $5 \cdot 10^{16}$ électrons par cm^3 . On aura donc toujours $N_D^i \ll N_D$. Pour nos expériences l'équation (3) sera toujours valable.

La valeur de la mobilité μ mesurée au chapitre 3 pour cet échantillon permet d'estimer les valeurs numériques des temps caractéristiques τ_d , τ_{di} , τ_E d'évolution du champ interne. Ainsi par exemple, pour un pas de réseau de $1 \mu\text{m}$, un champ appliqué de 1 kV/cm et une densité d'énergie d'environ 1 mJ/cm^2 on a :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_d = 3,37 \text{ ns} \\ \tau_{di} = 3,7 \text{ ns} \\ \tau_E = 5,3 \text{ ns} \end{array} \right.$$

.../...

Nous remarquons que tous les temps caractéristiques sont à l'échelle de la nanoseconde, et pouvons donc prévoir une réponse rapide du système à l'excitation lumineuse.

i) Cas des fortes énergies d'excitation (supérieure à 1 mJ/cm^2)

Dans ce cas l'équation (3) requiert une solution numérique. La figure n° 1 montre l'évolution temporelle du champ de charge d'espace pour différentes configurations expérimentales. Le point important est que le champ d'espace atteint la valeur de l'état stationnaire pendant la durée de l'impulsion lumineuse. On peut ainsi déduire que pour $t = T_p$, on a :

$$\delta E(T_p) = - m(E_o + i E_D) \frac{\tau_d \tau_E}{\tau_E(\tau_{di} + \tau_d) - i \tau_d \tau_{di}}$$

Dans le cas où on n'applique pas de champ externe ($E_o = 0$) il vient :

$$\delta E(T_p) = - i m E_D \frac{\tau_d}{\tau_{di} + \tau_d}$$

Notons que dans ce cas $\delta E(T_p)$ est déphasé de $-\frac{\pi}{2}$ par rapport au réseau d'illumination et que la valeur maximale pour une énergie excitatrice donnée est obtenue pour $\tau_d = \tau_{di}$.

Les variations des valeurs du champ de charge d'espace $\delta E(T_p)$ en fonction du pas du réseau sont montrées figure 2 pour différentes énergies d'excitation comprises entre 1 et 10 mJ/cm^2 . On peut remarquer que les maxima de $\delta E(T_p)$ sont obtenus pour des pas de franges inférieurs au micron. Il est aussi intéressant de voir que lorsque l'énergie croît, $|\delta E(T_p)|$, sature à une valeur égale à $m E_D$.

ii) Cas des faibles éclairissements

Nous dirons que l'éclairissement est faible tant que $\tau_{di} > \tau_d$. Nous savons que pour un pas de $1 \mu\text{m}$ τ_d vaut 3,4 ns. La condition de faible éclai-

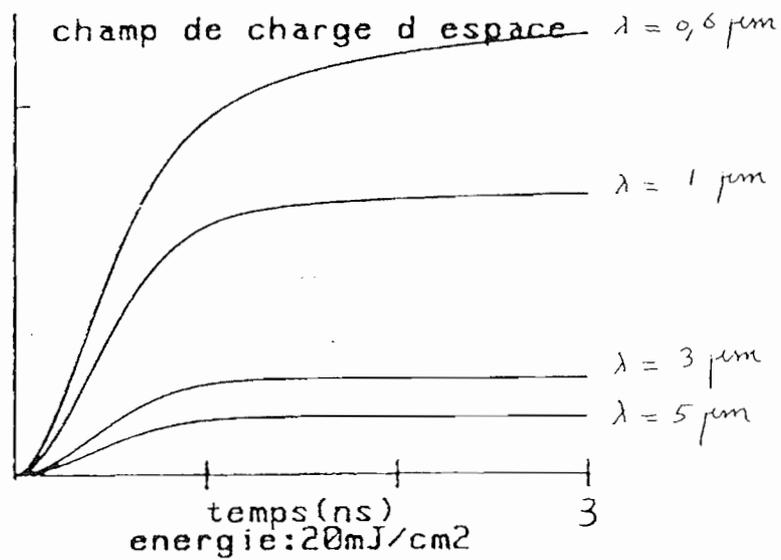
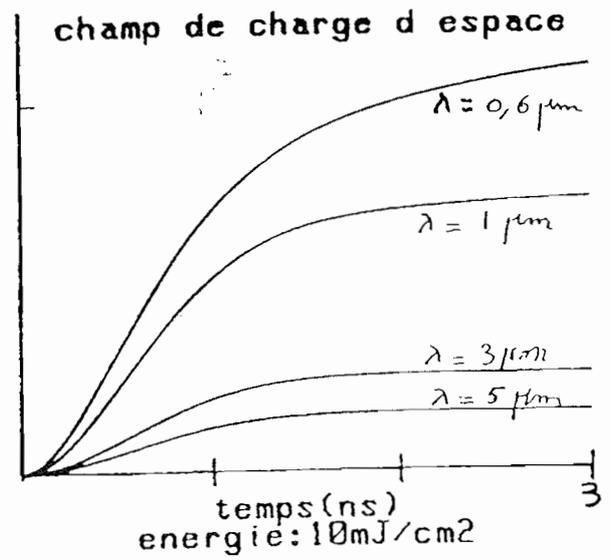
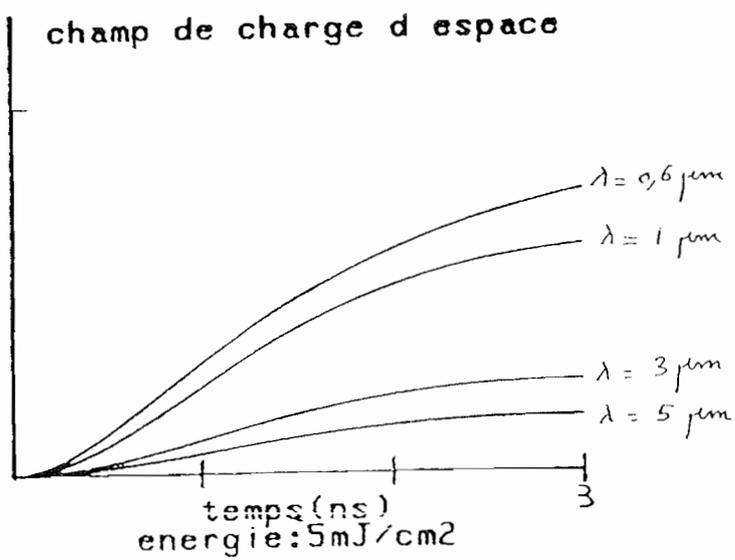


Figure 1 : Evolution temporelle du champ de charge d'espace pour l'échantillon Sumitomo dans le cas des fortes énergies excitatrices.

rement impose alors des énergies excitatrices inférieures à $100 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Dans ce cas l'équation d'évolution se simplifie et devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta E + \delta E \left(\frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right) = - m \frac{(E_o + i E_D)}{\tau_{di}} \frac{t}{T_p}$$

La solution s'écrit en tenant compte de la condition initiale $\delta E|_{t=0} = 0$:

$$\delta E(t) = - m \frac{(E_o + i E_D)}{\tau_{di}} \frac{T}{T_p} \left[t + T (e^{-\frac{t}{T}} - 1) \right]$$

avec $\frac{1}{T} = \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E}$

Remarquons que T ne dépend pas de l'énergie incidente. Cela nous permet de conclure que $\delta E(T_p)$ varie linéairement avec l'énergie excitatrice.

b) Evolution de δE après passage de l'impulsion

On ne peut plus négliger la recombinaison des porteurs et la résolution du système devient complexe. Nous pouvons cependant remarquer que :

* A forte énergie d'excitation

$\delta E(t)$ atteint la valeur de l'état stationnaire pendant la durée de l'impulsion et qu'alors $\delta E(T_p)$ représente l'amplitude maximale du champ de charge d'espace que l'on peut induire. Deux situations peuvent alors se présenter : si le nombre d'électrons excités n est inférieur au nombre d'accepteurs la recombinaison s'effectue sans modification du champ $\delta E(T_p)$. Par contre, si n est supérieur au nombre d'accepteurs la recombinaison peut entraîner une chute du champ due à la saturation de la charge d'espace. Ce phénomène ne pouvant se produire qu'à petit pas de réseaux puisqu'à grand pas on a toujours $\tau_{di} \ll \tau_d$ et donc δE ne dépend pratiquement plus de l'énergie incidente et tend vers zéro.

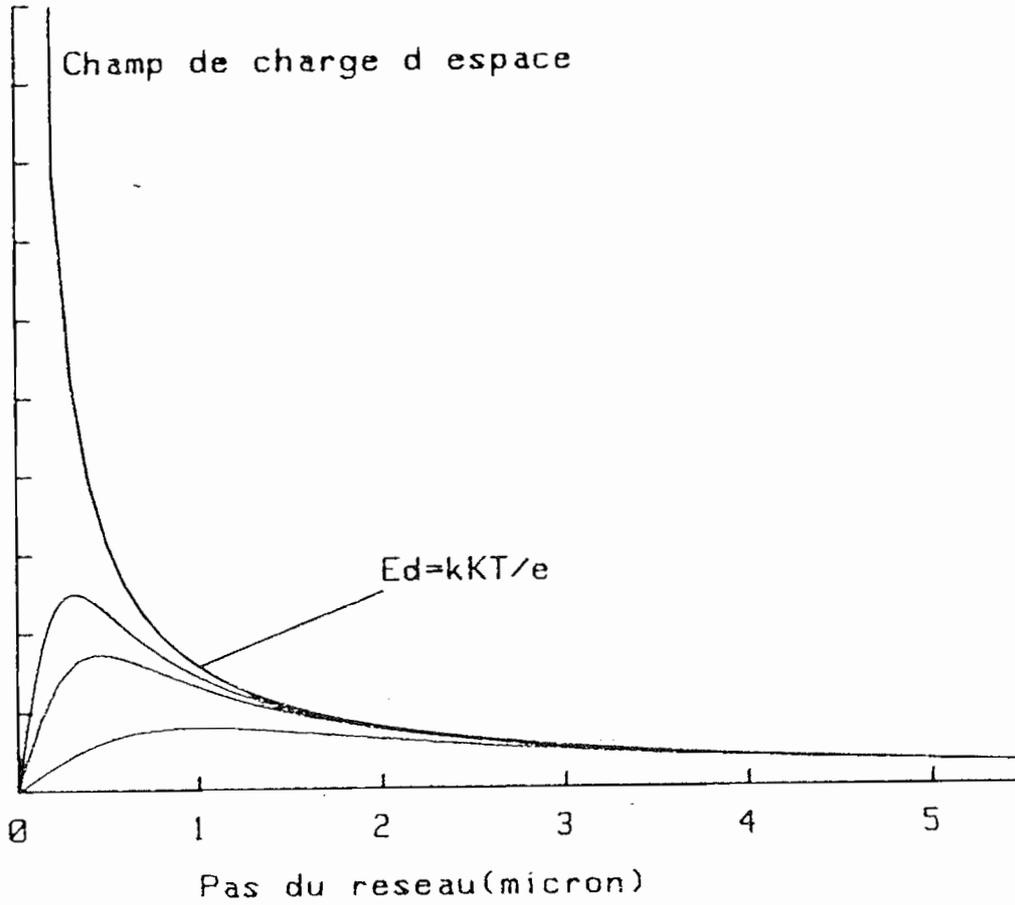


Figure 2 : Variation de $\delta E(T_p)$ en fonction du pas du reseau pour différentes énergies absorbées. a) 1 mJ/cm^2
b) 5 mJ/cm^2
c) 10 mJ/cm^2

* A faible énergie d'excitation

On peut considérer deux cas distincts : pour les petits pas de réseau (inférieurs au micron) la constante de temps de diffusion est inférieure à la durée de l'impulsion, la répartition spatiale d'électrons à $t = T_p$ est uniforme dans la bande de conduction, et la recombinaison des porteurs n'entraîne pas de variation du champ de charge d'espace. Dans ce cas le champ maximal induit vaut :

$$\delta E(T_p) = - m \frac{T}{T_p} \frac{(E_o + i E_D)}{\tau_{di}} \left[(T_p - T) + T e^{-\frac{T_p}{T}} \right]$$

Si on n'applique pas de champ externe ($E_o = 0$), $T = \tau_d$ et il vient :

$$\delta E(T_p) = - im \frac{E_D}{\tau_{di}} \frac{\tau_d}{T_p} \left[T_p + \tau_d \left(e^{-\frac{T_p}{\tau_d}} - 1 \right) \right]$$

Si nos prévisions sont exactes cette valeur représente le champ à l'état stationnaire.

Pour les grands pas de réseaux, la diffusion des porteurs continue même après passage de l'impulsion lumineuse. Sans champ externe l'amplitude de $\delta E(T_p)$ est voisine de zéro. On peut augmenter δE en appliquant un champ externe E_o , on peut alors supposer que l'écriture du réseau sera limitée par la recombinaison des porteurs.

1-3 - Résolution dans le cas de l'échantillon Crystal Technology

a) amplitude du champ de charge d'espace à la fin de l'impulsion lumineuse

Pour cet échantillon le temps de piégeage τ_1 est plus court que la durée de l'impulsion lumineuse T_p , et par contre la recombinaison est bien

plus longue. On peut alors faire les deux approximations suivantes :

* Pendant la durée de l'impulsion n_o est constante et vaut :

$$n_o = S I_o N_D \tau_1 ;$$

* Pour t inférieur à T_p la recombinaison est inopérante et comme pour l'échantillon Sumitomo on a :

$$\delta N_D^i = m N_D S I_o t$$

On peut alors de la même façon qu'au chapitre I calculer les variations temporelles de la modulation du champ de charge d'espace photo-induit. Son équation d'évolution est donnée par :

$$\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2} + \frac{\partial \delta E}{\partial t} \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right) + \frac{\delta E}{\tau_{di} \tau_1} = - \frac{m S I_o N_D \mu e}{\epsilon \epsilon_o} (E_o + i E_D)$$

avec :

$$\tau_{di} = \frac{\epsilon \epsilon_o}{\mu S I_o N_D \tau_1 e}$$

Cette équation n'est valable que pour les faibles énergies excitatrices car nous avons supposé que $N^+ \approx N^+(0)$. Dans ce cas τ_{di} est supérieur à T_p puisque c'était déjà le cas pour l'échantillon Sumitomo plus conducteur. On peut donc négliger $\frac{1}{\tau_{di}}$ devant $\frac{1}{\tau_1}$ et l'équation s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \delta E}{\partial t^2} + \frac{\partial \delta E}{\partial t} \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right) + \frac{\delta E}{\tau_{di} \tau_1} = - m \frac{(i E_D + E_o)}{\tau_{di} \tau_1}$$

Plaçons nous par exemple sans champ externe appliqué ($E_o = 0$) configuration dans laquelle seront menées toutes nos expériences.

On a alors $\delta E(t) = C_1 e^{-\frac{t}{T_1}} + C_2 e^{-\frac{t}{T_2}} - m_i E_D$. On trouve T_1 et T_2 en résolvant l'équation caractéristique, et en supposant toujours que l'on a $\tau_{di} \gg \tau_1$:

$$T_1 = \frac{\tau_1 \tau_d}{\tau_1 + \tau_d} \qquad T_2 = \tau_{di} \frac{\tau_1 + \tau_d}{\tau_d}$$

Remarquons que :

$$\left\{ \begin{array}{ll} T_1 < \tau_1 & \text{donc} \quad T_1 \ll T_p \\ T_2 > \tau_{di} & \text{donc} \quad T_2 \gg T_p \end{array} \right.$$

Les conditions initiales imposent :

$$\delta E(0) = 0 = C_1 + C_2 - m_i E_D$$

$$\left. \frac{\partial \delta E}{\partial t} \right|_{t=0} = -\frac{m_i E_D}{\tau_{di}} = -\frac{C_1}{T_1} - \frac{C_2}{T_2}$$

On déduit :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_1 = -m_i E_D \left(\frac{1}{T_2} + \frac{1}{\tau_{di}} \right) \frac{T_2 T_1}{T_2 - T_1} \\ C_2 = \frac{T_2 T_1}{T_2 - T_1} m_i E_D \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{\tau_{di}} \right) \end{array} \right.$$

soit après approximation ($T_2 \gg T_1$).

$$\left\{ \begin{array}{l} C_1 = -m_i E_D \frac{T_1}{\tau_{di}} \left(1 + \frac{\tau_d}{\tau_1 + \tau_d} \right) \\ C_2 = m_i E_D \end{array} \right.$$

comme $\frac{T_1}{\tau_{di}} \ll 1$ $C_1 \ll C_2$ et il vient :

$$\delta E(t) = - m i E_D \left(1 - e^{-\frac{t \tau_d}{\tau_{di}(\tau_1 + \tau_d)}} \right)$$

En particulier pour $t = T_p \ll T_2$, il vient :

$$\delta E(T_p) = - m i E_D \frac{T_p}{\tau_{di}} \frac{\tau_d}{\tau_1 + \tau_d}$$

et :

$$\delta E(T_p) = - m i E_D \frac{S N_D I_o T_p}{\epsilon \epsilon_o} \mu e \frac{\tau_1 \tau_d}{\tau_1 + \tau_d}$$

On peut remarquer en particulier que le champ induit varie linéairement avec l'énergie d'excitation $I_o T_p$, et qu'il est déphasé de $-\frac{\pi}{2}$ par rapport au réseau d'illumination.

b) Evolution de δE après passage de l'impulsion

Comme pour l'échantillon Sumitomo, l'étude est ici compliquée. L'étude de la photoconduction a permis d'observer que la conductivité résiduelle existante après passage de l'impulsion lumineuse était pratiquement négligeable (Figure 3) devant la conductivité en présence de l'impulsion. On peut supposer que les modifications induites sur δE après l'instant T_p seront faibles.

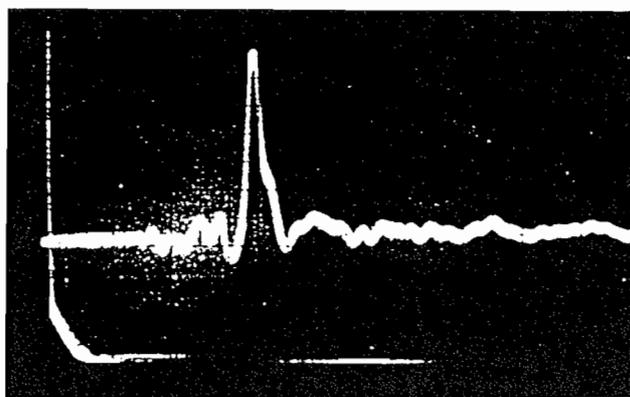


Figure 3 : Photocourant généré par l'échantillon Crystal Technology.

2 - ENREGISTREMENT HOLOGRAPHIQUE

2-1 - Diffraction par un réseau de phase épais photoinduit dans un cristal de BSO (BGO)

a) Structure du réseau d'indice

Nous nous plaçons ici dans le cas où le cristal est le siège de l'interaction de deux ondes planes cohérentes de vecteurs d'onde respectifs \vec{k}_1 et \vec{k}_2 . L'interférence de ces deux ondes planes crée dans le cristal une répartition sinusoïdale d'intensité dont nous pouvons calculer les caractéristiques :

- pas de franges Λ
- inclinaison ϕ des strates par rapport à la face d'entrée du cristal.

Si on appelle θ_1 (θ_2), l'angle déterminé par les directions des vecteurs d'onde \vec{k}_1 (\vec{k}_2) et la direction Oz (figure 4) on trouve :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Lambda = \frac{\lambda}{2 \left| \sin \left(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2} \right) \right|} \\ \sin \phi = \cos \left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2} \right) \end{array} \right.$$

où λ est la longueur d'onde des ondes optiques dans le BSO.

On choisit une configuration symétrique où $\theta = \theta_1 = -\theta_2$, on a alors :

$$\boxed{\begin{array}{l} \Lambda = \frac{\lambda}{2 \sin \theta} \\ \phi = \frac{\pi}{2} \end{array}}$$

Le vecteur d'onde \vec{K} du réseau d'illumination est orthogonal à la direction \vec{Oz} . Nous supposons que le réseau d'indice a la même période que le réseau d'illumination, par contre, ils ne sont pas en phase comme le montre la figure 5. On peut écrire :

$$n = n_0 + \delta n e^{i(Kx + \psi)}$$

b) Diffraction par un réseau de phase épais

i) Direction de l'onde diffractée

Supposons une onde plane de vecteur d'onde \vec{k}_ℓ incidente sur le réseau de phase de vecteur d'onde \vec{K} . L'interaction de l'onde de lecture et du réseau donne naissance à une onde diffractée de vecteur d'onde \vec{k}_d . La direction de l'onde diffractée s'obtient en écrivant la conservation des moments :

$$\vec{k}_d + \vec{K} = \vec{k}_\ell$$

Dans le cas de l'hologramme symétrique par transmission ($\phi = \frac{\pi}{2}$), on obtient la relation :

$$\sin \theta_d = \sin \theta_\ell - \frac{\lambda}{\Lambda}$$

où θ_d (θ_ℓ) est l'angle entre la direction \vec{k}_d (\vec{k}_ℓ) et la normale au vecteur d'onde schématisé figure 6. Dans le cas des réseaux épais on obtient l'onde diffractée lorsque l'ensemble des ondes élémentaires réfléchies par les strates de l'hologramme sont en état d'interférence constructive. On obtient ainsi la condition de Bragg qui s'écrit dans le cas de l'hologramme symétrique par transmission :

$$\sin \theta_\ell = \frac{1}{2} \frac{\lambda}{\Lambda}$$

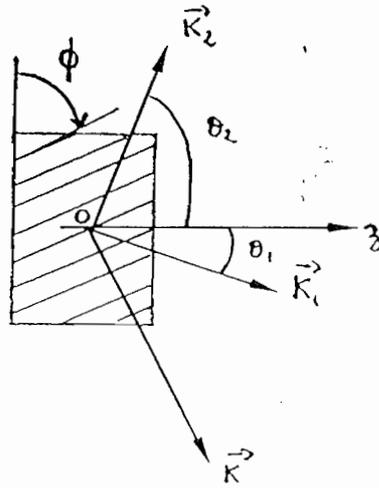


Figure 4 : Structure des franges lumineuses dans le BSO où \vec{k}_1 , \vec{k}_2 sont les vecteurs d'ondes des ondes lumineuses.

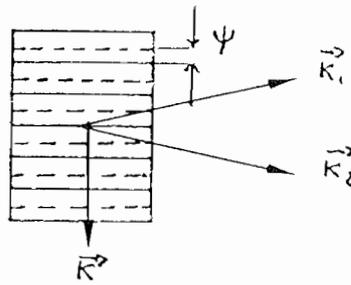


Figure 5 : Structure du réseau d'indice induit pour un hologramme par transmission symétrique.

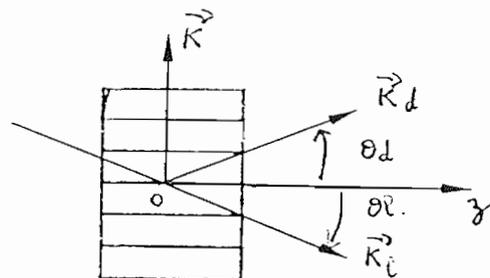


Figure 6 : Direction de l'onde diffractée par un réseau d'indice épais par transmission et symétrique.

θ_l angle de lecture, θ_d angle de diffraction, \vec{k}_d (\vec{k}_l) vecteur d'onde de l'onde diffractée (de lecture), \vec{k} vecteur d'onde du réseau.

La direction de propagation de l'onde diffractée est donnée

par :

$$\sin \theta_d = - \frac{\lambda}{2\Lambda}$$

et donc $\theta_d = - \theta_\ell$ (Figure 6).

ii) Intensité diffractée

Le calcul complet se fait en utilisant la théorie des ondes couplée de Kogelnik [62]. Nous donnons ici les résultats obtenus pour un hologramme par transmission inscrit dans un milieu ne possédant pas de pouvoir rotatoire. Le rendement de diffraction η vaut alors :

$$\eta = \frac{\sin^2(\sqrt{v^2 + \beta^2})}{1 + \frac{\beta^2}{v^2}}$$

avec :

$$v = \frac{\pi \delta n d}{\lambda_o \cos \theta_\ell}$$

$$\beta = \frac{1}{4} \frac{K}{k_\ell} \left[\frac{2k_\ell \sin \theta_\ell - K}{\cos \theta_\ell} \right] d$$

où δn est la modulation du réseau d'indice, d l'épaisseur du cristal traversée λ_o , la longueur d'onde de l'onde de lecture dans le vide. Pour l'incidence de Bragg θ_B , on obtient :

$$\eta(\theta_B) = \sin^2 \frac{\pi d \delta n}{\lambda_o \cos \theta_B}$$

.../...

Enfin, dans le cas des faibles modulations d'indice et en tenant compte de l'absorption α du cristal, il vient :

$$\eta = e^{-\frac{\alpha d}{\cos \theta_B}} \left[\pi \frac{d \delta n}{\lambda_0 \cos \theta_B} \right]^2$$

La mesure de l'efficacité de diffraction η permet donc de connaître tous les renseignements intéressants concernant la modulation du champ de charge d'espace δE ; η est proportionnelle à δE au carré.

2-2 - Montage expérimental (Figure 8)

a) Faisceaux d'enregistrement

Les faisceaux d'enregistrement sont fournis par un laser YAG. L'impulsion lumineuse obtenue est doublée en fréquence, sa durée est $T_p = 3$ ns et la longueur d'onde après doublage $\lambda_1 = 532$ nm. Ce faisceau passe tout d'abord dans un ensemble de lames et miroirs dichroïques qui permettent de rejeter la longueur d'onde infrarouge ($1,06 \mu\text{m}$), et est ensuite séparé en deux voies que l'on fait interférer au niveau de l'échantillon étudié. Elles sont polarisées verticalement.

Les deux faisceaux ainsi obtenus sont étendus de façon à couvrir tout l'échantillon et à l'éclairer de la façon la plus uniforme possible.

La longueur de cohérence de l'impulsion est faible. On obtient des systèmes de franges bien contrastées pour des différences de marches inférieures à trois centimètres. Une partie de l'énergie lumineuse incidente est prélevée et détectée par une cellule rapide afin de pouvoir contrôler les caractéristiques du faisceau excitateur.

b) Faisceau de lecture

Le faisceau de lecture diffracté par le réseau photoinduit génère le signal détecté. La polarisation est rectiligne ou circulaire, et il est incident sur le cristal à l'angle de Bragg. Lui aussi est étendu de façon à couvrir tout le cristal. Son intensité est suffisamment faible pour ne pas

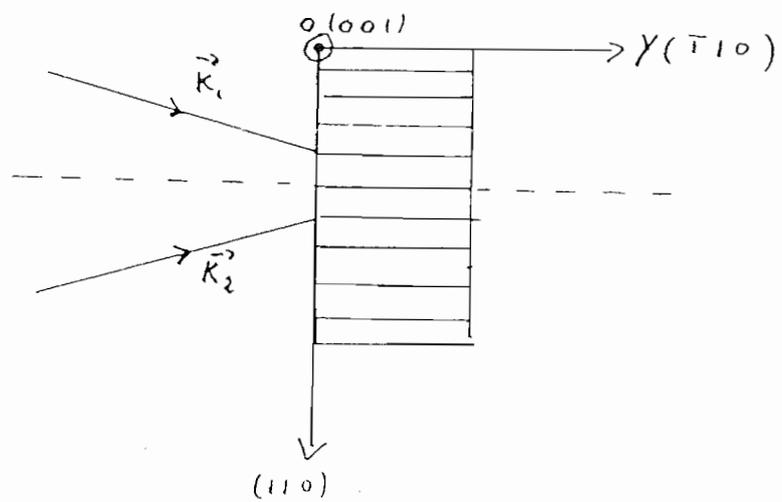


Figure 7 : Orientation du cristal de BSO dans la configuration holographique dans une expérience de mélange à deux ondes.

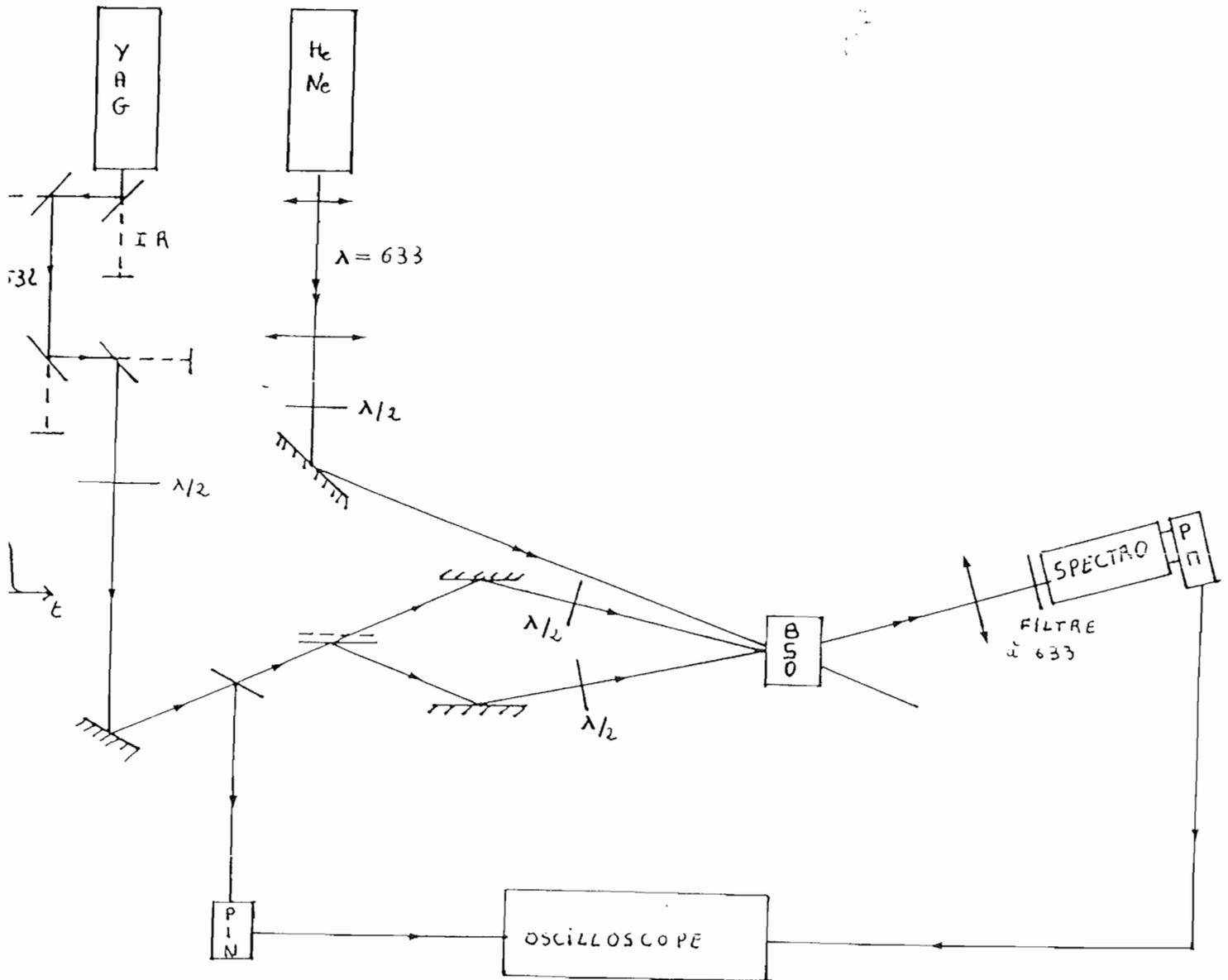


Figure 8 : Montage expérimental utilisé pour les expériences de mélange à deux ondes.

perturber l'inscription de l'hologramme. Nous choisirons un faisceau laser issu d'un laser Hélium Néon à la longueur d'onde $\lambda_2 = 633$ nm faiblement absorbé par le cristal.

c) Détection du faisceau diffracté

L'intensité diffractée sera en général faible, nous la détecterons avec un photomultiplicateur. Le problème important qui se pose en régime d'excitation pulsé est celui de la lumière parasite. Le seul moyen efficace de rejection est l'utilisation d'un spectromètre placé juste devant le PM. Nous focalisons le faisceau diffracté à l'aide d'une lentille cylindrique sur la fente d'entrée (de largeur 0,1 mm) au niveau de laquelle nous plaçons un filtre interférentiel à la longueur d'onde 633 nm. Le taux de lumière parasite devient alors négligeable.

Le signal obtenu est envoyé sur un oscilloscope rapide à mémoire. Nous travaillons au coup par coup ou à taux de répétition très faible ce qui rend l'acquisition et le traitement du signal difficiles. L'outil le mieux adapté à ce genre d'expériences nous semble être l'analyseur de transitoires rapides. Malheureusement, nous ne possédions pas un tel appareil.

2-3 - Résultats expérimentaux

Nous choisissons de réaliser nos expériences sans champ externe appliqué ($E_0 = 0$) et ce pour deux raisons : le fait d'éclairer l'échantillon avec des impulsions nanoseconde génère de forts photocourants susceptibles de détériorer l'échantillon, ou du moins de modifier le comportement du cristal, la seconde raison est que nous pouvons ainsi discriminer l'influence de chaque paramètre, et simplifier l'écriture de l'expression théorique du champ de charge d'espace. Le modèle théorique prévoit que δE est maximum pour des pas de réseau petits, nous choisirons donc l'angle des faisceaux d'écritures supérieur à 45° ($\lambda < 1 \mu\text{m}$).

a) Résultats obtenus dans le cas des faibles énergies d'excitation (inférieures au millijoule par cm^2)

Dans ce cas, la situation est simple, pour tous les échantillons étudiés le faisceau diffracté atteint sa valeur à l'état stationnaire en un temps inférieur au temps de montée de notre système de détection (10 ns). Une réponse caractéristique obtenue sur l'échantillon Sumitomo est montrée Figure 9.

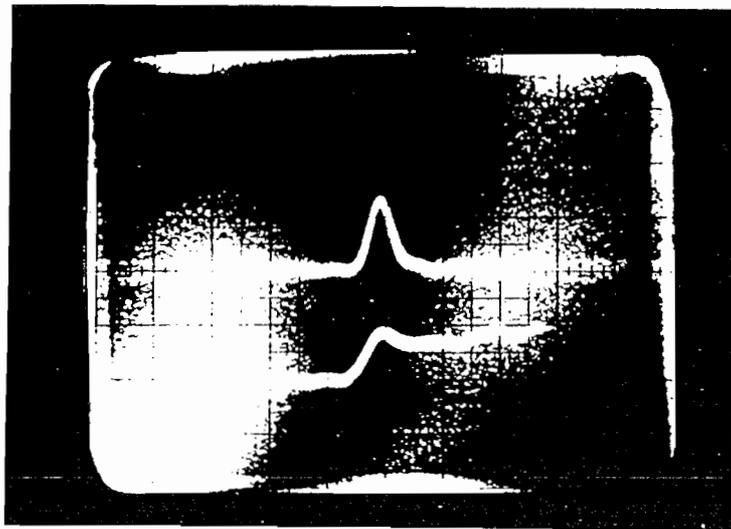


Figure 9 : Signal diffracté obtenu pour l'échantillon Sumitomo pour un pas de franges de $0,7 \mu\text{m}$.

*Sans champ externe appliqué :
trace supérieure impulsion lumineuse excitatrice.
trace inférieure intensité diffractée.*

De plus, l'efficacité de diffraction est proportionnelle au carré de l'énergie incidente comme le montre la figure 10. Ceci signifie que δE varie linéairement avec l'énergie d'excitation. Cette dépendance est bien prévue par notre modèle théorique. En effet, rappelons que dans ces conditions expérimentales on a :

Pour l'échantillon Crystal Technology :

$$\delta E = - m i E_D \frac{\tau_l \tau_d}{\tau_l + \tau_d} \frac{S N_D \mu e}{\epsilon \epsilon_o} \xi_p$$

ou ξ_p est l'énergie de l'impulsion lumineuse incidente.

Pour l'échantillon Sumitomo :

$$\delta E = - m i E_D \frac{\tau_d}{T_p} \left[T_p + \tau_d \left(e^{-\frac{T_p}{\tau_d}} - 1 \right) \right] \frac{S N_D \mu e}{\epsilon \epsilon_o} \xi_p$$

Pour cet échantillon on se trouve dans le cas où la croissance du champ de charge d'espace s'effectue par diffusion des porteurs. Une expérience réalisée dans les mêmes conditions expérimentales mais avec un pas de $1 \mu m$ a donné un temps de montée du signal toujours inférieur à $10 ns$ on a donc $\tau_d < 10 ns$ pour $\lambda = 1 \mu m$, ce qui conduit à la relation : $\mu = 1 cm^2/vs$. Nous n'avons pas pu réaliser cette expérience à des pas plus grands car l'efficacité de diffraction devient trop faible. Néanmoins, la relation obtenue sur la mobilité confirme nos conclusions du chapitre III : la mobilité des porteurs dans la bande de conduction est supérieure à celle habituellement employée $\mu = 3 \cdot 10^{-2} cm^2/vs$ [54].

Après passage de l'impulsion on observe l'effet mémoire caractéristique de l'effet photoréfractif. Grâce à cette mémorisation on peut augmenter l'efficacité de diffraction en éclairant le cristal de façon répétitive. Le champ de charge d'espace induit croit par effet cumulatif et atteint un état de saturation où le rendement de diffraction est voisin de celui obtenu en régime d'excitation continu. Un cycle d'écriture effacement obtenu à une cadence de répétition de $1 Hz$ est montré figure 11.

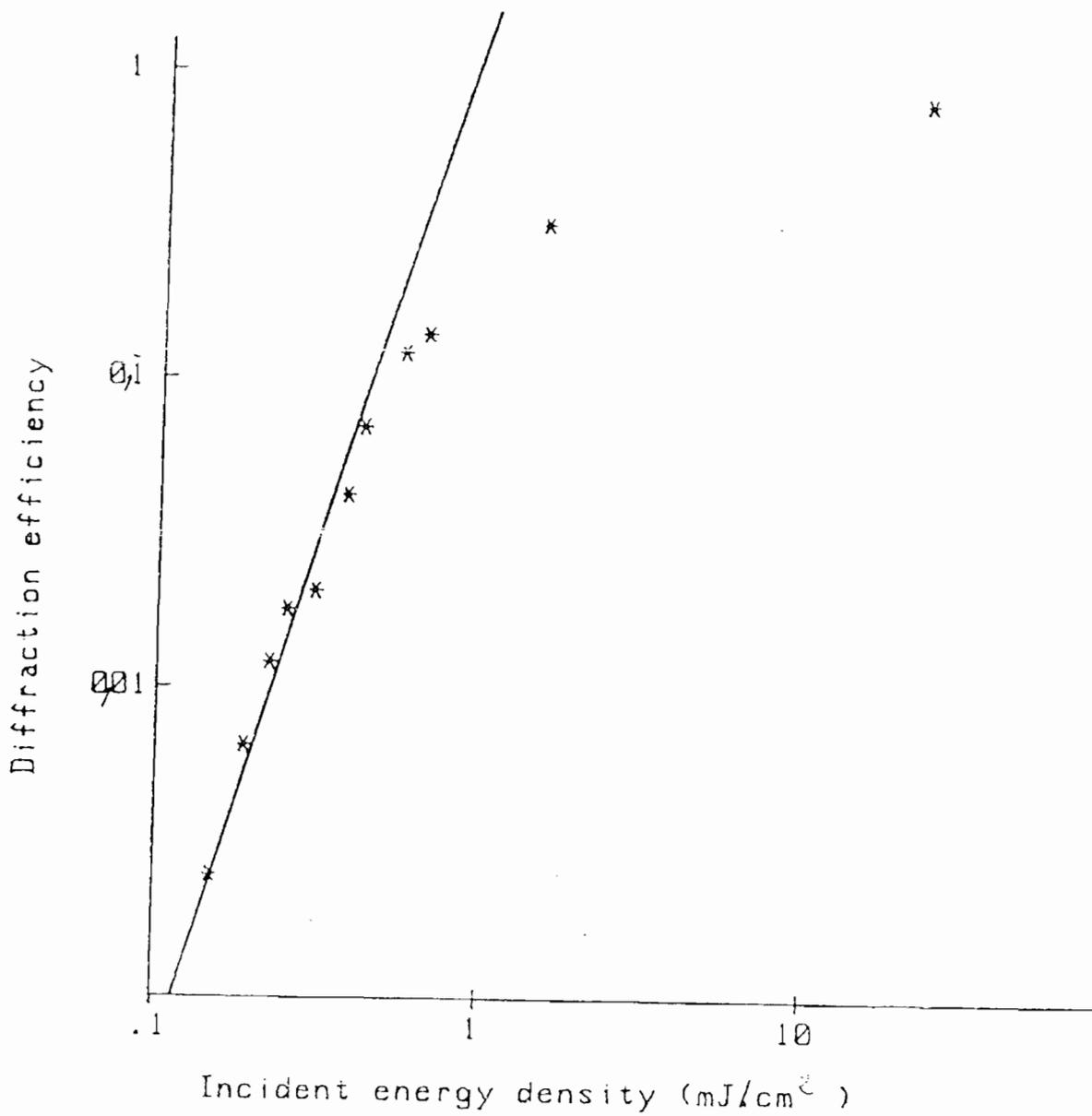


Figure 10 : Variation de l'efficacité de diffraction en unité arbitraire en fonction de l'énergie d'excitation.

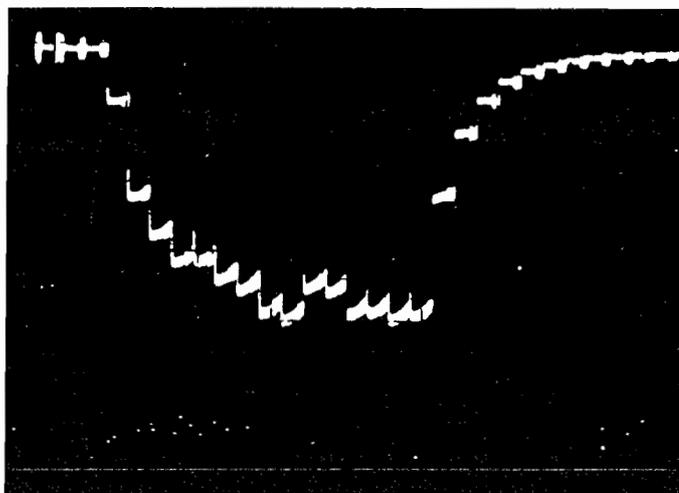


Figure 11 : Cycle d'écriture effacement obtenu par effet cumulatif à faible énergie incidente à cadence de répétition de 1 Hz.

b) Cas des fortes énergies incidentes (supérieures au mJ/cm^2)

Le comportement est similaire pour tous les échantillons étudiés mais est bien différent du comportement obtenu dans le cas des faibles énergies. Comme le montre la figure 12, on observe une montée très rapide toujours inférieure à 10 ns, suivie d'une décroissance de constante de temps dans la gamme des microsecondes, et puis de nouveau une montée mais cette fois-ci très lente (la constante de temps lente vaut 2 ms pour l'échantillon Sumitomo pour un pas de réseau de $1 \mu\text{m}$). Notons que pour les pas de réseaux utilisés, les parties rapides et lentes de la croissance du faisceau diffracté ont la même amplitude.

Dans le cas des forts éclaircissements l'efficacité de diffraction n'est plus proportionnelle au carré de l'énergie incidente ; Comme le montre la figure 10, on atteint un régime de saturation où le rendement de diffraction est du même ordre de grandeur que celui obtenu en régime d'excitation quasi-continu. Il faut pour l'atteindre des éclaircissements incidents au moins égaux à $20 \text{ mJ}/\text{cm}^2$.

Pour l'échantillon Crystal Technology, nous n'avons pas développé de modèle théorique décrivant le cas des forts éclaircissements incidents. Par contre, pour l'échantillon Sumitomo, nous savons que le champ induit à $t = T_p$ vaut :

$$\delta E = - m i E_D \frac{\tau_d}{\tau_{di} + \tau_d}$$

Cette expression décrit bien la saturation de l'efficacité observée, puisqu'alors τ_{di} tend vers 0 et δE vers $- m i E_D$. La théorie développée nous a permis de montrer que le champ de charge d'espace s'instaure pendant la durée de l'impulsion, nous interprétons donc la partie rapide du signal comme étant due à l'effet photoréfractif.

Aucun test ne nous a permis de comprendre la nature des mécanismes responsables du comportement "anormal" (décroissance puis croissance lente). Cependant, certaines observations donnent quelques renseignements :

- un tel comportement anormal apparaît dès que l'efficacité de diffraction n'est plus proportionnelle au carré de l'énergie incidente, donc

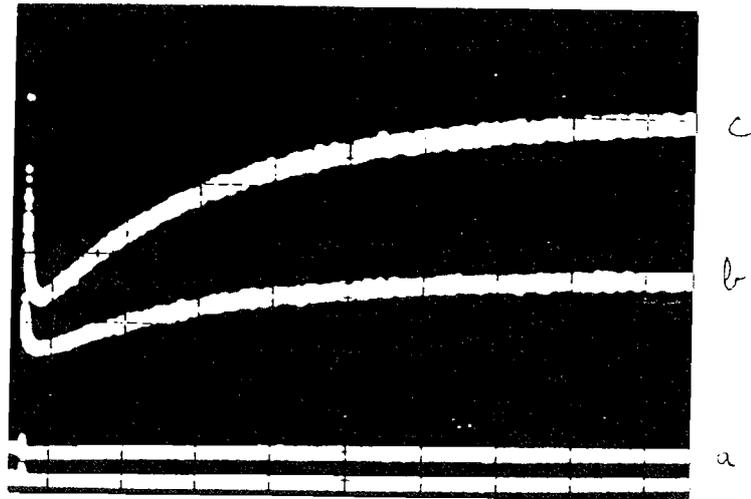


Figure 12 : Allure des signaux obtenus à forte énergie pour un pas de franges de $0,7 \mu\text{m}$ sans champ externe appliqué et pour trois énergies différentes.

a) Faible énergie

b) 1 mJ/cm^2

c) 10 mJ/cm^2

pour des énergies supérieures au millijoule par centimètre carré, ce qui correspond à une densité d'électrons d'environ 10^{15} cm^{-3} , c'est-à-dire, voisine de la concentration en accepteurs 10^{16} cm^{-3} .

- Les parties rapides et lentes sont sensibles de la même façon à la polarisation du faisceau de lecture.

- Quand on augmente le pas des franges la contribution de la partie rapide devient plus faible que celle de la partie lente. Par exemple, pour un pas de franges λ de $0,7 \mu\text{m}$ leurs amplitudes sont égales, alors que pour $\lambda = 5 \mu\text{m}$ le rapport des amplitudes lente et rapide est d'environ 3.

- De plus, des expériences menées à Angers [63] à grands pas de franges et sans champ externe appliqué montrent qu'à faible énergie d'excitation aucun signal n'est détecté, alors qu'à des énergies supérieures à 1 mJ/cm^2 . On observe un signal dont le temps de montée est similaire à celui que nous observons, mais qui ne donne pas lieu à un effet mémoire. Cet effet transitoire est montré figure 13.

Si nous ne pouvons pour le moment expliquer ces phénomènes, nous pouvons néanmoins prévoir que pour réaliser un stockage optique rapide de l'information sans "accident" il est nécessaire d'utiliser des énergies d'excitation inférieures au mJ/cm^2 .

Nous avons réalisé une seconde expérience de mélange d'ondes : le couplage. Cette expérience ne vise plus cette fois le stockage optique rapide de l'information, mais plutôt la réalisation d'un opérateur logique rapide. Nous allons décrire cette expérience dans le paragraphe suivant.

3 - EXPÉRIENCES DE COUPLAGE D'ONDES

3-1 - Principe de l'expérience

Dans la technique du couplage d'onde, on fait interférer dans le cristal deux faisceaux lumineux. Si le réseau d'indice photoinduit n'est pas en phase avec le réseau d'illumination qui l'a créé, on peut transférer

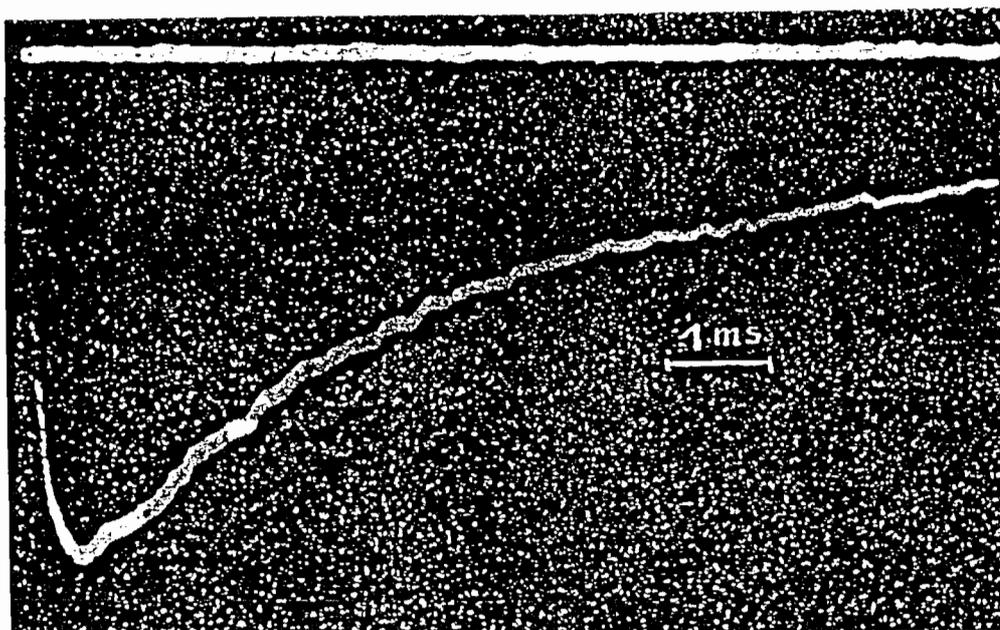


Figure 13 : Signal diffracté obtenu à grand pas de franges, et forte énergie excitatrice, sans champ externe appliqué d'après [63].

de l'énergie d'un des deux faisceaux d'écriture vers l'autre, dans une direction déterminée par l'orientation du cristal et le signe des porteurs majoritaires. Notons I_1 et I_2 les intensités des deux faisceaux qui interfèrent dans le cristal. Ces intensités vont varier au fur et à mesure de la traversée du cristal par effet de couplage. Nous appellerons I_{10} et I_{20} leur valeur sur la face d'entrée de l'échantillon, et $I_1(\ell)$ et $I_2(\ell)$ ces mêmes grandeurs au bout d'une épaisseur ℓ de cristal traversée. La théorie des ondes couplées de Kogelnik [60] permet de calculer $\frac{I_1(\ell)}{I_2(\ell)}$ en fonction de $\frac{I_{10}}{I_{20}}$. On trouve :

$$\frac{I_1(\ell)}{I_2(\ell)} = \frac{I_{10}}{I_{20}} e^{-\Gamma}$$

où Γ est le coefficient de couplage et s'exprime comme suit :

$$\Gamma = \gamma \ell = \frac{2 \pi}{\lambda \cos \theta} \Delta n \ell \sin \phi$$

où θ est l'angle de Bragg dans le cristal, ℓ l'épaisseur de cristal traversée, Δn l'amplitude du réseau d'indice créé et ϕ le déphasage du réseau d'indice par rapport au réseau d'illumination. Nous voyons donc que le couplage est maximum lorsque les deux réseaux sont déphasés de $\pm \frac{\pi}{2}$, et que le signe de Γ peut être positif ou négatif selon le signe des porteurs de charge majoritaires et l'orientation du cristal.

Définissons maintenant les gains dus au couplage qui seront les grandeurs mesurées dans nos expériences :

$$\left\{ \begin{array}{l} G_1 = \frac{I_1(\ell) \text{ (en présence de } I_2)}{I_1(\ell) \text{ (en absence de } I_2)} \\ \\ G_2 = \frac{I_2(\ell) \text{ (en présence de } I_1)}{I_2(\ell) \text{ (en absence de } I_1)} \end{array} \right.$$

nous avons $I_1(\ell) + I_2(\ell) = e^{-\alpha\ell} (I_{10} + I_{20})$ où α est le coefficient d'absorption du cristal en on tire :

$$(4) \quad \left\{ \begin{array}{l} G_1 = \frac{I_{10} + I_{20}}{I_{10} + I_{20} e^{\Gamma}} \\ G_2 = \frac{(I_{10} + I_{20}) e^{\Gamma}}{I_{20} e^{\Gamma} + I_{20}} \end{array} \right.$$

On se place en général dans le cas des faibles modulations. On fait interférer deux faisceaux lumineux l'un de forte intensité I_1 , appelé pompe, l'autre de faible intensité I_2 appelé sonde. Dans le cas des faibles couplages on a :

$$G_1 \cong 1$$

$$G_2 \cong e^{\Gamma} \quad \text{et} \quad \frac{I_2(\ell)}{I_2(0)} = e^{(\gamma - \alpha)\ell}$$

si γ est supérieur à l'absorption on peut amplifier le faisceau sonde avec une partie de l'énergie de la pompe.

3-2 - Résultats expérimentaux

Les calculs théoriques du champ de charge d'espace effectués au paragraphe 1 montrent que sans champ externe appliqué, le champ de charge d'espace est déphasé $-\frac{\pi}{2}$ par rapport au réseau d'illumination. C'est une condition optimale pour le couplage d'onde, nous réaliserons donc nos expériences sans champ externe. Afin d'obtenir des variations d'indice importantes nous nous placerons à petit pas de franges (entre 0,4 et 1 μm). Nous utiliserons des faisceaux d'écriture polarisés circulairement et le cristal sera placé dans la configuration dite "couplage". Dans ce cas, la modulation d'indice induite s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta n_z = 0 \\ \delta n_x = -\frac{1}{2} r_{41} n^3 \delta E \end{array} \right.$$

où x et z sont définis sur la figure 14.

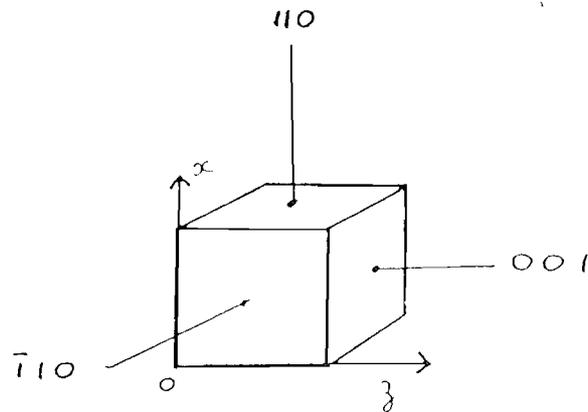


Figure 14 : Orientation du cristal dans la configuration couplage.

Nous prenons une modulation d'éclairement égale à $10^{-4} = \frac{I_{20}}{I_{10}}$, les faisceaux I_1 et I_2 sont orientés par rapport au cristal comme le montre la figure 15.

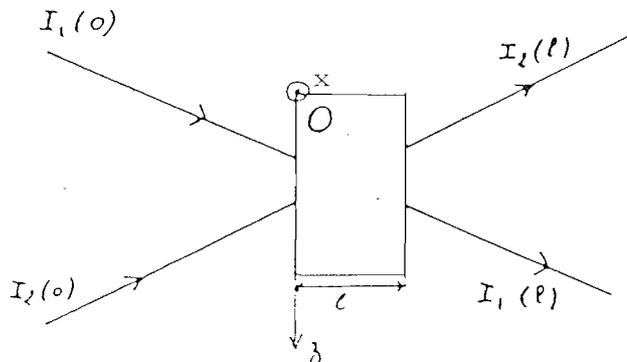


Figure 15 : Orientation des faisceaux I_1 et I_2 par rapport aux axes cristallographiques, I_1 est la pompe, I_2 la sonde.

Le faisceau sonde I_2 est choisi comme signal, nous étudions les variations de sa transmission en présence et en absence de I_1 . Nous observons alors une décroissance de la transmission de I_2 en présence de

I_1 . Pour de faibles énergies incidentes (de l'ordre du millijoule par cm^2 par impulsion) la décroissance après un coup est faible, mais comme pour l'étude de la diffraction, nous pouvons amplifier cet effet en empilant des coups successifs. On atteint ainsi un gain de saturation $G_{2 \text{ Max}}$ qui vaut environ 0,5 pour un pas de franges de $0,5 \mu\text{m}$. En utilisant des densités d'énergie plus élevées (de l'ordre de $20 \text{ mJ}/\text{cm}^2$), nous observons le même gain $G_{2 \text{ Max}}$, mais cette fois ci après le passage d'une seule impulsion lumineuse. La figure 16 montre cette décroissance après un coup de forte énergie et à saturation.

Nous avons vérifié qu'il s'agissait bien de couplage et non d'un phénomène d'absorption induite, par exemple, en tournant le cristal de 180° autour de l'axe Ox. En effet, dans ce cas, on change l'orientation du cristal par rapport au réseau photoinduit et donc le signe de Γ . Nous avons trouvé dans ce cas une augmentation de I_2 en présence de I_1 , et le gain obtenu à saturation est de $G'_{2 \text{ Max}} = 1,8$ une valeur proche de $\frac{1}{G_{2 \text{ Max}}} = 2$.

Il faut cependant montrer que $G'_{2 \text{ Max}}$ était toujours légèrement inférieur à $1/G_{2 \text{ Max}}$. Cette expérience montre qu'il s'agit bien de couplage et permet de mesurer.

$$e^{\Gamma} = 0,5$$

Bien que le calcul du champ de charge d'espace ne soit plus valable dans ce cas, nous nous sommes placés à modulation égale à 1 ($I_{10} = I_{20}$). La formule (4) utilisée avec $e^{\Gamma} = 0,5$ prévoit $G_{2 \text{ Max}} = 0,66$ et nous avons trouvé $G_{2 \text{ Max}} = 0,70$.

Nous avons tracé les variations de $G_{2 \text{ Max}}$ avec le pas des franges du réseau photoinduit, dans le cas où $m = 10^{-4}$. Pour les pas de franges supérieurs à $1,5 \mu\text{m}$ nous n'avons pas détecté de couplage. Ces variations sont montrées Figure 17.

Toutes ces expériences ont été menées sur l'échantillon Sumitomo l'échantillon Crystal Technology beaucoup plus mince n'a pas permis d'observer de couplage d'ondes.

.../...

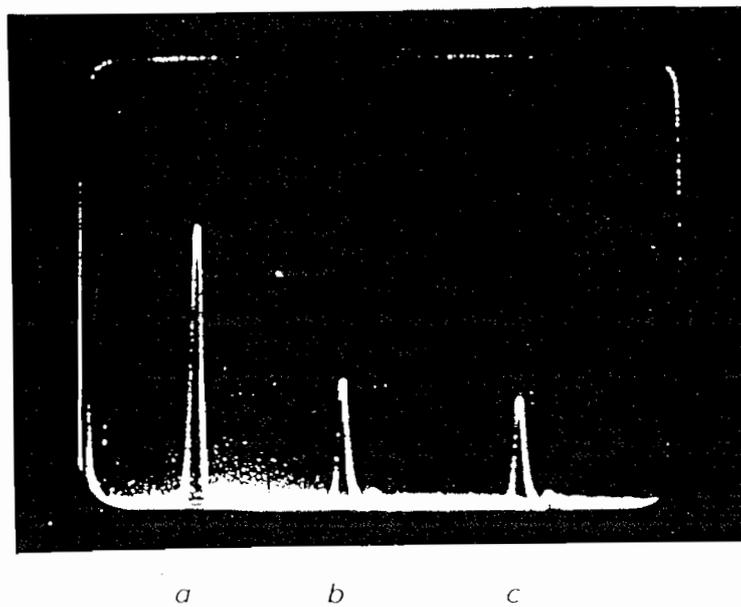


Figure 16 : Signal de couplage d'onde obtenu pour un pas de franges de $0,5 \mu\text{m}$.

- a) impulsion I_2 en absence de I_1 .
- b) impulsion I_2 en présence de I_1 à forte énergie.
- c) " " " " à saturation.

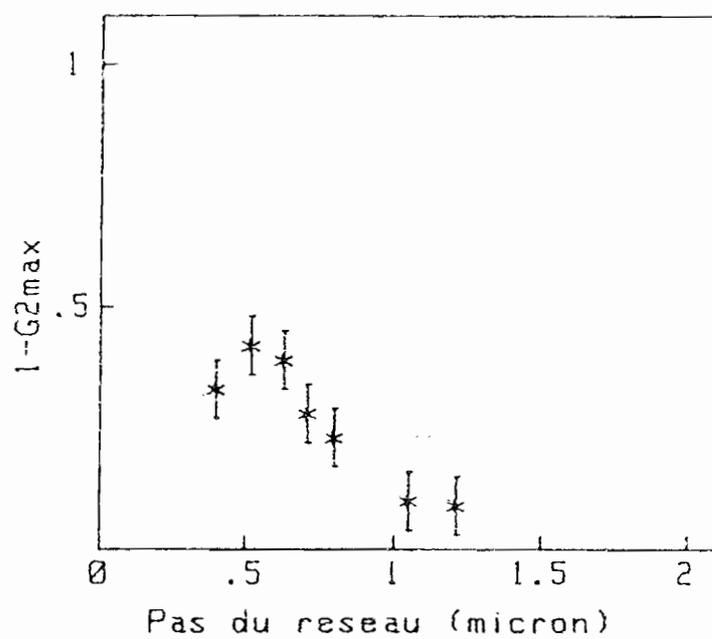


Figure 17 : Variation du gain $G_{2 Max}$ en fonction du pas des franges pour une modulation m de 10^{-4} .

Enfin le sens du couplage observé est le même que celui observé dans les expériences menées en régime quasicontinu. Le calcul du champ de charge d'espace montre que pour ces deux types d'excitation le réseau induit est déphasé de $-\frac{\pi}{2}$ par rapport au réseau d'illumination. Dans les deux cas, les porteurs majoritaires sont donc les mêmes : des électrons. L'hypothèse faite au début du développement théorique est ainsi vérifiée. Ces expériences confirment de plus, que le champ s'instaure pendant la durée de l'impulsion lumineuse à faible pas de franges.

Conclusion

Rappelons tout d'abord les buts que nous nous étions fixés en commençant cette étude. La réalisation d'expériences menées en régime d'excitation nanoseconde devait nous permettre de caractériser de façon plus complète les processus de transport de charge, et d'estimer la limite ultime des temps de réponse de ces matériaux.

Le premier but a été atteint. L'étude de la photoconduction induite par une impulsion lumineuse nanoseconde, a permis de mettre en évidence la part respective du piégeage (à l'échelle nanoseconde) et de la recombinaison (à l'échelle microseconde) dans la photoconduction. Cette méthode nous a permis de caractériser complètement le comportement de certains échantillons en déterminant la mobilité des porteurs dans la bande de conduction, les temps de piégeage et recombinaison, la probabilité d'excitation à partir d'un niveau de piège par unité de temps. Pour d'autres échantillons (dopés au fer par exemple) le temps de piégeage est trouvé être bien plus court que la nanoseconde et ne peut être mesuré par des méthodes photoélectriques. Le rôle de piège joué par les impuretés de type Fer introduites volontairement est cependant clairement mis en évidence. Des mesures complémentaires d'absorption induite nous ont conforté dans la preuve de l'existence de nouveaux centres jouant le rôle de pièges peu profonds dans la bande interdite. [64]

L'analyse des résultats observés, la compréhension des mécanismes mis en jeu, et la détermination des paramètres importants, n'ont été rendus possibles que par l'élaboration d'un modèle théorique mettant en jeu un type de centre donneur et la possibilité de piégeage et de recombinaison des porteurs photoexcités. On montre de plus, que ce modèle reste cohérent avec les résultats expérimentaux observés en régime continu.

Il nous a ainsi été possible de calculer la dynamique d'évolution des porteurs photoexcités pendant et après passage de l'impulsion lumineuse, puis la cinétique de croissance du champ de charge d'espace induit lors d'expériences de mélange à deux ondes. Nous avons alors utilisé ces résultats pour comprendre et exploiter deux types d'expériences : une expérience d'enregistrement holographique, et une expérience de couplage d'ondes. Dans les deux cas, les prévisions de notre modèle permettant d'expliquer la "rapidité" de la réponse de ces matériaux réputés lents jusqu'alors. [65]

Le second but que nous nous étions fixés n'a pas été atteint. Nous n'avons pas pu estimer la limite ultime des temps de réponse, mais paradoxalement, nous avons pu aboutir à un résultat très intéressant. En effet, nous avons montré, grâce aux expériences de mélange à deux ondes que le champ de charge d'espace s'instaurait pendant la durée de l'impulsion lumineuse. Nos expériences faites à faibles pas de réseaux, montrent qu'alors la diffusion des porteurs est plus rapide que trois nanosecondes. Des expériences menées en régime d'excitation picoseconde et à petits pas de réseaux devraient se révéler être riches d'enseignements, car il devrait être alors possible de mesurer le temps de diffusion des porteurs τ_d et donc de mettre au point une méthode toute optique de mesure de leur mobilité μ .

Références

- 1 - P. GUNTER
Ferroelectrics, 40, 43, 1982.
- 2 - J.P. HUIGNARD, J.P. HERRIAU
Applied Optics, 16, 1807, (1977).
- 3 - J.P. HUIGNARD, A. MARRACKCHI
Optics Communications, 38, 249, (1981).
- 4 - M.G. MOHARAM, L. YOUNG
J. Appl. Phys. 48, 3230 (1977)
- 5 - J.P. HUIGNARD, J.P. HERRIAU, L. PICHON, A. MARRACKCHI
Optics Lett., 5, 436, 1980.
- 6 - AUBOURG
Thèse de Docteur Ingénieur - Université de Paris-Sud.
- 7 - G. PAULIAT, J.P. HERRIAU, A. DELBOULBE, G. ROOSEN, J.P. HUIGNARD
JOSA B, 1986.
- 8 - S.L. HOU, D.S. OLIVER
Appl. Phys. Lett. 18, 325, 1971.
- 9 - J.P. HUIGNARD, F. MICHERON
Appl. Phys. Lett. 29, 591, (1976).
- 10 - D. VAN DER LINDE, A.M. GLASS
Applied Physics, 8, 85, (1975).
- 11 - J.W. GOODMAN, F.I. LEONBERGER, S.Y. KUNG, R.A. ATHALE
Proceedings of the IEEE, Vol. 72, n° 7, July 1984.
- 12 - A.R. TANGUAY
Optical Engineering - January/February 1985, Vol. 24, n° 1.
- 13 - G. LE SAUX, G. ROOSEN, A. BRUN
Optics Communications - In Press.
- 14 - M.B. KLEIN, G.C. VALLEY
J. Appl. Phys., Vol. 57, n° 11, June 1985.
- 15 - Y. FAINMAN, E. KLANCNIK and S.H. LEE
O.S.A. Annual Meeting, 1984.
- 16 - R. K. JAIN and G.J. DUNNING
Optics Letters, Vol. 7, n° 9, September 1982.
- 17 - JEFFREY O. WHITE, M. CRONIN GOLOMB, B. FISCHER, A. YARIV
Appl. Phys. Lett. 40 (6), 15 March 1982..
- 18 - POCHI YEH
J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 2, n° 12, December 1985.
- 19 - J.P. HUIGNARD, J.P. HERRIAU, P. AUBOURG et E. SPITZ
Opt. Lett. 4 (1), 21 (1979).

- 20 - Y. H. JA
Optics Comm., 38 (4), 249 (1981).
- 21 - B.T. ANDERSON, P.R. FORMAN, F.C. JAHODA
Optics Letters, 10 (12), 627 (1985).
- 22 - G.C. VALLEY
IEEE, J. of Quantum Electronics, Vol. QE 19, n° 11, November 1983.
- 23 - R.A. MULLEN, R.W. HELLWARTH
J. Appl. Phys. 58, (1), 1 July 1985.
- 24 - PELTIER, MICHERON
J. Appl. Phys., 48, 3683 (1977).
- 25 - P. GUNTER
"Habilitationsschrift Holography coherent light amplification and optical phase conjugation with photorefractive materials".
- 26 -
- 27 - N.V. KUKHTAREV
Sov. Tech. Phys. Lett., 2 (1976), 438.
- 28 - J.M.C. JONATHAN, R.W. HELLWARTH and G. ROOSEN
Journal of Quantum Electronics IEEE (accepté pour publication)
- 29 - G.C. VALLEY, M.B. KEIN
Optical Engineering, Novembre/Décembre 1983, Vol. 22, n° 6
- 30 - CHE TSUNG CHEN, DAE M. KIM
Appl. Phys. Lett. 34 (5), 1 March 1979) (321).
- 31 - CHE TSUNG CHEN, DAE M. KIM and D. VAN DER LINDE
IEEE Journal of Quantum Electronics - Vol. QE-16, n° 2, (126) February 1980.
- 32 - L.K. LAM, T.Y. CHANG, F. FEINBERG, R. W. HELLWARTH
Optics Letters, Vol. 6, n° 10, October 1981 (475).
- 33 - J.P. HERMANN, J.P. HERRIAU, J.P. HUIGNARD
Appl. Optics, Vol. 20, n° 13, 1 July 1981 (2173).
- 34 - M. HENRY
Thèse de Doctorat d'Etat présentée à l'Université Paris 6 - 14 Juillet 1985.
- 35 - R.E. Aldrich, S. L. Hou, M.L. Harvill
Electrical and Optical properties of BSO
J. Appl. Phys. 42, 493, (1971).
- 36 - J.M. BASSAT
Thèse de Doctorat Ingénieur - Université de Bordeaux I.
- 37 - M. PELTIER
J. Appl. Phys., 48, 3683 (1977).

- 38 - A.A. BALLMAN
The growth and properties of piezo-electric BGO ; Journal of Crystal Growth 1-37 (1967).
- 39 - V.V. BRYKSIN AND L.J. KOROVIN
Sov. Phys. Solid State 26 (12), December 1984.
- 40 - A.A. KAMSHILIN and M.P. PETROV
Sov. Phys. Solid. State 23 (10) October 1981.
- 41 - V.N. ASTRATOV, V.A. II'INSKII, and M.B. MEL'NIKOV
Sov. Phys. Solid State 25 (7), July 1983.
- 42 - O.A. GUDAEV, V.A. DETINENKO and V.K. MALINOVSKII
Sov. Phys. Solid State 23 (1), January 1981.
- 43 - A.I. GRACHEV
Sov. Phys. Solid State 26 (1) - January 1984.
- 44 - R. OBERSCHMID
Phys. Stat. Sol. (a) 89, 657 (1985).
- 45 - V.I. BREZKIN
Sov. Phys. Solid State 23 (11) - November 1981.
- 46 - G.G. DOUGLAS and R.W. ZITTER
Journal of Applied Physics - March 1968.
- 47 - V.P. AVRAMENKO, A. YU KUDZIN and G. Kh. SOKOLYANSKII
Sov. Phys. Solid State 22 (10), October 1980.
- 48 - V.P. AVRAMENKO, A. YU KUDZIN and G. Kh. SOKOLYANSKII
Sov. Phys. Solid State 26 (2), February 1984.
- 49 - V.P. AVRAMENKO; L.P. KLIMENKO, A. YU KUDZIN and G. Kh SOLOKYANSKII
Sov. Phys. Solid State, Vol. 19, n° 4, April 1977.
- 50 - V.N. ASTRATOV, A.V. II'INSKII, V.A. KISELEV, and M.B. MEL'NIKOV
Sov. Phys. Solid State 25 (9), September 1983.
- 51 - V.I. BEREZKIN
Sov. Phys. Solid State 25 (2), February 1983.
- 52 - JOSEPH LINK and JOHN FONTANELLA, Carl G. ANDEEN
J. Appl. Phys. 5 (8), August 1980.
- 53 - R. OBERSCHMID
Phys. Stat. Sol. (a) 89, 263 (1983).
- 54 - S.L. HOU, R.B. LAUER, R.E. ALDRICH
J. Appl. Phys., 44, 2652 (1983).

- 55 - R.B. LAUER
Applied Physics Letters, Vol. 17 (4), p. 178 - 15 August 1970.
- 56 - R.B. LAUER
J. Appl. Phys., Vol. 42, p. 2147, (1971).
- 57 - C.W.M. TUNINERMANS and G. BLASSE
Journal of Solid State Chemistry 52, 222-232 (1984).
- 58 - J.C. BALLAND, J.P. ZIELINGER, M. TUPIERO, J.G. GROSS et C. NOGUET
J. Phys. D (sous presse).
- 59 - J.P. ZIELINGER, B. POHORYLES, J.C. BALLAND, J.G. GROSS et A. CORET
J. Appl. Phys., 57, 293 (1985).
- 60 - R.A. MULLEN and R.W. HELLWARTH
J. Applied Phys. 58 (1) - 1 July 1985.
- 61 - G. PAULIAT, G. ROOSEN and M. ALLAIN
Optics Comm. (in press).
- 62 - H. KOGELNIK
"Coupled wave analysis of thick hologram gratings"
Bell System. Technical Journal - 48, 2909 (1969).
- 63 - J.L. FERRIER, J. GAZENGEL, X. NGUYEN PHU, G. RIVOIRE
Optics Comm. (in Press).
- 64 - G. LE SAUX, A. BRUN
Optics Comm. 57 (3), 166 (1986).
- 65 - G. LE SAUX, G. ROOSEN, A. BRUN
Optics Comm. 56, 374 (1986)

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I</u> - PRÉSENTATION DE L'EFFET PHOTORÉFRACTIF.....	3
1 - L'EFFET PHOTORÉFRACTIF	4
2 - APPLICATIONS	5
2-1 - <u>Support holographique</u>	5
a) Stockage optique d'informations.....	5
b) Interconnexions optiques dans l'ordinateur.....	8
c) Adresseur opto-optique pour matrices de fibres optiques	9
2-2 - <u>Couplage d'ondes</u>	9
a) Fonction logique optique	11
b) Cavités auto-oscillantes	12
2-3 - <u>Génération d'ondes conjuguées</u>	12
3 - ANALYSE THÉORIQUE DE L'EFFET PHOTORÉFRACTIF	14
3-1 - <u>Mécanismes de transport de charges dans les cristaux photo-</u> <u>conducteurs</u>	14
a) Diffusion	14
b) Entraînement	15
c) Diffusion anisotrope dans un champ photovoltaïque	15
3-2 - <u>Le Modèle de Kukhtarev</u>	17
a) Cas de l'illumination uniforme	18
b) Cas de l'illumination non uniforme.....	19
c) Remarques	23

4 - L'INTÉRÊT D'UNE ÉTUDE EN RÉGIME D'EXCITATION NANOSECONDE	27
4-1 - <u>Du point de vue des applications</u>	27
4-2 - <u>Du point de vue de la caractérisation</u>	28
4-3 - <u>Les études déjà réalisées en nanoseconde</u>	29
<u>CHAPITRE II</u> - PRÉSENTATION DES CRISTAUX DE BSO ET BGO	31
1 - MAILLE CRISTALLINE	36
2 - PROPRIÉTÉS OPTIQUES	38
2-1 - <u>Indice de réfraction</u>	38
2-2 - <u>Coefficient d'absorption</u>	41
2-3 - <u>Pouvoir rotatoire</u>	43
2-4 - <u>Efficacité Quantique</u>	44
3 - PROPRIÉTÉS ELECTROOPTIQUES	44
3-1 - <u>Le tenseur électrooptique</u>	44
3-2 - <u>Calcul de la biréfringence induite</u>	49
a) "Configuration holographique"	49
b) "Configuration couplage"	51

4-3 - <u>Conclusion</u>	59
<u>CHAPITRE III</u> - ETUDE DE LA PHOTOCONDUCTION	61
INTRODUCTION	61
1 - STRUCTURE DE BANDE DE CRISTAUX DE BSO ET BGO	62
1-1 - <u>Etudes des spectres d'absorption et de photoconductivité</u>	62
1-2 - <u>Photoluminescence</u>	65
1-3 - <u>Courants stimulés thermiquement</u>	65
1-4 - <u>Méthode de spectroscopie par transitoire de courants photo-</u> <u>induits</u>	68
1-5 - <u>Schéma de la bande</u>	69
2 - ETUDE DU COMPORTEMENT TEMPOREL DU PHOTOCOURANT INDUIT	69
2-1 - <u>Prévisions du modèle à deux niveaux</u>	73
a) Cas de l'excitation quasi-continue	75
b) Cas de l'excitation pulsée	76
2-2 - <u>Etude expérimentale du photocourant</u>	78
a) Description du montage	78
b) Premiers résultats expérimentaux	82
c) Interprétation.....	84
d) Confirmation expérimentale	85
e) Etude d'autres échantillons	85

3 - NOUVELLE APPROCHE THÉORIQUE	100
3-1 - <u>Modèle à trois niveaux</u>	100
a) Résolution de l'équation sans second membre	102
b) Solution générale de l'équation avec second membre.....	103
3-2 - <u>Cas de l'excitation nanoseconde</u>	105
a) Cas de l'échantillon de Crystal Technology	106
b) Cas de l'échantillon Sumitomo	108
3-3 - <u>Cas de l'excitation quasi-continue</u>	111
4 - CONCLUSION	116
<u>CHAPITRE IV - MÉLANGE À 2 ONDES DANS LES CRISTAUX BSO-BGO</u>	117
1 - ÉTUDE THÉORIQUE	117
1-1 - <u>Introduction</u>	117
1-2 - <u>Résolution dans le cas de l'échantillon Sumitomo</u>	119
a) Amplitude	119
b) Evolution de δE après passage de l'impulsion	124
1-3 - <u>Résolution dans le cas de l'échantillon Crystal Technology</u>	126
a) Amplitude du champ de charge d'espace à la fin de l'impul- sion lumineuse	126
b) Evolution de δE après passage de l'impulsion	129
2 - ENREGISTREMENT HOLOGRAPHIQUE	130

2-1 - <u>Diffraction par un réseau de phase épais photo-induit dans un cristal de BSO (BGO)</u>	130
a) Structure du réseau d'indice	130
b) Diffraction par un réseau de phase épais	131
2-2 - <u>Montage expérimental</u>	134
a) Faisceaux d'enregistrement	134
b) Faisceau de lecture	134
c) Détection du faisceau diffracté	137
2-3 - <u>Résultats expérimentaux</u>	137
a) Résultats obtenus dans le cas des faibles énergies d'excitation	137
b) Cas des fortes énergies incidentes	142
3 - EXPÉRIENCES DE COUPLAGE D'ONDES	144
3-1 - <u>Principe de l'expérience</u>	144
3-2 - <u>Résultats expérimentaux</u>	147
<u>CONCLUSION</u>	153
<u>REFERENCES</u>	155

